TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES IX
LISTE DES TABLEAUX XIII
LISTE DES ABRÉVIATIONS XV
LISTE DES SYMBOLES XVII
RÉSUMÉ XXII

CHAPITRE I 1
INTRODUCTION 1
1.1 Généralités 1
1.2 État de connaissances et besoin d'étude 4
1.3 Objectif du projet 5
1.4 Avancement et contributions scientifiques anticipées 6
1.5 Structure de la thèse 7
1.6 Références 8

CHAPITRE II 11
REVUE DE LA LITTÉRATURE : FACTEURS D'INFLUENCE SUR L'EFFICACITÉ DE RECOUVREMENTS EN EAU 11
2.1 Principaux facteurs d'influence 11
2.2 Transport de l'oxygène dans un recouvrement en eau 12
2.2.1 Sources de l'oxygène 12
2.2.2 Travaux de laboratoire 21
2.2.3 Travaux de terrain 27
2.2.4 Modélisations mathématiques 29
2.3 Érosion et remise en suspension des particules dans un recouvrement en eau 34
2.3.1 Contrainte de cisaillement total 36
2.3.2 Contraintes de cisaillement critique 40
2.3.2.1 Mesures expérimentales au laboratoire 40
2.3.2.2 Modèles semi-empiriques 46

2.3.3 Épaisseur du recouvrement 47
2.4 Relargage des métaux dissous et géochimie des eaux d'un recouvrement en eau 48
2.4.1 Mesures physiques au laboratoire 49
2.4.2 Mesure de terrain 55
2.4.3 Modélisation géochimique 60
2.5 Besoin en recherche 64
2.6 Références 66

CHAPITRE III 72
DETERMINATION OF THE REACTION RATE COEFFICIENT OF SULPHIDE MINE TAILINGS DEPOSITED UNDER WATER 72
ABSTRACT 72
3.1 Introduction 74
3.2 Equations for DO diffusion in flooded sulphide tailings 79
3.3 Materials and methods 81
3.3.1 Materials properties 81
3.3.2 Testing procedure proposed to evaluate K_r 82
3.3.3 Interpretation procedure of the test results 84
3.4 Results 89
3.4.1 Measured vertical DO profiles 90
3.4.2 Test results interpretation 93
3.5 Discussion 96
3.5.1 Comparison with batch reactor (shake-flask) test results 96
3.5.2 Steady-state DO flux consumed by tailings 99
3.6 Conclusions 101
3.7 Acknowledgements 102
3.8 References 102

CHAPITRE IV 106

LABORATORY STUDY OF HIGHLY SULPHIDE-RICH TAILINGS SUBMERGED BENEATH A WATER COVER UNDER VARIOUS HYDRODYNAMIC CONDITIONS 106
ABSTRACT 106
4.1 Introduction 107
4.2 Materials and methods 111
4.2.1 Tailings characteristics 111
4.2.2 Laboratory column tests 112
4.2.2.1 Column test setup 112
4.2.2.2 Water sampling and analysis 118
4.2.3 Post-testing analysis 120
4.3 Results 120
4.3.1Vertical DO profiles in the water cover 121
4.3.2 Variations of pH 122
4.3.3 Sulphates and dissolved metals 123
4.3.4 Comparison of sulphate and dissolved metals in cover and pore waters 125
4.3.5 Vertical pH, sulphate, and Zn profiles 129
4.3.6 Properties of suspended tailings in column 3 131
4.3.7 Post-testing mineralogy analysis of tailings 132
4.4 Discussion 134
4.4.1 Rate of sulphate loading in the water cover 134
4.4.2 Oxidation-neutralization curves in the water cover 136
4.4.3 Geochemical modeling results 139
4.5 Conclusions 140
4.6 Acknowledgements 142
4.7 References 142

CHAPITRE V 146
FIELD STUDY OF THE CHEMICAL AND PHYSICAL STABILITY OF HIGHLY SULPHIDE-RICH TAILINGS STORED UNDER A SHALLOW WATER COVER 146
ABSTRACT 146

5.1 Introduction 147
5.2 History and description of the study site 149
5.3 Materials and methods 152
5.3.1 Tailings sampling and characterization 152
5.3.2 Water sampling and analysis 153
5.3.3 Wind speed and direction measurement 155
5.3.4 Measurement of suspended solid sediment concentration (SSC) 157
5.3.4.1 SSC using filtration 157
5.3.4.2 Continuous SSC measurement 157
5.4 Results and interpretation 158
5.4.1 Tailings characterization 158
5.4.2 Quality of the final effluent and cover waters 160
5.4.2.1Temperature (T) and dissolved oxygen (DO) profiles in the shallow water cover 160
5.4.2.2 Physicochemical and chemical results 161
5.4.3 Characteristics of the groundwater around the Don Rouyn site 165
5.4.3.1 Well water levels 165
5.4.3.2 Physicochemical and geochemical properties 166
5.4.4 Water geochemical facies 167
5.4.5 Suspended sediment concentration (SSC) 169
5.4.5.1 SSC measurement by filtration 169
5.4.2.2 Continuous SSC measurements 169
5.5 Discussion 171
5.5.1Hydrodynamic conditions for tailings resuspension 171
5.5.2 Comparison of Don Rouyn SSC with other sites 175
5.6 Conclusion 175
5.7 Acknowledgements 176
5.8 References 177

CHAPITRE VI 181
CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS 181

6.1 Sommaire 181
6.2 Chapitre 3 182
6.3 Chapitre 4 184
6.4 Chapitre 5 187
6.5 Dernières remarques 190
6.6 Références 191

APPENDIX A 192
DÉVELOPPEMENT DE LA SECONDE LOI DE FICK 192
APPENDIX B 195
RÉSULTATS COMPLÉMENTAIRES DES ESSAIS EN COLONNE 195
APPENDIX C 199
CARACTÉRISATION DES MATIÈRES EN SUSPENSIONS DE LA COLONNE 3 199
APPENDIX D 203
RÉSULTATS DE L'ANALYSE DE L'INTERFACE EAU–RÉSIDUS À LA FIN DES ESSAIS EN COLONNES. 203
APPENDIX E 208
CORRÉLATION ENTRE LES CONCENTRATIONS ET LES DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DES MATIÈRES EN SUSPENSION 208
APPENDIX F 215
ÉVALUATION QUALITATIVE DE L'INFLUENCE DES PROCESSUS CHIMIQUES ET BIOLOGIQUES SUR L'OXYDATION DES SULFURES DANS DEUX ÉCHANTILLONS DE RÉSIDUS MINIERS 215
APPENDIX G 222
RÉSULTATS DE LA MODÉLISATION GÉOCHIMIQUE À L'AIDE DE VMINTEQ 222
APPENDIX H 224
MESURE DES MATIÈRES EN SUSPENSION À DON ROUYN 224
APPENDIX I 228
CARACTÉRISATION DÉTAILLÉE DES RÉSIDUS MINIERS GALLEN À DON ROUYN 228

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1 Facteurs pouvant affecter l'efficacité d'un recouvrement en eau (Adaptée de Li, Aubé et St-Arnaud, 1997 par Aubertin, Bussière et Bernier, 2002). 11

Figure 2.2 Modèle d'étude de l'oxygène de l'air vers l'eau (Tirée de Mölder, Mashirin et Tenno, 2005). 13

Figure 2.3 Diminution de l'oxygène à saturation dans la chambre d'air ((Tirée de Mölder, Mashirin et Tenno, 2005). 15

Figure 2.4 Profils d'oxygène dissous dans les carottes des stations 1 (a et b) et 2 (c et d) (Tirée de Holmström et Öhlander, 1999). 24

Figure 2.5 Micro-profil et taux net de consommation de l'oxygène dissous dans les résidus préoxydés submergés (Tirée de Elberling et Damgaard, 2001). 25

Figure 2.6 Comparaison de la consommation d'OD pour 4 scénarios différents de recouvrements en eau (Tirée de Li et St Arnaud, 2000). 31

Figure 2.7 Piège à sédiments (sediment trap) (Tirée de Adu-Wusu,Yanful et Mian, 2001).. 35

Figure 2.8 Contraintes de cisaillement τ_w et τ_{ret} en fonction de h à la vitesse de vent de 8 m/s (Tirée de Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001). 40

Figure 2.9 Caractérisés d'érosion de résidus dans un RCF (Tirée de Davé *et al.*, 2003). 42

Figure 2.10 Schéma de la colonne de plexiglas (Tirée de Mian, 2004 et Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007). 43

Figure 2.11 Variation de la contrainte de cisaillement à la paroi (au fond de la colonne) en fonction de la vitesse (Tirée de Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007). 44

Figure 2.12 Détermination τ_{crit} pour les résidus de Heath Steele (Tirée de Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007). 46

Figure 2.13 Schéma d'un dialyseur (Tirée de Martin *et al.*, 2003). 56

Figure 2.14 Modélisation géochimique de 4 scénarios de recouvrement (Tirée de Romano *et al.*, 2003). 63

Figure 3.1 Grain-size distribution curves for tailings TA1 and TA2. 82

Figure 3.2 Photo of the experimental cell setup 83

Figure 3.3 Schematic diagram of the effect of DBL on DO concentration profile through a water cover above tailings. 85

Figure 3.4 DO diffusion coefficient D_w estimated with the presented models (eqs. [3-6] and [3-8]) as a function of porosity. 88

Figure 3.5 Proposed relationship for the estimation of exponent y from the porosity. 89

Figure 3.6 Typical DO profiles measured successively at three points in tailings TA1 on June 15, 2010. 91

Figure 3.7 DO profiles measured on June 08, 2010 for tailings TA1. 92

Figure 3.8 DO profiles measured on September 2010 for tailings TA1. 92

Figure 3.9 DO profiles measured on October 2010 for tailings TA2. 93

Figure 3.10 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on June 2010 on tailings TA1. 94

Figure 3.11 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on September 2010 on tailings TA1. 95

Figure 3.12 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on October 2010 on tailings TA2. 95

Figure 3.13 Change in sulphate production per unit mass of dry tailings TA1 in the shake-flask test. 97

Figure 4.1 Different sphalerite-pyrite associations in the tailings. 113

Figure 4.2 Column components. 114

Figure 4.3 Experimental setup in the laboratory. 115

Figure 4.4 Vertical DO profiles in cover water after 471 days for columns 1-1, 2-1, 3, and 4 and after 127 days for columns 1-2 and 2-2. 122

Figure 4.5 Temporal change in pH of the cover water at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4. 123

Figure 4.6 Temporal change in sulphate in the water covers at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 (logarithmic scale for the vertical axis). 126

Rapport-Gratuit.com

Figure 4.7 Temporal change in Zn in the water covers at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 (logarithmic scale for the vertical axis). 126

Figure 4.8 Comparison of temporal change in sulphate in cover water (CW) at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 and in pore water (PW) at port 5 (a secondary vertical axis is used in Figure 4.8c). 127

Figure 4.9 Comparison of temporal change in Zn concentration in cover water (CW) at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 and in pore water (PW) at port 5 (a secondary vertical axis is used in Figure 4.9c). 128

Figure 4.10 Vertical sulphate (a) and Zn (b) profiles in columns (after 471 d for columns 1-1, 2-1, 3, and 4; and after 598 d for columns 1-2 and 2-2, logarithmic scale for Zn horizontal axis)..... 131

Figure 4.11 SEM BSE/X-mapping overlapping images showing detailed aspects of pyrite oxidation (Qz : quartz, Sil : silicate, Oxi : oxide, Py : pyrite)..... 133

Figure 4.12 Rate of sulphate loading in the water cover. 135

Figure 4.13 Oxidation-neutralization curves of water covers in columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, 4. 138

Figure 4.14 Oxidation-neutralization curves of water cover in column 3. 138

Figure 4.15 Saturation indexes for secondary minerals in column 2-1 at different sampling dates. 139

Figure 5.1 Photo of the Don Rouyn site and locations of stations P1 to P4, where water samples were collected from the shallow water cover..... 150

Figure 5.2 Surface contours of water depth h between the weir crest level and the tailings surface determined in July 2005 in NAD 83, MTN Zone 10 coordinates. m N: meter north and m E: meter east..... 151

Figure 5.3 Location of boreholes (F1 to F6), tailings sampling stations (T1 to T6), final effluent (FE) stations (P1 to P4) for cover water sampling, and station Su for continuous measurement of suspended sediment concentration (in NAD 83, MTN Zone 10 coordinates). m N: meter north and m E: meter east. 152

Figure 5.4 Comparison of wind speeds measured at 10 m from the ground surface at the WUY station at Rouyn and height-corrected wind speeds obtained by the microanemometer at 2,5m from the ground..... 156

Figure 5.5 Photo of the microanemometer installed at the Don Rouyn site. 157

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Figure 5.6 SuSix® probe installation at the Don Rouyn site. 159

Figure 5.7 Evolution of pH in the effluent and the shallow water cover. 162

Figure 5.8 Evolution of Eh in the effluent and the shallow water cover..... 163

Figure 5.9 Evolution of EC in the effluent and the shallow water cover. 163

Figure 5.10 Variation in water level in the piezometers around the Don Rouyn site during summer and fall 2008 and 2009. 166

Figure 5.11 Water geochemical hydrofacies using the Piper diagram for wells F1 to F6 and for the final effluent (FE). 168

Figure 5.12 SSC evolution during summer 2010. 170

Figure 5.13 Correlation between continuously measured SSC and wind speed. 171

Figure 5.14 Variation in total bottom shear stress with respect to wind speed. 174

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1 Exigences au point de déversement de l'effluent final1 (Adapté de Gouvernement du Québec, 2012b).....2

Tableau 2.1Vitesses d'oxydation mesurées pendant les tests en flacons agités (Tiré de Catalan, 1998).....19

Tableau 2.2 Flux d'oxygène dissous consommé calculé sur la base des profils d'oxygène dissous observés dans les colonnes expérimentales en condition stationnaire (Adapté de Blanchette *et al.*, 2001).....27

Tableau 2.3 Différents scénarios de recouvrement en eau, flux stationnaire et masse cumulative d'oxygène dissous consommés (Adapté de Li et St-Arnaud, 2000).....30

Tableau 2.4 Scénarios de modélisations et résultats obtenus (comparaison des flux d'oxygène consommés par les résidus en condition stationnaire pour quatre scénarios étudiés pour une réaction d'ordre 1) (Adapté de Catalan, 1998).....32

Table 3.1 Materials characteristics used as input for POLLUTEv6 calculations and results obtained.....94

Table 3.2 Steady-state DO flux ($mgO_2/m^2/d$) into stable tailings TA1 and TA2 and into DBL..... 99

Table 3. 3 Comparison of modeling oxygen flux into tailings with and without layer of inert material 101

Table 4.1 Column configurations and applied hydrodynamic conditions.....117

Table 4.2 Range of variation in sulphate and dissolved metal content for given monitoring periods in the water covers.....124

Table 4.3 Elements (%) obtained by the chemical analysis of suspended solids in column 3 and of the initial tailings.....132

Table 4.4 Saturation indexes for different secondary minerals at the 471th monitoring day for column 1-1 and 2-1 and at the 840th monitoring day for columns 1-2, 2-2, and 3.....140

Table 5.1 Grain-size characteristics and relative density of solid grains..... 159

Table 5.2 Average concentrations of DO (mg/L) and T (°C) from July to October 2008....161

Table 5.3 Minimal and maximal geochemical parameters in the shallow water cover and final effluent and maximum concentrations specified in Quebec's *Directive 019* and Canada's Metal Mining Effluent Regulations……165

LISTE DES ABRÉVIATIONS

ASTM	American Society for Testing and Materials
AMD	Acid mine drainage
BSE	Backscattered electrons imaging
CEAEQ	Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec
CERC	Coastal Engineering Research Center
DBL	Diffusive Boundary Layer
DMA	Drainage miner acide
DO	Dissolved oxygen
DRX	Diffraction des rayons X
EDS	Spectrométrie à dispersion d'énergie
Eh	Potentiel d'oxydoréduction corrigé par rapport à l'électrode standard à hydrogène
FE	Final effluent
HDPE	High-density polyethylene ou Polyéthylène haute densité
INAP	International Network for Acid Prevention
ICP-AES	Inductively coupled plasma- spectroscopie d'émission atomique
MDDEP	Ministère du développement durable, environnement et parcs
MEND	Mine environment neutral drainage program
MRNF	Ministère des ressources naturelles et fauniques
MES	Matières en suspension
NSERC	conseil de recherche en sciences naturelles et de génie du Canada

NEDEM	Programme de neutralisation des eaux de drainage dans l'environnement minier
OD	Oxygène dissous
RPM	Revolution per minute
SEM	Scanning electron microscope
SSC	Suspended solids concentration
SS	Suspended solids
TA	Tailings
UQAT	Université du Québec en Abitibi Témiscamingue
XRD	X-ray diffraction

LISTE DES SYMBOLES

A	Constante
AP	Potentiel d'acidification (kg $CaCO_3$/t)
A_{py}	Surface totale de la pyrite (m^2)
a_{py}	Surface spécifique de la pyrite (m^2/kg de résidus)
a_w	Déplacement maximal de particules individuelles de fluides par rapport à leur position moyenne (m)
B	Constante
C	Concentration d'oxygène dissous dans l'eau interstitielle ($mol.m^{-3}$ ou g/m^3),
C_e	Concentration de l'oxygène dans l'air (J/m^3)
C_{es}	Concentration de l'oxygène dans l'eau (J/m^3)
C_C	Coefficient de courbure (-)
C_d	Paramètre dépendant de la vitesse du vent (-)
C_i	Concentrations de MES au début de chaque étape de cisaillement (mg/l)
C_1	Concentrations de MES à la fin de chaque étape de cisaillement (mg/l)
C_p	Pourcentage de pyrite (%)
C_u	Coefficient d'uniformité (-)
C_0	Concentration de l'oxygène dissous à l'interface eau–résidus (mg/l)
D_x	Diamètre correspondant à x pourcentages cumulé de la distribution granulométrique (µm)
D_{10}	Diamètre correspondant à 10% cumulé de la distribution granulométrique (µm)
D_{30}	Diamètre correspondant à 30% cumulé de la distribution granulométrique (µm)
D_{50}	Diamètre correspondant à 50% cumulé de la distribution granulométrique (µm) ou diamètre moyen des grains

D_{60}	Diamètre correspondant à 60% cumulé de la distribution granulométrique (µm)
D_{90}	Diamètre correspondant à 90 % cumulé de la distribution granulométrique (µm)
D^0_a	Coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'air (m^2/s)
D^0_w	Coefficient de diffusion libre de l'oxygène dans l'eau (m^2/s)
D_e	Coefficient de diffusion effectif de l'oxygène (m^2/s)
D_w	Coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dissous dans l'eau remplissant les pores des résidus (cm^2/j))
d_p	Profondeur en dessous de l'interface eau–résidus où l'oxygène dissous est complètement consommé (cm)
d_z	Épaisseur de la couche supérieure de résidus utilisée dans POLLUTE (mm)
E	Taux d'érosion (kg/m^2s)
F	Fetch : distance sur laquelle souffle un vent sans rencontrer d'obstacle (m)
F_{OD}	Flux diffusif d'oxygène dans les résidus à la profondeur z et au temps t ($mgO_2/m^2/j$)
$F_{e\text{-}s}$	Flux d'oxygène de l'air vers l'eau ($mol/m^2/s$)
F_d	Débit d'oxygène consommé par le senseur (mol/s)
F_s	Débit d'oxygène de la chambre d'air ver l'eau (mol/s)
f_w	Facteur de frottement dépendant du type d'écoulement au-dessus des résidus
G_s	Densité relative des grains (-)
g	Accélération gravitationnelle (m/s^2)
H	Constante de Henry ($\approx$ 0,03 à 25°C)
H_c	Épaisseur de la couche de matériau inerte utilisée dans POLLUTE (cm)
H_s	Hauteur significative d'une vague (m)

h	Épaisseur d'un recouvrement en eau (m)
h_f	Hauteur d'eau dans la colonne de cisaillement (m)
h_{min}	Épaisseur minimale du recouvrement en eau requise pour éviter le resuspension des résidus (m)
J	Débit molaire à travers une section (mol/s)
J_d	Oxygen flow consumed by oxygen sensor (mol/s)
J_s	Oxygen flow from the chamber into liquid through the interface (mol/s)
K_r	Coefficient du taux de réaction ou de consommation de l'oxygène par les résidus en (s^{-1}),
k_1	Coefficient de transfert de masse (m/s)
k	Constante ($2{,}9\times10^{-4}$ N/m)
L	Longueur d'onde d'une vague (m)
l_d	Épaisseur de la couche de diffusion de la membrane du senseur d'oxygène (m)
l_s	Épaisseur de la couche superficielle du liquide (m)
Ms	Masse des solides contenus dans un volume donné (kg)
NP	Potentiel de neutralisation (kg $CaCO_3$/t)
NNP	Potentiel net de neutralisation (kg $CaCO_3$/t)
n	Porosité (-)
P_a	Pression atmosphérique dans l'équation de la diffusion d'oxygène de l'air vers l'eau (Pa)
P_a	constante dans la formule de D_e (-)
P_w	Constante dans la formule de D_e (-)
P_d	Perméabilité de la couche de diffusion du senseur d'oxygène (mol/m.s.Pa)

P_s	Perméabilité de la couche superficielle du liquide (mol/m.s.Pa)
P_v	Pression du mélange de gaz (Pa)
Q_{py}	Quantité de la pyrite réactive (mol)
R	Constante de gaz parfait [J/mol/K]
Re	Nombre de Reynolds (-)
R^2	Coefficient de corrélation (-)
R_M	Vitesse d'oxydation de résidus ou taux de production de sulfate (nmol/kg/s)
S_d	Section de la couche de diffusion du senseur d'oxygène (m^2),
S_r	Degré de saturation (%)
S_s	Superficie de la surface du liquide (m^2),
T	Température (°K ou °C)
T_o	Tortuosité (-)
T_s	Période significative d'une vague (s)
t	Temps (j)
t_{ss}	Temps nécessaire pour atteindre l'état d'équilibre (j)
$t_{1/2}$	Temps de demi-vie (j)
u	Vitesse azimutale (m/s)
U_a	Facteur de contrainte des vents (m/s)
U_w	Vitesse orbitale des vagues (m/s)
U_{10}	Vitesse du vent mesurée à 10 m du sol (m/s)
V_{cr}	Vitesse critique à l'interface eau–résidus de resuspension des résidus (m/s)
V_0	Volume de la chambre d'air (m^3)
V_p	Volume des pores associé à la réactivité de la pyrite (m^3)
V_{tot}	Volume total des résidus (m^3)

Rapport-Gratuit.com

V_z	Vitesse ascendante ou descendante linéaire des eaux s'infiltrant dans les résidus (m/s).
z	Profondeur sous l'interface eau–résidus (m)
γ_s	Poids volumique des résidus (N/m^3)
γ_w	Poids volumique de l'eau (N/m^3)
γ_b	Poids volumique des résidus à l'interface (N/m^3)
γ_{bo}	Poids volumique s des résidus consolidés (N/m^3)
δ	Épaisseur de la couche de DBL (m)
ρ_a	Masse volumique ou densité de l'air (kg/m^3)
ρ_{res}	Densité moyenne des résidus (kg/m^3)
ρ_s	Densité spécifique des résidus (kg/m^3)
ρ_w	Masse volumique ou densité de l'eau (kg/m^3)
θ_a	Teneur en air volumique (-)
θ_w	teneur en eau volumique (-)
μ	Viscosité dynamique (N.s/m^2)
ν	Viscosité cinématique (m^2/s
τ_{wall}	Contrainte de cisaillement à la paroi (Pa)
τ_{tot}	Contrainte de cisaillement total (Pa)
τ_{ret}	Contrainte de cisaillement due aux courants de retour (Pa)
τ_w	Contrainte de cisaillement due aux vagues (Pa)
τ_{cr}	Contrainte de cisaillement critique (Pa)
Δt	Durée du cisaillement (s)

RÉSUMÉ

La technique de recouvrement en eau peut être utilisée avec succès pour limiter le drainage minier acide (DMA). Les travaux effectués sur cette technique ont abordé plusieurs aspects, dont les facteurs qui influencent l'efficacité du recouvrement en eau. Ces facteurs incluent le transport de l'oxygène dissous (OD) jusqu'aux résidus miniers, l'érosion et la remise en suspension des résidus ainsi que l'impact de ces deux facteurs sur la qualité des eaux du recouvrement. Dans ces travaux, le flux diffusif d'OD à l'interface eau–résidus est souvent quantifié à l'aide de la première loi de Fick appliquée sur le profil vertical d'OD mesuré dans les résidus. Très peu d'études déterminent le coefficient du taux de réaction des résidus K_r, qui est pourtant un paramètre très important impliqué (avec le coefficient de diffusion de OD dans les résidus D_w qui peut être estimé avec précision) dans l'estimation du profil vertical en résolvant la 2e Loi de Fick. La connaissance de K_r (et D_w) peut permettre de réaliser des simulations pour étudier différents scénarios dans la phase préliminaire d'un projet de déposition subaquatique. L'érosion et la remise en suspension a été largement étudiée dans la littérature. Cependant, très peu d'études ont examiné les sites naturels de petite superficie. Aussi, dans la plupart des sites étudiés, les résidus entreposés sous l'eau étaient relativement peu sulfureux. L'objectif principal de ce projet est d'étudier le comportement physique et chimique des résidus hautement sulfureux placés sous un recouvrement en eau par déposition subaquatique. Plus spécifiquement, cette étude vise à : 1) développer une procédure pour une quantification directe de la réactivité des résidus miniers fortement sulfureux sous l'eau au laboratoire en déterminant le coefficient du taux de réaction K_r; 2) étudier l'évolution géochimique de couvertures aqueuses placées au-dessus de résidus très riches en sulfures (plus de 80% de pyrite) soumis à différentes conditions hydrodynamiques au laboratoire; 3) étudier la stabilité chimique et physique de résidus miniers hautement sulfureux stockés sous une couverture aqueuse de petite superficie (7,7 ha), soit le site de Don Rouyn.

Pour atteindre le premier objectif, des essais en cellule ont été réalisés au laboratoire sur deux types de résidus miniers submergés sous une couche d'eau maintenue à une concentration constante d'OD. Le premier résidu, TA1, est composé de 83% de pyrite et le second, TA2, de 2,8% de pyrite. La concentration d'OD a été mesurée à différentes profondeurs sous et au-dessus de l'interface eau–résidus, avec un espacement de 1 mm, à l'aide d'une mini-électrode. Les résultats ont montré que l'état d'équilibre est très vite atteint. Une couche limite diffusive a été observée sur les profils verticaux d'OD mesurés. Le code POLLUTEv6 a été utilisé en condition stationnaire pour analyser les profils d'OD, afin de calculer les valeurs spécifiques de K_r, pour lesquels les profils de concentration d'OD calculés correspondent à ceux mesurés. Les valeurs K_r d'environ 80 j^{-1} et 6,5 j^{-1} ont été obtenues respectivement pour les résidus TA1 et TA2. La valeur de K_r pour les résidus TA1 a été comparée à celle calculée à partir du taux de production de sulfate obtenu dans les tests de flacons agités. Les résultats indiquent que K_r obtenu par la procédure proposée est inférieur à K_r calculé à partir des flacons agités. Les flux d'OD en condition stationnaire à l'interface eau–résidus ont ensuite été calculés à l'aide de POLLUTEv6. Pour les conditions testées, le flux OD variait entre 608 et 758 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus TA1 et à partir de 177 à 221 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus TA2. Enfin, l'impact

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

d'une couche de protection d'un matériau inerte sur les résidus a été étudié. Pour les résidus miniers hautement sulfureux TA1, une couche de protection de 5 cm seulement fournit un flux OD consommé par les résidus d'environ 13 $mgO_2/m^2/j$, soit une réduction du flux d'environ 98% (comparativement à un flux de 608 mg $O_2/m^2/j$ sans couche de protection).

Pour atteindre le deuxième objectif, des essais en colonnes ont été réalisés au laboratoire. Des résidus (avec plus de 80% de pyrite) ont été placés dans des colonnes et recouverts avec de l'eau déionisée. Les conditions hydrodynamiques appliquées comprenaient des couvertures d'eau stagnante, stagnante avec une infiltration intermittente descendante, agitée en continu avec faible remise en suspension des résidus et agitée en permanence avec forte remise en suspension des résidus. Une couverture d'eau agitée en continu avec une couche de sable (20 cm) placée au-dessus des résidus a également été étudiée. Pour chaque colonne, des échantillons d'eau de couverture et interstitielle ont été analysés mensuellement pour déterminer les changements dans les paramètres physico-chimiques et géochimiques sur une période de suivi allant de 338 à 840 jours. Pour les couvertures d'eau au repos, les résultats indiquent que le pH est resté proche de la neutralité et que les concentrations de métaux dissous (Cu, Fe, Ni, Pb et Zn) ont été généralement faibles par rapport aux colonnes avec remise en suspension. L'ajout d'une couche de matériau inerte empêche de manière significative les résidus sulfurés de s'oxyder. Les résultats ont aussi montré que le Zn dissous est le principal métal ayant la concentration la plus élevée dans toutes les colonnes (à l'exception évidemment du Fe), bien que les résidus étudiés ne contenaient que 0,38% de Zn présents sous les formes de sphalérite libre, attachée à la pyrite et incluse dans la pyrite.
Enfin pour atteindre le troisième objectif, des mesures *in situ* ont été effectuées durant l'été et l'automne de 2008, 2009 et 2010 au site de déposition subaquatique Don Rouyn. Ce site est une ancienne carrière dont la fosse a été utilisée pour une déposition subaquatique des résidus. Ces travaux ont consisté à : 1) échantillonner et caractériser les résidus; 2) vérifier la variation de la qualité des eaux de la couverture aqueuse, de l'effluent final et des eaux souterraines autour de la fosse; 3) déterminer le gradient hydraulique de l'écoulement entre l'eau du recouvrement et l'eau souterraine par comparaison des niveaux d'eau dans la fosse et dans les piézomètres autour de la fosse; et 4) étudier l'érosion et la remise en suspension des résidus miniers sous l'eau par mesures ponctuelles et en continu de matières en suspension (MES). Les résultats obtenus montrent que la qualité des eaux de la couverture aqueuse, de l'effluent final et des eaux souterraines est conforme aux réglementations canadienne et québécoise. Les concentrations de MES mesurés durant un été sont également dans les limites réglementaires. Aucune corrélation n'a été trouvée entre les MES et les vitesses du vent. Bien que les calculs théoriques indiquent une vitesse critique du vent d'au moins 10 m/s pour amorcer la remise en suspension des résidus, des sédiments en suspension ont été observés pour des vitesses de vent de loin <10 m/s.

Cette étude a permis d'approfondir la compréhension sur le comportement géochimique de résidus miniers hautement sulfureux en condition submergée. Les tests au laboratoire ont permis de développer une méthode permettant d'évaluer le coefficient du taux de réaction des résidus submergés. La disponibilité de cette propriété donne une flexibilité pour simuler les flux d'oxygène dissous consommés par les résidus pour diverses configurations de recouvrements en eau lors du design préliminaire. Ils ont également permis de montrer

l'impact de conditions hydrodynamiques diverses et l'ajout de couche de matériau inerte sur la qualité des couvertures d'eau placées au-dessus de résidus très sulfureux. La remise en suspension devrait être contrôlée par la mise en place d'une couche de matériaux inertes. Les mesures directes sur le terrain ont permis de montrer que la théorie sur les conditions hydrodynamiques de remise en suspension des résidus miniers sous l'eau pouvait ne pas s'appliquer dans certaines conditions, comme pour le site Don Rouyn. Les outils développés seront utiles pour les utilisateurs potentiels (compagnies minières, firmes de génie-conseil, services gouvernementaux).

Mots clés : Résidus hautement sulfureux, drainage minier acide, déposition subaquatique, réactivité des résidus, stabilité géochimique, eaux souterraines, site Don Rouyn

CHAPITRE I

INTRODUCTION

1.1 Généralités

Le sous-sol québécois est constitué à près de 90% de roches précambriennes du Bouclier canadien qui représentent un ensemble géologique réputé mondialement pour ses gisements d'or, de cuivre, de zinc, de nickel, de fer et d'ilménite (Gouvernement du Québec, 2012a). Grâce à ce contexte géologique favorable, le Québec représente l'une des trois provinces du Canada les plus actives dans le domaine de l'industrie minière (e.g. MEND, 2001; Aubertin, Bussière et Bernier, 2002). L'industrie minière est un moteur de développement économique pour le Québec. En effet, en 2008, ce sont plus de 30 000 emplois directs et indirects qui ont été générés par les activités liées à la production minière au Québec (MRNF, 2011).

En dépit de ses retombées positives, l'industrie minière engendre des impacts environnementaux négatifs par la production d'une grande quantité de rejets miniers sous forme de rejets de concentrateur ou de résidus miniers, de roches stériles et d'eaux de mines et de traitement. Au Canada, il y aurait environ 7 milliards de tonnes de résidus miniers (rejets de concentrateur) et 6 milliards de tonnes de roches stériles entreposées en surface et plusieurs sites orphelins générateurs de drainage minier acide, qui continuent de causer des torts à l'environnement (Aubertin *et al.*, 2002; Bernier, 2006). Au Québec seulement, c'est plus de 13000 hectares qui sont recouverts par ces divers rejets (Aubertin *et al.*, 2002; Bernier, 2006).

Les stériles miniers sont empilés sous forme de haldes, tandis que les rejets du concentrateur, aussi appelés résidus miniers, sont entreposés dans des parcs à résidus miniers. Ces derniers

sont des rejets à texture fine à cause du broyage des particules permettant de récupérer les minéraux à valeurs commerciales. Ces rejets miniers peuvent contenir des minéraux sulfureux (principalement la pyrite FeS_2 et la pyrrhotite $Fe_{1-x}S_2$), qui, une fois au contact de l'air et de l'eau, produisent du drainage minier acide (DMA). Les processus qui interviennent lors de la génération du DMA ont été intensivement étudiés (MEND, 1991, Jambor et Blowes, 1994; Evangelou, 1995; Aubertin, Bussière et Bernier, 2002; INAP, 2009). Il en résulte une génération de l'acidité et une dissolution des métaux lourds. Le DMA constitue un des principaux défis de l'industrie minière, car il peut conduire à la dégradation de la qualité chimique de l'eau, compromettant ainsi les critères de décharge de l'effluent imposés par la *Directive 019* sur l'industrie minière (Gouvernement du Québec, 2012b). Les exigences au point de déversement de l'effluent final requises sont résumées dans le tableau 1.1.

Tableau 1.1 Exigences au point de déversement de l'effluent final1 (Adapté de Gouvernement du Québec, 2012b)

Paramètre	Concentration moyenne mensuelle acceptable (mg/L)	Concentration maximale mensuelle acceptable (mg/L)
As extractible	0,2	0,4
Cu extractible	0,3	0,6
Fe extractible	3	6
Ni extractible	0,5	1
Pb extractible	0,2	0,4
Zn extractible	0,5	1
Cyanures totaux	1	2
Hydrocarbures (C10-C50)	ND[x]	2
Matières en suspension	15	30
pH	6	9,5

[1]Selon la nature du minerai, du procédé, des résidus miniers ou selon le calcul des objectifs environnementaux de rejet, d'autres exigences au point de rejet de l'effluent final pourraient s'ajouter en vertu de l'article 20 de la Loi lors de la délivrance du certificat d'autorisation

[x]ND : Non Donné

Pour remédier à ce problème, des méthodes ont été développées pour limiter et prévenir la génération du DMA. En climat humide, comme celui des régions nordiques, dont le Québec, la réduction de l'apport en oxygène vers les résidus semble la méthode la plus efficace. Une des techniques utilisées à cette fin est le recouvrement en eau des résidus miniers (Rescan,

1996; Pedersen *et al.*, 1997; Holmström et Ölhander, 1999; Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001; Vigneault *et al.*, 2001; Mian et Yanful, 2004; Kachlwal, Yanful et Lanteigne, 2010; Moncur *et al.*, 2012).

La technique du recouvrement en eau consiste à maintenir une couverture d'eau au-dessus des rejets miniers sulfureux potentiellement générateurs de DMA. L'efficacité de cette technique est basée sur le fait que le coefficient de diffusion de l'oxygène dissous dans l'eau (D_w^0) est environ 10 000 fois plus faible que le coefficient de l'oxygène dans l'air (D_a^0). En effet, le coefficient (D_w^0) dans l'eau stagnante à 25°C est d'environ 2×10^{-9} m²/s, alors que ce coefficient (D_a^0) dans l'air est de $1{,}8\times10^{-5}$ m²/s (Simms *et al.*, 2000; Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001; Davé *et al.*, 2003; Aubertin, Bussière et Bernier, 2002; Kachlwal, Yanful et Lanteigne, 2010). L'efficacité de la technique est aussi basée sur le fait que la concentration maximale de l'oxygène dissous disponible dans l'eau est faible (8,6 mg/L à 25°C) par rapport à celle disponible dans l'air (285 mg/L) (Simms *et al.*, 2000; Davé et *et al.*, 2003; Kachlwal, Yanful et Lanteigne, 2010).

La technique de recouvrement en eau regroupe la technique de déposition subaquatique et la technique d'inondation. On parle de déposition subaquatique lorsque les résidus non oxydés qui sortent du concentrateur sont déposés directement sous l'eau. L'inondation, quant à elle, concerne les cas où les résidus entreposés dans un parc à résidus et éventuellement partiellement oxydés sont submergés d'eau (MEND, 2001). Dans ce dernier cas, l'oxydation préalable des résidus peut entraîner le relargage des métaux et des sulfates dans la couverture aqueuse. De ce fait, le phénomène de relargage des métaux est moins critique pour les résidus déversés par la technique de déposition subaquatique que pour les résidus entreposés par inondation (MEND, 2001). Cependant, l'impact de cette contamination sur la couverture d'eau dans le cas d'une inondation peut être négligeable à long terme (MEND, 1993; Vézina et Amyot, 1999; Catalan, Yanful et St Arnaud, 2000; Peacey, Yanful et Payne, 2002).

Dans le passé, les plans d'eau naturels étaient utilisés comme réservoir d'eau pour y déverser les résidus miniers. Dans le cadre du programme NEDEM-MEND, des études ont été

effectuées sur certains de ces plans d'eau naturels utilisés pour entreposer des rejets miniers sulfureux. On peut citer le lac Benson et le lac Buttle en Colombie-Britannique et les lacs Anderson et Mandy au Manitoba (MEND, 1989). Cependant, les législations actuelles et le caractère controversé de l'utilisation de plans d'eau pour submerger les résidus générateurs de DMA indiquent qu'on ne saurait approuver cette technique que dans des cas très particuliers où toutes les autres options seraient inapplicables (Aubertin, Bussière et Bernier, 2002). Ainsi, la technique de recouvrement en eau nécessite dorénavant la construction de digues de confinement étanches avant la mise en opération d'une mine. Cependant, l'utilisation des digues requiert un suivi et un entretien des ouvrages à très long terme (Aubertin, Bussière et Bernier, 2002). Les fosses de mine à ciel ouvert ou les carrières, et les ouvertures souterraines (galeries de mine) peuvent aussi être utilisées comme réservoir pour déposer les résidus sous l'eau. Dans ce cas, il faut s'assurer que ceux-ci (fosses à ciel ouvert ou carrières, galeries) n'ont pas de connexion hydraulique avec le milieu encaissant. Dans tous les cas, il faut garantir un bilan positif entre les apports des précipitations et du bassin versant et les pertes par exfiltration et évaporation pour maintenir en permanence une couverture aqueuse d'une épaisseur suffisante.

1.2 État de connaissances et besoin d'étude

Le recouvrement en eau est un système complexe et dynamique, dans lequel plusieurs processus interdépendants et interactifs interviennent et peuvent influencer sont efficacité (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). Ces processus sont principalement le transport de l'oxygène dissous, l'érosion et la remise en suspension des résidus miniers et le relargage des métaux. Ces processus sont amplement décrits au chapitre 2. De nombreuses études ont été effectuées sur la technique de recouvrement en eau et elles ont abordé les facteurs d'influence mentionnés ci-dessus; plusieurs exemples de recouvrement en eau existent dans la littérature. On peut citer le recouvrement en eau des sites suivant : Louvicourt à l'est de Val-d'Or en Abitibi Qc (Vigneault *et al.*, 2001); Mattabi près d'Ignace en Ontario (Catalan, 2000); Quirke au nord de Elliot Lake en Ontario (Peacey, Yanful et Payne, 2002); Equity Silver en Colombie-Britannique (Rescan, 1996); Nanisivik au nord du Canada (Elberling et Damgaard,

2001); Heath Steele Mines au Nouveau Brunswick (Mian et Yanful, 2004), Stekenjokk en Suède (Holmström et Ölhander, 1999). Plusieurs auteurs ont démontré l'efficacité de la technique de recouvrement en eau, tant par des travaux au laboratoire (Aubé *et al.*, 1995; Rescan, 1996; Davé *et al.*, 1997; St-Arnaud, 1994; Li, Aubé et St-Arnaud, 1997; Holmström et Öhlander, 1999; Catalan, Yanful et St Arnaud, 2000; MEND, 2001; Li, Catalan et St-Germain, 2000; Peacey et Yanful, 2003) que par des travaux sur le terrain (MEND, 1989; MEND, 1993; Yanful et Simms, 1997; Vigneault *et al.*, 2001).

Cependant, la déposition sous l'eau de résidus très sulfureux n'a pas fait l'objet de beaucoup études jusqu'ici. L'étude de l'impact des différents facteurs critiques qui affectent l'efficacité de recouvrements en eau reste particulièrement requise pour ces résidus miniers fortement sulfureux et ayant une capacité de neutralisation faible, voire négligeable.

1.3 Objectif du projet

Ce projet s'inscrit dans le cadre des travaux de recherche de la Chaire industrielle CRSNG Polytechnique-UQAT en environnement et gestion des rejets miniers. L'objectif principal de ce projet est d'évaluer le comportement géochimique de résidus miniers fortement sulfureux (plus de 80% de pyrite) sous le recouvrement en eau. Ce projet se limitera à l'étude de la déposition subaquatique des résidus miniers et n'abordera pas la problématique d'inondation de rejets préoxydés. Le site Don Rouyn, situé en Abitibi, sera utilisé comme site d'étude. Plus spécifiquement, ce projet vise à :

- développer une méthode de mesure pour quantifier la réactivité des résidus miniers sulfureux sous l'eau au laboratoire;
- étudier l'évolution géochimique de couvertures aqueuses placées au-dessus des résidus très riches en sulfures submergés et soumises à différentes conditions hydrodynamiques au laboratoire; et
- évaluer sur le terrain la stabilité chimique et physique de résidus miniers hautement sulfureux stockés sous la couverture en eau du site Don Rouyn.

1.4 Avancement et contributions scientifiques anticipées

Pour la première fois, cette étude apporte une nouvelle méthode de mesure d'oxygène dissous (OD) et une nouvelle méthode d'interprétation des profils d'OD pour la quantification de la réactivité de résidus miniers sulfureux submergés sous l'eau à l'aide des essais en cellule. La réactivité des résidus miniers est évaluée à partir du coefficient du taux de réaction K_r, un paramètre très important qui permet d'estimer le flux diffusif d'OD dans les résidus particulièrement dans la phase préliminaire d'un projet de recouvrement en eau. Le coefficient du taux de réaction K_r a pu être déterminé en interprétant les résultats des mesures à l'aide de modélisations numériques itératives. Les limites de cette approche ont également été identifiées. Une fois K_r connu pour des résidus donnés, il est possible de faire des calculs théoriques et numériques de la diffusion de l'oxygène dissous dans les résidus submergés et d'estimer le flux diffusif à l'interface eau–résidus pour différents scénarios de recouvrements. Cela offre plus de flexibilité pour les ingénieurs chargés du design de recouvrements en eau.

Cette étude a ensuite permis de simuler l'impact de différentes conditions hydrodynamiques sur la qualité de l'eau du recouvrement pour des résidus très sulfureux, rarement étudiés auparavant, à l'aide d'essais en colonne au laboratoire. Même en condition de recouvrement en eau stagnante, l'oxygène dissous parvient à atteindre les résidus. La mise en place d'une couche inerte de protection sur les résidus a des avantages indéniables : c'est le seul moyen d'éviter complètement la remise en suspension des résidus qui, sinon, peut porter préjudice à l'efficacité du recouvrement en eau. De plus, cette couche joue le rôle de barrière à l'oxygène. Ces essais en colonne ont encore une fois montré la mobilité particulière du Zn, qui était pourtant présent en très faible quantité dans les résidus.

Enfin, la recherche réalisée a également permis d'étudier la stabilité physique et chimique de résidus miniers en condition réelle de terrain. Le site choisi a la particularité d'être la fosse d'une ancienne carrière. La qualité des eaux du recouvrement et des eaux souterraines montre que ce type de fosse peut être efficacement utilisé pour la déposition subaquatique des résidus (moyennant une bonne étude hydrogéologique préalable). Le site choisi a aussi la particularité d'être de faible superficie en comparaison aux autres sites étudiés dans la

Rapport-Gratuit.com

littérature. Aucune corrélation n'a pu être obtenue entre les vitesses des vents et les concentrations de résidus en suspension. Autrement dit, les principes théoriques utilisés pour le design de recouvrements en eau se sont avérés non applicables pour ce cas : une remise en suspension a été observée à de très faibles vitesses de vents. Malgré la remise en suspension des résidus observée, la qualité de l'eau du recouvrement n'est pas affectée.

Les résultats des travaux réalisés constituent une contribution scientifique à la technique du recouvrement en eau, particulièrement dans le cas de rejets très sulfureux. Les outils développés et les conclusions formulées devraient être très utiles pour les utilisateurs potentiels (industries minières, bureaux de consultants, et services gouvernementaux).

1.5 Structure de la thèse

Afin de répondre aux objectifs de la thèse, différents travaux de laboratoire et de terrain ont été réalisés. Les principaux résultats de ces travaux sont présentés dans la thèse. Après cette introduction, le chapitre II présente une revue de la littérature sur les différents facteurs qui influencent la technique de déposition subaquatique. Les trois chapitres suivants sont présentés sous forme d'articles de revue (soumis pour publications). Ils portent respectivement sur l'étude de la réactivité des résidus sous l'eau à l'aide d'essai en cellule au laboratoire pour le chapitre III, l'étude de la qualité des couvertures d'eau de résidus fortement sulfureux déposés sous l'eau à l'aide d'essais en colonne au laboratoire pour le chapitre IV, et enfin l'étude sur le terrain de la stabilité physique et chimique de résidus miniers fortement sulfureux stockés sous un recouvrement en eau sur le site de Don Rouyn pour le chapitre V. Le Chapitre VI expose les principales conclusions de l'étude et les recommandations. Enfin, quelques annexes apportent des résultats complémentaires à ceux présentés dans la thèse.

Il faut d'emblée mentionner que certaines redondances ne peuvent pas être évitées quand on opte pour une thèse par articles. Cela sera indiqué au fur et à mesure dans la thèse. De plus, pour certaines publications (chapitres 3 et 4), il a été préféré de mettre l'accent sur les

techniques et les approches et non sur les résidus eux-mêmes. Pour cette raison, les résidus utilisés ne sont pas nommés explicitement dans ces chapitres, bien que ce soient les mêmes résidus très sulfureux du site de Don Rouyn qui ont été utilisés (voir chapitre 5).

Finalement, il convient de mentionner que quelques annexes sont incluses dans les différents chapitres pour compléter les résultats présentés dans les manuscrits soumis pour publication. Ces annexes ne font pas partie des manuscrits soumis.

1.6 Références

Adu-Wusu, C., Yanful, E.K., Mian, M.H. 2001. "Field evidence of resuspension in a mine tailings pond". *Canadian Geotechnical. Journal,* 38: 796−808.

Aubé, B.C, St-Arnaud, L.C., Payant S.C., Yanful, E.K. 1995. "Laboratory evaluation of the effectiveness of water covers for preventing acid generation from pyritic rock". *Mining and the Environment Conference*, May 28-June 1, Sudbury, Ontario, Canada, 495−504.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L. 2002. *Environnement et gestion des rejets miniers.* CD-ROM, Les Presses Internationales Polytechnique, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L., Chapuis, R., Julien, M., Belem, T., Simon, R., Mbonimpa, M., Benzaazoua, M., Li, L. 2002. "La gestion des rejets miniers dans un contexte de développement durable et de protection de l'environnement". *Congrès Annuel de la Société Canadienne de Génie Civil*, 5-8 juin 2002, Montréal, Québec, Canada.

Bernier, L. 2006. "L'environnement et la gestion des rejets miniers : le rôle du géologue ordre des géologues". *Bullettin*, 2: 4−7

Catalan, L.J., E.K. Yanful L. St. Arnaud. 2000. "Field assessment of metal and sulphate fluxes during flooding of preoxidized mine tailings". *Advances in Environmental Research,* 4: 295−306.

Catalan, L.J.J. 2000. "Flooding of pre-oxidized mine tailings: Mattabi case study". *MEND report 2.15.1a*, Québec, Canada, 215 p.

Dave, N.K., Krishnappan, B.G., Davies, M., Reid, I. 2003. "Erosion characteristics of underwater deposited mine tailings". *Mining and the Environment Conference*, May 25-28, Sudbury, Ontario, Canada, 11 p.

Davé, N.K., Lim, T.P., Horne, D., Boucher, Y., Stuparyk, R. 1997. "Water cover on reactive tailings and wasterock: Laboratory studies of oxidation and metal release characteristics." *4th International Conference on Acid Mine Drainage,* May 31-June 6, Vancouver, 779−794.

Evangelou, V.P. 1995. *Pyrite oxidation and its control*. CRC Press Inc. Boca Raton, Florida.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Gouvernement du Québec. 2012a. Gros plan sur les mines : Aperçu géologique. http://www.mrnf.gouv.qc.ca/mines/geologie/geologie-apercu.jsp

Gouvernement du Québec. 2012b. Directive 019 sur l'industrie minière. http://www.mddep.gouv.qc.ca/milieu_ind/directive019/directive019.pdf

Elberling, B., Damgaard, L.R. 2001. "Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulphide tailings". *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 65: 1897−1905.

Holmström, H., Öhlander, B. 1999. "Oxygen penetration and subsequent reactions in flooded sulphidic mine tailings: a study at Stekenjokk, northern Sweden". *Applied Geochemistry*, 14: 747−759.

INAP (The International Network for Acid Prevention). 2009. Global acid rock drainage guide (GARD Guide).http://www.gardguide.com/.

Jambor, J.L., Blowes, D.W. 1994. The environmental chemistry of sulphide mine-wastes. *Mineralogical Association of Canada Short Course Handbook*, 22, 438p.

Kachhwal, L.K., Yanful, E.K., Lanteigne, L. 2010. "Water cover technology for reactive tailings management: A case study of field measurement and model predictions". *Water, Air,and Soil Pollution,* 214: 357−382.

Li, M., Catalan, L., St-Germain, P. 2000. "Rates of oxygen consumption by sulphidic tailings under shallow water covers - Field measurements and modelling." *5th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 21-24, Denver, USA, 913−920.

Li, M., Aubé, B., St-Arnaud, L. 1997. "Consideration in the use of shallow water covers for decommissioning reactive tailings". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, BC, 115−130.

MEND. 2001. "MEND Manual: prevention and control". *MEND report 5.4.2d,* CANMET, Ottawa, Canada, 154 p.

MEND. 1993. "Expérimentation de l'inondation du parc à résidus miniers SOLBEC -CUPRA (phase IV)". *MEND report 2.13.2a, 233p.*

MEND. 1991. "Acid rock drainage prediction manual: A manual of chemical evaluation procedures for the prediction of acid generation from mine wastes". *MEND report 1.16. 1b*, 71p.

MEND. 1989. "Subaqueous disposal of reactive mine wastes: an overview". *MEND report 2.11.1a*, 146p.

Mian, M.H., Yanful, E.K. 2004. "Analysis of wind-driven resuspension of metal mine sludge in a tailings pond". *Journal of Environmental Engineering and Science*. 3: 119−135.

Moncur, M.C., Ptacek, C.J., Blowes, W.D., Lindsay, M.B.J., Jambor, J.L. 2012. Long terme storage of sulfide rich tailings under a schallow water cover. *9 th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 20-26, Ottawa, Ontario, canada, 12p.

MRNF (Ministère des Ressources naturelles et de la Faune). 2011. *Profil des retombées économiques des activités et des investissements du secteur minier au Québec.* http://www.mrnf.gouv.qc.ca/mines/statistiques/index.jsp

Peacey, V., Yanful, E.K. 2003. "Metal Mine Tailings and Sludge CO-Deposition in a Tailings Pond". *Water, Air, & Soil Pollution*, 145: 307−339.

Peacey, V., Yanful, E.K., Payne, R. 2002. "Field study of geochemistry and solute fluxes in flooded uranium mine tailings". *Canadian Geotechnical Journal,* 39:357−376.

Pedersen, T.F., McNee, J.J., Flather, D., Mueller, B., Sahami, A., Pelletier, C.A. 1997. "Geochemistry of submerged tailings in Buttle lake and the Equity Silver tailings pond, British Columbia, and Anderson lake, Manitoba: What have we learned". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May, 31-June 6, Vancouver, Canada, B C, 989−1005.

Rescan. 1996. "Geochemical assessment of Equity Silver tailings pond". *MEND Project 2.11.5c*, 123p.

Simms, P.H., Yanful, E.K., St-Arnaud, L., Aubé, B.C. 2000. "A laboratory evaluation of metal release and transport in flooded pre-oxidized mine tailings". *Applied Geochemistry*, 15: 1245−1263.

St-Arnaud, L. 1994. "Water covers for decommissioning of sulfidic mine tailings impoundments". *International Land Reclamation and Mine Drainage and third International Conference on the abatement of acidic drainage*, April, 24-29, Pittsburgh, USA, 279−287.

Vézina, S., Amyot, G. 1999. "Le suivi de la restauration par inondation au parc à résidus miniers - Solbec". *MEND report 9-3a-F*, 13p.

Vigneault, B., Campbell, P.G.C., Tessier, A., De Vitre, R. 2001. "Geochemical changes in sulfidic mine tailings stored under a shallow water cover". *Water Research*, 35:1066−1076.

Yanful, E.K., Simms, P. 1997. "Review of water cover sites and research projects". *MEND Report 2.18.1*, 136p.

CHAPITRE II

REVUE DE LA LITTÉRATURE : FACTEURS D'INFLUENCE SUR L'EFFICACITÉ DE RECOUVREMENTS EN EAU

2.1 Principaux facteurs d'influence

L'objectif premier d'un recouvrement en eau est de constituer une barrière à l'oxygène et à cet effet, cette technique a fait ses preuves. Cependant, l'efficacité d'un recouvrement en eau ne dépend pas uniquement de sa capacité à limiter la diffusion moléculaire de l'oxygène (Aubertin, Bussière et Bernier, 2002). En effet, un système de recouvrement en eau interagit avec l'environnement et est de ce fait soumis à différents facteurs qui peuvent influencer son efficacité et par conséquent la qualité de l'eau de recouvrement. La Figure 2.1 montre les différents processus impliqués.

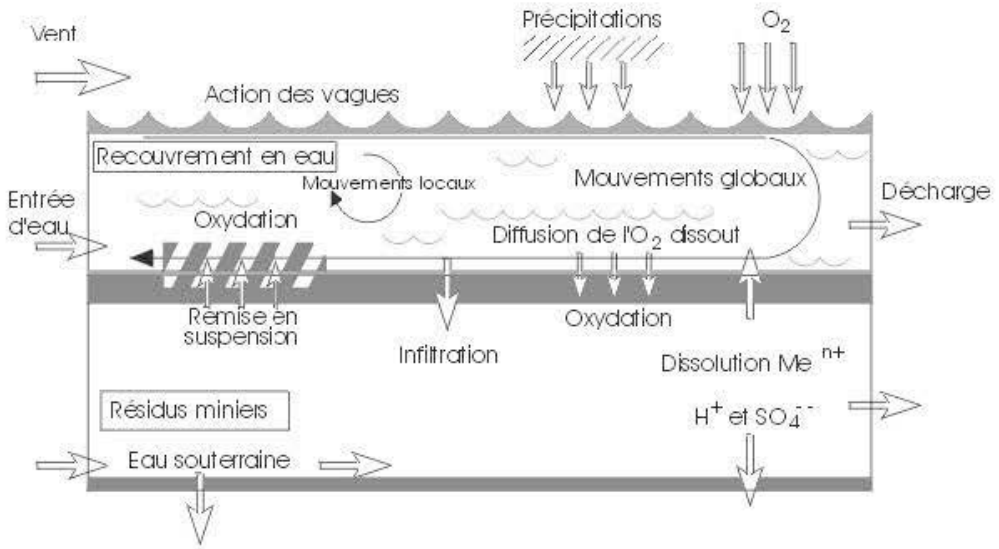


Figure 2.1 Facteurs pouvant affecter l'efficacité d'un recouvrement en eau (Adaptée de Li, Aubé et St-Arnaud, 1997 par Aubertin, Bussière et Bernier, 2002).

Sans inclure les apports et les pertes d'eau qui contrôlent l'épaisseur du recouvrement d'eau, les facteurs principaux sont les suivants :

1. le transport de l'oxygène ;
2. l'érosion et de remise en suspension des particules; et
3. le relargage des métaux dissous.

Ces différents processus sont décrits dans ce qui suit.

2.2 Transport de l'oxygène dans un recouvrement en eau

2.2.1 Sources de l'oxygène

L'oxygène dissous dans les eaux du recouvrement peut provenir :

1. du transport de l'oxygène à travers les entrées (précipitations, ruissellement et infiltration des eaux souterraines) et les sorties d'eau (exfiltration des eaux souterraines),
2. du transfert d'oxygène à l'interface air–eau,
3. du transport vertical de l'oxygène à travers la colonne d'eau.

L'oxygène dissous dans les eaux du recouvrement peut être transporté vers l'eau interstitielle des résidus à l'interface eau–résidus (Figure 2-2).

Lorsqu'il existe une différence de concentration d'oxygène dissous entre l'eau de l'entrée et l'eau de recouvrement ainsi que l'eau du recouvrement et l'eau de sortie, les entrées et sorties d'eau peuvent affecter la concentration en oxygène de la couverture d'eau (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). Néanmoins, l'effet des entrées et sorties d'eau dans les systèmes de recouvrement en eau est généralement négligeable (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997).

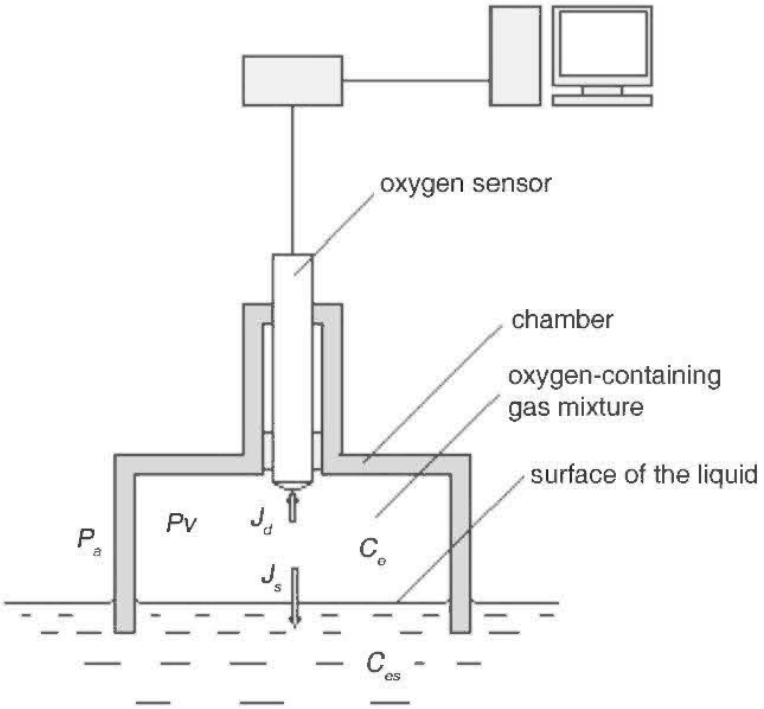


Figure 2.2 Modèle d'étude de l'oxygène de l'air vers l'eau (Tirée de Mölder, Mashirin et Tenno, 2005).

Le transfert d'oxygène à l'interface air–eau est fonction du gradient de concentration de l'oxygène entre les phases air et eau, de la température, de la turbulence (le brassage de l'eau attribuable à l'effet des vents), et du coefficient de transfert de l'oxygène entre l'air et l'eau (Liss, 1973; Li, Aubé et St-Arnaud, 1997; Lee, 2002; Schladow *et al.*, 2002; Mölder, Mashirin et Tenno, 2005). Ce coefficient dépend de la vitesse, de la durée et de la fréquence des vents (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). Des travaux ont été réalisés pour étudier le transport de l'oxygène à l'interface air–eau (Schladow *et al.*, 2002; Lee, 2002; Mölder, Mashirin et Tenno, 2005). Ces études, pour la plupart effectuées en laboratoire, ont permis de déterminer le taux de transfert d'oxygène à l'interface air–eau, de visualiser la quantité d'oxygène de l'air qui enrichit l'eau de même que les paramètres de diffusion de l'oxygène à travers l'interface air–eau. De façon générale, le transfert du flux d'oxygène à travers l'interface air–eau est décrit par l'équation suivante (Liss, 1973; Schladow *et al.*, 2002; Mölder, Mashirin et Tenno, 2005):

[2-1] $F_{e-s} = k_l (C_e - C_{es})$

Dans cette équation, F_{e-s} est le flux d'oxygène en mol/m^2/s, k_l est le coefficient de transfert de masse en m/s, et C_e et C_{es} sont respectivement les concentrations effectives de l'oxygène dans l'air à l'équilibre et dans l'eau (mol/m^3).

Mölder, Mashirin et Tenno (2005) ont effectué des essais dans une cellule de mesure spécialement construite, qui comprend une chambre contenant un capteur d'oxygène électrochimique placé au-dessus d'un réservoir d'eau pour simuler le transfert de l'oxygène de l'air vers l'eau (Figure 2.2). Dans cette chambre, Au temps t=0, la concentration d'oxygène dissous dans l'eau est éliminée par ajout d'une solution de sulfite de sodium. Cela crée un gradient d'oxygène entre l'eau et la chambre d'air, ce qui déclenche le transfert d'oxygène de la chambre d'air vers l'eau. Dans cette figure, J_d est le débit molaire d'O_2 consommé par la sonde d'oxygène (mol/s), Js est le débit molaire d'O_2 de la chambre d'air vers l'eau(mol/s), Pa est la pression atmosphérique (Pa). Et P_v est la pression du mélange de gaz (Pa). La diminution de la concentration d'oxygène dans la cellule au fil du temps a été mesurée (Figure 2.3). Selon cette étude, le débit molaire d'oxygène à travers une section J peut s'écrire de la manière suivante :

[2-2] $$J = \left[S_d \left(\frac{P_d}{l_d} \right) + S_s \left(\frac{P_s}{l_s} \right) \right] C_e - S_s \left(\frac{P_s}{l_s} \right) C_{es}$$

Dans cette équation, S_d est la section de la couche de diffusion du senseur d'oxygène (m^2), P_d est la perméabilité de la couche de diffusion du senseur d'oxygène (mol/m.s.Pa), l_d est l'épaisseur de la couche de diffusion de la membrane du senseur d'oxygène (m) et C_e est la concentration de l'oxygène dans la chambre, considérée égale à la pression partielle de l'oxygène dans la chambre (J/m^3). S_s est la superficie du liquide (m^2), P_s est la perméabilité de la couche superficielle du liquide (mol/m.s.Pa), l_s est l'épaisseur de la couche superficielle du liquide (m) et C_{es}, est la concentration de l'oxygène dans l'eau (J/m^3). Dans cette équation,

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

la perméabilité de diffusion P est définie comme D/l, où D est le coefficient de diffusion. Le seul paramètre inconnu dans cette équation est P_s/l_s.

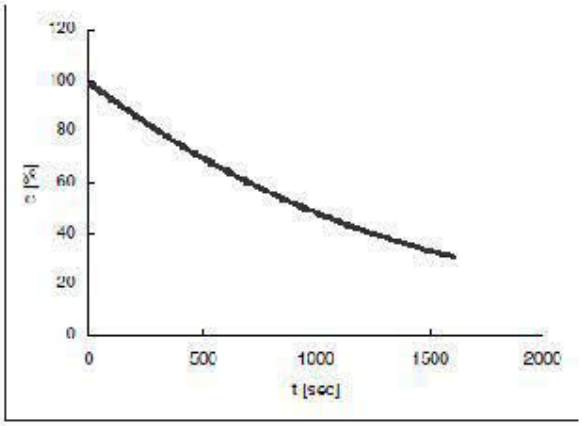


Figure 2.3 Diminution de l'oxygène à saturation dans la chambre d'air ((Tirée de Mölder, Mashirin et Tenno, 2005).

En condition transitoire, la variation de l'oxygène dans la chambre avec le temps est donnée par la relation suivante :

$$[2\text{-}3]\quad \frac{dC_e}{dt} = -\frac{RT}{V_0}\frac{(P_a - C_e)^2}{P_a(P_a - C_{e,o})}\left\{\left[S_d\left(\frac{P_d}{l_d}\right) + S_s\left(\frac{P_s}{l_s}\right)\right]C_e - S_s\left(\frac{P_s}{l_s}\right)C_{es}\right\}$$

R est la constante de gaz parfait (J/mol.K), T est la température (°K) et V_0 est le volume de la chambre d'air (m^3), P_a est la pression atmosphérique (Pa) et C_{e0} est la concentration initiale d'oxygène dans la chambre (au temps t = 0).

La comparaison des mesures expérimentales de la concentration d'oxygène et des concentrations calculées (à l'aide de l'équation 2-3) à n'importe quel temps donné t permet de calculer le paramètre de diffusion de l'oxygène P_s/l_s. Ce paramètre est ensuite utilisé pour calculer le flux avec l'équation 2-2. En comparant ce flux à celui obtenu par l'équation 2-1, on obtient alors le coefficient de transfert de masse k_1 pour les conditions de l'essai.

Malheureusement, cette approche ne peut pas être appliquée sur le terrain pour un recouvrement exposé à l'atmosphère et k_l reste difficile à déterminer. En effet, dans un recouvrement en eau, la variation de la concentration d'oxygène dissous dans l'eau dépend également de la diffusion d'OD de l'eau vers les résidus miniers sulfureux qui consomment l'OD, Cela rendrait complexe les équations décrivant ce phénomène.

Le transport vertical de l'oxygène dissous (OD) à travers la colonne d'eau au-dessus des résidus dépend de la diffusion moléculaire, de l'infiltration des eaux (advection) et du degré de brassage d'eau causé par les vents. Les vents produisent des mouvements locaux qui se manifestent sous forme de vagues et de tourbillons, et des mouvements globaux qui se traduisent par un courant de faible vitesse sur l'ensemble du réservoir. Parmi tous ces mouvements, les plus importants sont les mouvements locaux et l'infiltration, car ils affectent de façon significative l'efficacité du recouvrement en saturant les eaux au-dessus des résidus en oxygène dissous (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). Le transport vertical de l'oxygène dissous à travers la colonne d'eau a été étudié par plusieurs auteurs (Berg, Risgaard-Pertersed, et Rysgaard, 1998; Holmström et Öhlander, 1999; Elberling et Damgaard, 2001; Vigneault *et al.*, 2001; Lorke *et al.*, 2003). Mais, la plupart de études réalisées portent sur la diffusion de l'oxygène dans des rejets déposés sous l'eau sur le terrain et au laboratoire (Rescan, 1996; Davé *et al.*, 1997; Holmström et Öhlander, 1999; Vigneault *et al.*, 2001; MEND, 2001) et également à l'aide de modèles mathématiques et numériques (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997; Berg, Risgaard-Pertersed, et Rysgaard, 1998; Catalan, 1998; Li, Catalan et St-Germain, 2000; Elberling et Damgaard, 2001).

Ce transport de l'oxygène dissous dans les résidus submergés dépend du gradient de concentration d'oxygène à l'interface eau–résidus et dans les résidus, du coefficient du taux de réaction ou de consommation de l'oxygène par les résidus K_r, du coefficient de diffusion de l'oxygène dans les rejets D_e, et de la vitesse d'infiltration de l'eau. L'équation générale qui décrit la variation de la concentration d'oxygène dissous dans les résidus est donnée par la seconde loi de Fick modifiée (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). Dans le cas où l'oxydation des résidus est de 1er ordre, cette loi s'écrit comme suit:

Rapport-Gratuit.com

[2-4] $$D_e \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \pm v_z \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{\partial C}{\partial t} - K_r C = 0$$

Dans cette équation, C est la concentration d'oxygène dissous dans l'eau interstitielle (mol/m^3 ou g/m^3). Cette concentration est influencée par le degré de brassage de l'eau. D_e est le coefficient de diffusion effectif de l'oxygène dans les résidus (m^2/s), z est la profondeur sous l'interface eau–résidus (m), t est le temps après la déposition des résidus (s), K_r est le coefficient du taux de réaction ou de consommation de l'oxygène par les résidus en (s^{-1}) et v_z est la vitesse d'infiltration ascendante (-) ou descendante (+) des eaux dans les résidus (m/s).

L'oxydation des résidus submergés par l'oxygène dissous peut être décrite par une cinétique de ½ ordre (Holmes et Crundwell, 2000; Williamson et Rimstidt ,1994). Dans ce cas, la 2e loi de Fick s'écrit de la manière suivante :

[2-5] $$D_e \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \pm v_z \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{\partial C}{\partial t} - K_{r1/2} C^{0,5} = 0$$

Il faut souligner que plusieurs auteurs négligent l'effet de l'infiltration et considèrent v_z=0 dans les équations 2-4 et 2-5. Une fois la concentration C (z, t) obtenue à partir de l'équation 2-4 ou 2-5, le flux diffusif d'oxygène dans les résidus à la profondeur z et au temps t est donné par la première loi de Fick :

[2-6] $$F_{OD}(t, z) = -D_e \frac{\partial C(t, z)}{\partial z}$$

Il convient aussi de mentionner que les équations 2-4 et 2-5 s'écrivent de différentes manières selon la définition des paramètres D_e et K_r, particulièrement pour K_r qui est souvent exprimé en [T^{-1}], alors qu'en réalité c'est soit [M^{3}O$_2$ L^{-3}résidusT^{-1}] lorsque la quantité d'oxygène consommée ($K_r C$ dans l'équation 2-4 par ex.) est exprimée en termes de masse, volume ou mole d'oxygène par unité de volume des résidus et par unité de temps ou par unité

de masse des résidus et par unité de temps. Ces détails ne sont pas toujours précisés; on y reviendra au chapitre 3 pour présenter une équation qui tient compte de cette réalité.

Les équations 2-4 à 2-6 ne sont applicables que si les paramètres D_e et K_r des résidus sont connus. Diverses approches expérimentales ont été développées pour déterminer ces deux coefficients pour des résidus miniers partiellement saturés au laboratoire (e.g. Aubertin *et al.*, 1995; Aachib, Mbonimpa et Aubertin, 2004), et *in situ* (Rolston *et al.*, 1991; Mbonimpa *et al.*, 2002, 2003). Peu de mesures ont néanmoins été faites pour des résidus submergés. Par conséquent, le coefficient de diffusion D_e de l'oxygène dans les résidus submergés est souvent estimé comme suit (e.g. Yanful, Simms et Payant, 1999; Morin, 1993; Li, Aubé et St-Arnaud 1997; Catalan, 1998; Li et St-Arnaud 2000; Elberling et Damgaard, 2001) :

[2-7] $$D_e = \frac{D_W^0 n}{T_O}$$

Dans cette équation, n est la porosité des résidus, T_o est la tortuosité (T_o =5 pour les résidus) et D_W^0 est le coefficient de diffusion de l'oxygène dissous dans l'eau stagnante (environ 2×10^{-9} m²/s à 25° C).

Le coefficient du taux de réaction (K_r) a été déterminé à partir du taux ou vitesse d'oxydation des résidus (R_M) obtenu à partir des tests en flacons agités (Catalan, 1998) ou en cellules humides (Li et St-Arnaud, 2000). Ces méthodes sont décrites dans ce qui suit.

Catalan (1998) a estimé le coefficient K_r à partir des tests en flacons agités. Ces tests furent réalisés avec de résidus Gallen (76,2% de pyrite). Trois flacons agités contenant les ratios liquide/solide de 100, 500 et 2000 ont été mis en place avec un pH préalablement ajusté à 11. Chaque ratio a été dupliqué et l'essai s'est étendu sur 28 jours. Catalan (1998) a d'abord déterminé des vitesses d'oxydation des résidus (R_M) exprimées en nmol SO_4^{2-}/kg/s pour chaque ratio à deux valeurs de pH (Tableau 2.1).

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Tableau 2.1Vitesses d'oxydation mesurées pendant les tests en flacons agités (Tiré de Catalan, 1998)

N° duplicata	Ratio liquide/solide	R_M (nmol SO_4^{2-}/kg/s) pH<3,5	6,5<pH<8
1	100	311	ND
2	100	176	ND
1	500	53	887
2	500	110	1026
1	2000	ND[x]	730
2	2000	ND	712
	Moyenne	217	839

[x]ND : Non donné

Ces vitesses d'oxydation représentent les vitesses de production des ions sulfates en solution, qui sont estimées à partir des pentes des droites représentant les productions des sulfates en fonction du temps. Les productions de sulfates sont calculées à partir des analyses élémentaires du soufre, en supposant que l'oxydation des sulfures est l'unique source de sulfate supplémentaire dans les flacons après le rinçage initial des résidus, qui a lieu durant le premier jour des tests. Une fois les vitesses de production des sulfates obtenues, la constante de vitesse d'oxydation, qui représente le coefficient du taux de réaction pour une réaction de premier ordre, a été déterminée à partir de la relation suivante :

[2-8] $$\frac{\partial C}{\partial t}_{ox} = K_r C = \frac{15}{8}\frac{(1-n)\rho_s}{n}10^{-9} R_M$$

Dans cette équation, $\frac{\partial C}{\partial t}_{ox}$ est la consommation d'oxygène due à l'oxydation des résidus (mol $O_2/m^3/s$), C est la concentration d'oxygène dissous dans l'eau interstitielle en mol/m^3, K_r est la constante de vitesse d'oxydation ou coefficient du taux de réaction en s^{-1}, n est la porosité des résidus et ρ_s est la densité spécifique des résidus en kg/m^3. Le coefficient du taux de réaction K_r est alors donné par (Catalan, 1998) :

[2-9] $$K_r = -\frac{15}{8}\frac{(1-n)\rho_s}{nC}10^{-9} R_M$$

On peut penser que cette technique surestime la vitesse d'oxydation des résidus, car l'agitation des flacons peut accélérer l'oxydation des résidus sulfureux. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle le taux de production de sulfate obtenu des flacons agités a déjà été utilisé pour estimer la masse de sulfates générée par les résidus remis en suspension sous un recouvrement en eau (Yanful et Mian, 2003; Samad et Yanful, 2005). Ce taux ne semble pas être représentatif du taux de production de sulfate attribuable à l'oxydation des résidus stables (non remis en suspension). Il donne néanmoins une limite supérieure de ce taux. Il convient de constater que pour un même ratio liquide/solide, la vitesse d'oxydation des résidus R_M est plus élevé en conditions neutres que acide; la différence dépassant un ordre de grandeur.

Li et St-Arnaud (2000) ont à leur tour déterminé K_r à partir de tests en cellules d'humidité. Quatre tests en cellule d'humidité dupliqués ont été mis en place de septembre 1995 à mars 1997. Chaque cellule contenait 200 g de résidus et 200 mL d'eau. Les résidus provenaient de la mine Louvicourt et contenaient 30 à 45% de pyrite. Le lixiviat était récupéré chaque semaine pour l'analyse des paramètres physico-chimiques et l'analyse élémentaire. À partir des concentrations de sulfate produit chaque semaine, le taux de production total de sulfate a été déterminé. Connaissant le taux de sulfate produit et en supposant que chaque mole de pyrite oxydée consomme 3,5 moles d'oxygène dissous, $\left|\partial C/\partial t\right|_{ox}$ dans l'équation 2-8 a été exprimé comme suit :

$$[2\text{-}10] \quad \frac{\partial C}{\partial t}_{ox} = \frac{3.5}{V_p}\frac{\partial Q_{py}}{\partial t} = K_r C$$

V_p est le volume des pores associé à la réactivité de la pyrite en m^3 et Q_{py} est la quantité de pyrite réactive en mol.

Cette équation est ensuite ramenée à la surface totale de la pyrite A_{py}, ce qui permet d'obtenir, après réaménagement, l'équation de K_r suivante :

[2-11] $K_r = 3.5 \frac{A_{py}}{V_p} \frac{R_M}{C}$

$A_{py}=(1-n)V_{tot}\rho_{res}a_{py}$, où V_{tot} est le volume total des résidus, ρ_{res} est la densité moyenne des résidus (kg/m^3), a_{py} est la surface spécifique de la pyrite (m^2/kg de résidus) et n est la porosité. $R_M = \partial Q_{py}dt/A_{py}$ est la vitesse d'oxydation des résidus ou la vitesse de production des sulfates (exprimée ici en mol/m^2/s).

Les essais en cellule humide résultent d'un cycle de séchage et de mouillage. De plus, la cellule est exposée à l'air ambiant, ce qui peut accélérer l'oxydation des résidus miniers. Le taux de réaction obtenue avec cette technique semble de ce fait ne pas être représentatif pour des résidus sous un recouvrement en eau.

Compte tenu de la difficulté d'obtenir la valeur K_r, plusieurs auteurs établissent des profils d'oxygène dissous et déterminent le flux d'oxygène dissous à l'aide de la première loi de Fick, que ce soit sur le terrain ou au laboratoire. Dans ce qui suit, les principaux travaux relatifs à l'étude de la migration de l'oxygène dans les recouvrements en eau placés sur les résidus sont décrits. Des informations spécifiques additionnelles sont données dans l'article du chapitre 3.

2.2.2 Travaux de laboratoire

Davé *et al.* (1997) ont étudié la diffusion de l'oxygène à l'interface eau–résidus dans des colonnes lysimétriques au laboratoire. Cette étude a été effectuée sous trois conditions de couverture d'eau et de brassage d'eau : 1) 0,5 m d'eau sans brassage de la couverture d'eau; 2) 1 m d'eau sans brassage de la couverture d'eau; 3) 1 m de couverture d'eau avec brassage de la couverture d'eau. Cinq catégories de résidus ont été utilisées dans cette étude : des rejets du concentrateur non oxydés, des rejets du concentrateur fins et non-oxydés, des rejets contenant de la pyrrhotite non-oxydée, des rejets du concentrateur partiellement oxydés, des rejets du concentrateur partiellement oxydés et friables, des roches stériles partiellement oxydées et friables. Deux types de barrières à l'oxygène d'une trentaine de centimètres,

placées sur les résidus et constituées de résidus peu sulfureux et de compost municipal, ont été également étudiés. Les résidus utilisés provenaient de la mine de nickel et d'or INCO's-Coppercliff à Sudbury et les roches stériles partiellement oxydées de la mine d'or Doyon au Québec. Les résidus non-oxydés et partiellement oxydés et friables contenaient environ 3% de soufre, alors que les rejets contenaient environ 10% de pyrrhotite et 4% de soufre pour les roches partiellement oxydées et friables. Au total, 10 combinaisons ont été mises en place dans des colonnes. Les colonnes avaient une hauteur totale de 2,2 m, dont 1 m à partir de la base était rempli de rejets unique ou composite. Trente ports d'échantillonnage ont été repartis tout le long de chaque colonne. Des échantillons d'eau des différents points d'échantillonnage, placés dans l'eau du recouvrement et dans les résidus ont été récupérés avec des seringues d'injection, et les concentrations d'oxygène dissous mesurées avec des sondes d'oxygène dissous pour établir le profil d'oxygène dissous.

Dans le cas des colonnes sans couche de protection (barrière à l'oxygène), les résultats ont montré des gradients de concentration d'oxygène dissous autour de 125 g/m^4 à l'interface eau–résidus pour les divers matériaux utilisés. Le flux calculé à partir de ce gradient de concentration était de 7,9 $gO_2/m^2/an$ ou 22 $mgO_2/m^2/j$. Les auteurs ont aussi constaté que les concentrations de l'oxygène dissous dans les eaux interstitielles des rejets ont diminué rapidement à l'intérieur de 10 cm à partir de l'interface eau–rejets pour toutes les combinaisons étudiées. Dans le cas des colonnes avec couche de protection faite de résidus peu sulfureux ou de compost municipal, en plus de la couverture d'eau, l'oxygène dissous a été consommé par ces couvertures, et l'accès de l'oxygène dans les rejets sous-jacents a été empêché.

Holmström et Öhlander (1999) ont réalisé une étude sur la pénétration de l'oxygène à travers le recouvrement en eau du site Stekenjokk (d'une superficie de 110 ha), situé au nord de la Suède au niveau de deux stations. L'épaisseur du recouvrement en eau variait entre 0,6 à 9 m, avec une épaisseur moyenne autour de 2 m. Les résidus contenaient 35% de minéraux sulfureux, principalement de la pyrite (mais avec présence de chalcopyrite, sphalérite, pyrrhotite, et galène). Deux carottes de résidus non remaniés ont été prélevées sous le

recouvrement en eau aux deux stations, à l'aide d'un dispositif de carottage par gravité de 85 mm de diamètre. La carotte à la station 1 avait 26 cm de longueur et était oxydée. La carotte à la station 2 avait, quant à elle, 12 cm de longueur et était partiellement oxydée. Les épaisseurs du recouvrement en eau au niveau des stations 1 et 2 étaient respectivement de 9 m et 2 m. L'examen des carottes a montré qu'une couche de matière organique cohérente de 0,5 cm d'épaisseur s'était formée au-dessus des résidus ennoyés. Des profils d'oxygène dissous ont été réalisés dans les carottes à l'aide de microélectrodes au laboratoire. Ces microélectrodes avaient un diamètre inférieur à 10 µm, avec un temps de réponse de 1 s, pour atteindre 90% de la valeur finale, et elles étaient montées sur des micromanipulateurs. Les concentrations d'OD étaient mesurées à un intervalle de 1 mm, et deux profils furent établis pour chacune des carottes. Les résultats des profils d'oxygène dissous montraient qu'à la station de mesure 1 comme à la station 2, les concentrations d'oxygène dissous variaient de 14 mg/L à 10 mg/L à l'interface de la couche de matière organique et des résidus (Figure 2.4). Pour la carotte de la station 1, l'oxygène avait pénétré dans les résidus jusqu'à une profondeur comprise entre 11 à 17 mm. Dans la carotte de la station 2, l'oxygène avait pénétré jusqu'à des profondeurs de 14 à 17 mm. Les profils d'oxygène dissous montraient que les eaux interstitielles à l'interface eau–résidus étaient saturées en l'oxygène dissous, et que la consommation réelle d'oxygène avait lieu dans les résidus en dessous de la faible couche organique.

Elberling et Damgaard (2001) ont effectué des essais de diffusion et de consommation d'oxygène au laboratoire sur des résidus provenant de la mine Nanisivik au nord du Canada. Le but de cette étude était d'évaluer les taux de consommation d'oxygène dans les résidus sulfureux d'âges différents. Les résidus frais (non oxydés) contenaient 70 à 85% de pyrite alors que les résidus oxydés (résidus exposés à l'atmosphère pendant plusieurs années) comportaient 40 à 75% de pyrite. Des profils d'oxygène dissous ont été déterminés à petite échelle au laboratoire dans des colonnes remplies de résidus miniers non remaniés et recouverts d'eau à température contrôlée. Un courant d'air était soufflé sur la surface de l'eau pour assurer son mélange.

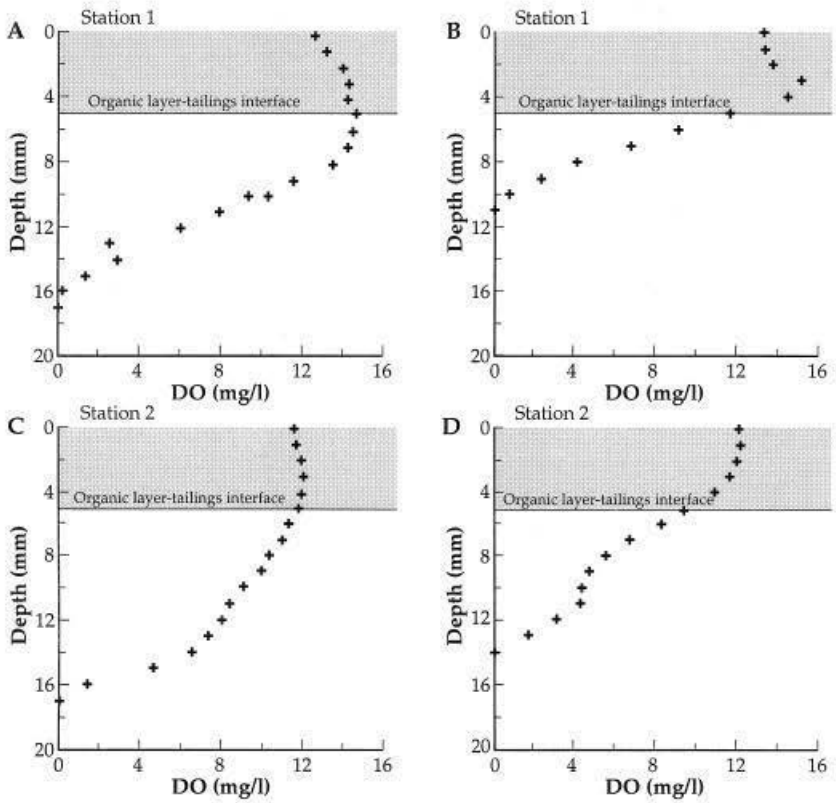


Figure 2.4 Profils d'oxygène dissous dans les carottes des stations 1 (a et b) et 2 (c et d) (Tirée de Holmström et Öhlander, 1999).

Les concentrations d'oxygène dissous dans les résidus saturés et dans l'eau au-dessus des résidus furent déterminées par des micro-senseurs d'oxygène de type Clark OX10 de Unisense (Danemark). Les résultats (Figure 2.5) montraient que les concentrations d'oxygène dissous étaient d'abord constantes dans l'eau du recouvrement (démontrant que le réservoir était bien mélangé), mais diminuaient ensuite linéairement sur une faible couche d'eau de 0,5 mm, juste au-dessus des résidus correspondant à la couche limite de diffusion (diffusive boundary layer). Le profil linéaire de concentration d'oxygène dissous dans cette couche donnait un flux d'oxygène dissous de 35 ± 4 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 120 ±128 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus oxydés et de 40 ± 6 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 280 ±192 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus frais. Enfin, l'oxygène a été consommé rapidement et épuisé à une profondeur de 1,7 mm dans les

résidus (Figure 2.5). La courbe simulée de concentration d'oxygène dissous et la courbe d'oxygène consommé qui apparaissent sur cette figure sont expliquées plus loin.

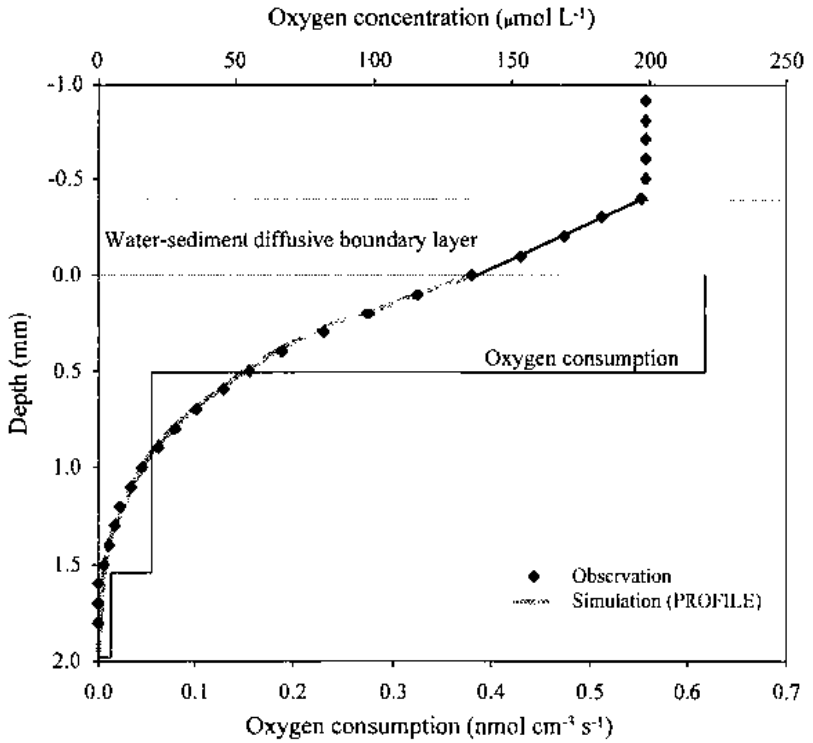


Figure 2.5 Micro-profil et taux net de consommation de l'oxygène dissous dans les résidus préoxydés submergés (Tirée de Elberling et Damgaard, 2001).

Blanchette *et al.* (2001) ont étudié la diffusion de l'oxygène et le rôle de la couverture d'eau dans le contrôle de la disponibilité de l'oxygène dissous dans les résidus disposés sous l'eau. Des essais en colonnes ont été effectués au laboratoire avec des résidus de la mine Louvicourt située près de Val-d'Or en Abitibi-Témiscaminque (Québec), contenant de la pyrite (30 à 50%) comme sulfure principal. Les profils d'oxygène dissous ont été établis pour quatre séries de trois colonnes identiques (d'un diamètre intérieur de 30 cm) :

1. Série 1 : couverture d'eau de 30 cm placée directement sur les résidus;
2. Série 2 : couverture d'eau de 30 cm placée sur nne couche intermédiaire de tourbe disposée sur les résidus;

3. Série 3 : couverture d'eau de 30 cm mise en place sur une couche intermédiaire de sable de 30 cm disposée sur les résidus; et
4. Série 4 : couverture d'eau de 1 m au-dessus des résidus.

Chaque série simulait un scénario différent de la déposition subaquatique. La configuration des colonnes est présentée au Tableau 2.2. Les essais en colonnes comportaient deux phases principales. La phase I s'était étendue sur 200 jours; elle portait surtout sur la diffusion d'oxygène et des flux ioniques dans une couverture aqueuse avec circulation. Au cours des 100 premiers jours, l'eau de la couverture aqueuse était recirculée en circuit fermé, sans être aérée. Pendant les 100 derniers jours, la couverture aqueuse était recirculée et aérée. Les colonnes étaient munies de ports d'échantillonnage et des pompes péristaltiques permettant d'obtenir des échantillons d'eau à un débit maximum de 5 mL/min et minimal de 0,5 mL/min. Les concentrations d'oxygène dissous étaient mesurées directement dans une cellule placée à la sortie de chaque pompe à l'aide d'un senseur d'oxygène (modèle Orion). La phase II s'était étalée, quant à elle, sur une période de 13 mois; elle portait sur l'étude des répercussions des précipitations, du ruissellement et du rabattement à des taux semblables à ceux observés sur le terrain sur la chimie de la couverture aqueuse et des eaux interstitielles. Les résultats de cette partie sont présentés dans la partie relargage des métaux et géochimie des eaux (section 2.4). Les résultats de la phase 1 ont montré qu'initialement (du jour 0 au jour 7), les concentrations d'oxygène dissous étaient très près de l'état de saturation dans les couvertures d'eau (environ 9 mg/L à 20°C). Aucun gradient significatif d'oxygène dissous n'a ainsi été établi dans la couverture d'eau au-dessus de l'interface eau–résidus ou eau-sable/tourbe. Pour tous les scénarios étudiés, les mesures ultérieures (du jour 7 au jour 70) ont par contre indiqué une baisse dans le temps de l'oxygène dissous dans la couverture d'eau (de 9 à 0,2 mg/ L ou sous la limite de détection) et dans les résidus. Les diminutions des concentrations d'OD dans les couvertures d'eau et dans les résidus les plus significatives ont été observées dans les séries 1 et 4 sans couche de protection (barrière à l'oxygène). Dans les résidus, l'oxygène a été consommé rapidement dans les premiers millimètres. Les flux d'oxygène dissous consommés sont calculés à l'aide de la première loi de Fick en régime permanent, et les résultats sont présentés au tableau 2-2.

Rapport-Gratuit.com

Les résultats montraient que le flux d'oxygène consommé dans le cas du scénario 3 avec une couche de 30 cm de sable était paradoxalement comparable à celui des résidus sous une couverture directe d'eau de 30 cm et de 1 m (séries 1 et 4). Dans la tourbe, le taux de consommation était plus faible, ce qui reflétait une pénétration d'oxygène plus profonde (Blanchette *et al.*, 2001). Il a également été remarqué que la tourbe consommait moins d'oxygène que le sable, ce qui semblait surprenant, mais une explication possible était que la tourbe utilisée avait atteint une étape avancée d'oxydation. De plus, le sable utilisé a été échantillonné à l'intérieur du site. Des particules fines de sulfure pourraient avoir été déposées sur le dépôt de sable par le transport atmosphérique (érosion éolienne ou pluviale). L'oxydation ultérieure de ces particules contenues dans le sable pourrait avoir provoqué la haute consommation d'oxygène observée.

Tableau 2.2 Flux d'oxygène dissous consommé calculé sur la base des profils d'oxygène dissous observés dans les colonnes expérimentales en condition stationnaire (Adapté de Blanchette *et al.*, 2001)

Série	Scénarios de déposition subaquatique	Flux d'O_2 ($gO_2/m^2/an$)	Flux d'O_2 ($mgO_2/m^2/j$)
1	Résidus recouverts par une couverture d'eau de 30 cm, mélangée et maintenue près du niveau de saturation d'oxygène dissous	5,7	16
2	Résidus recouverts par une couche de 30 cm de tourbe sous une couverture d'eau de 30 cm d'épaisseur, mélangée et saturée en OD	3,8	10
3	Résidus couverts par une couche de 30 cm de sable et recouverts par une couverture d'eau de 30 cm, mélangée et saturée en OD	6	16
4	Résidus recouverts par une couverture d'eau profonde de 1,0 m, mélangée et maintenue près du niveau de saturation d'oxygène dissous	6,3	17

2.2.3 Travaux de terrain

Dans son étude sur l'évaluation géochimique du recouvrement en eau du site Equity Silver à Houston en Colombie-Britannique, Rescan (1996) a mesuré les concentrations d'oxygène dissous dans la couverture d'eau au-dessus des résidus et dans des eaux interstitielles les résidus. Les résidus miniers étaient submergés en moyenne de 4,3 m d'eau et ils étaient

composés de pyrite (5 à 10%), d'arsenopyrite et de pyrrhotite. La couverture d'eau avait une superficie de 120 ha. Les mesures ont été réalisées à deux endroits de la couverture : le premier à un point où la couverture d'eau était peu profonde (1,8 m) et le second à un point où la couverture était profonde (5 m). Les mesures ont été effectuées à l'aide de mini-électrodes d'oxygène dissous insérées au travers de la membrane d'un dialyseur enfoncé à travers l'interface eau–résidus. Les résultats ont montré que les concentrations d'oxygène dissous dans l'eau proche de l'interface eau–résidus étaient autour de 5 mg/L aux deux points de mesure. Ces concentrations diminuaient par la suite à travers l'interface eau–résidus jusqu'à atteindre les valeurs proches de zéro à partir de 6 à 7 cm. Les flux d'oxygène ont été évalués respectivement à 30,7 $mgO_2/m^2/j$ et 14 $mgO_2/m^2/j$ aux sites peu profonds et profonds.

Dans le recouvrement en eau de Stekenjokk au nord de la Suède, Holmström et Öhlander (1999) ont réalisé des profils de concentration d'oxygène dissous *in situ* par des plongeurs. Quelques caractéristiques du site sont données à la section 2.2.2. Les profils d'oxygène dissous ont été effectués à deux profondeurs de la couverture d'eau de 110 ha, qui étaient respectivement de 9 m à la station 1 et de 2 m à la station 2. Les résultats des profils d'oxygène dissous montraient que les concentrations d'oxygène dissous étaient homogènes à travers la couverture, avec des valeurs autour de 11,4 mgO_2/l à une température autour de 4°C. Ceci indiquait que le recouvrement en eau était bien mélangé au moment des mesures.

Elberling et Damgaard (2001) ont réalisé six profils d'oxygène dissous à micro-échelle (intervalle de 0,1 mm) sur un secteur de 5 cm^2 du recouvrement en eau de Nanisivik, au nord du Canada. Ces profils ont été établis à travers une couche d'eau de 10 cm recouvrant des résidus miniers sur 10 jours, au mois d'août 2000. Les profils de concentration d'oxygène dissous ont été mesurés avec des micro-senseurs d'oxygène contrôlé manuellement par un micromanipulateur. Les résultats des six profils d'oxygène dissous mesurés ont montré un profil linéaire des concentrations D'OD (R^2=0,99) dans la couche limite de diffusion (Diffusive boundary layer) au-dessus de l'interface eau–résidus. En tenant compte de la température (14°C) et de la salinité de l'eau (0,3%) sur cette période, le flux moyen d'OD a été évalué à 35 ± 4 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 120 ±128 $mgO_2/m^2/j$. Ce flux était identique à celui

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

déterminé à partir des profils obtenus à micro-échelle au laboratoire sur des échantillons non-remaniés prélevés sur ce site (section 2.2.2). Les résultats du laboratoire étaient donc représentatifs des conditions de terrain.

Dans une étude sur les changements géochimiques des rejets miniers sulfureux entreposés sous l'eau, Vigneault *et al.* (2001) ont déterminé des micro-profils d'oxygène dissous dans des résidus miniers frais submergés par 30 cm d'eau dans des cellules expérimentales de recouvrement en eau de terrain (21×21×3 m). Les résidus miniers frais provenaient de la mine souterraine (de Cu et Zn) de Louvicourt, située à 20 km à l'est de Val-d'Or, Québec, Canada. Les résidus étaient composés de sulfure, de silicate et d'oxyde. Le principal sulfure était la pyrite (30 à 50%) avec la chalcopyrite, la sphalérite et la galène dans des quantités en trace. Cette étude avait pour but d'évaluer l'efficacité d'une couverture d'eau peu profonde dans la réduction de l'oxydation de résidus miniers sulfureux et ainsi de prévenir le développement du DMA. Les micro-profils d'oxygène dissous ont été établis à l'aide de microélectrodes de type Clark contrôlées par un micromanipulateur submersible. Ces profils d'oxygène dissous ont montré l'épuisement d'oxygène après seulement quelques millimètres (<7 mm) à partir de l'interface eau–résidus. La consommation d'oxygène dissous calculée était de 1,7 (±0,2)×10^{-3} nmolO_2/cm^2/s ou 47 (±5) mgO_2/m^2j. Cette valeur était environ 2 000 fois plus faible que dans des échantillons des mêmes résidus humides exposés à l'air dans les tests en cellules humides où la consommation était de 3,6 nmolO_2/cm^2/s ou 95 533 mgO_2/m^2/j.

2.2.4 Modélisations mathématiques

Des modélisations mathématiques ont également été effectuées pour étudier la diffusion de l'oxygène dans des résidus sous un recouvrement en eau (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997; Catalan, 1998; Li, Catalan, et St-Germain, 2000). Pour des conditions initiales et frontières simples, des solutions analytiques aux équations de diffusion et consommation de l'oxygène à travers les résidus submergés ont été développées pour des cinétiques de réactions de 1er et de demi-ordre (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997; Catalan, 1998; Li, Catalan, et St-Germain, 2000; Li et St Arnaud, 2000). Ces solutions sont présentées selon plusieurs scénarios.

Li, Aubé et St-Arnaud (1997) et Li et St-Arnaud (2000) ont modélisé quatre scénarios de base qui pouvaient se présenter après la déposition des résidus réactifs du site Louvicourt sous une couverture aqueuse de 30 cm. Ces quatre scénarios sont présentés au tableau 2.3. Les coefficients de diffusion effectif (D_e) et du taux de réaction (K_r) étaient respectivement de $1{,}04\times10^{-10}$ m^2/s et de $2{,}6\times10^{-4}/s$. D_e a été estimé à partir de l'équation 2-7. Le coefficient K_r a été déterminé à partir du taux d'oxydation des résidus obtenu dans des tests en cellule d'humidité. Dans tous ces scénarios, il a été assumé que la concentration initiale (t=0) dans toute la colonne d'eau était constante et égale à 11,3 mg/L. Pour la couverture aqueuse stagnante, une concentration d'oxygène dissous nulle (C=0) a été considérée pour t>0 à l'interface eau–résidus. Pour les autres couvertures agitées, les concentrations d'oxygène de 11,3 mg/L ont été imposées pour t>0 (ce qui est logique pour un recouvrement bien mélangé). Dans tous les cas, les flux d'oxygène à l'interface eau–résidus ont diminué en fonction du temps jusqu'à atteindre les valeurs données dans le tableau 2.3 à l'état stationnaire.

Tableau 2.3 Différents scénarios de recouvrement en eau, flux stationnaire et masse cumulative d'oxygène dissous consommés (Adapté de Li et St-Arnaud, 2000)

Scénarios de recouvrement	Flux d'O_2 ($gO_2/m^2/an$)	Flux d'O_2 ($mgO_2/m^2/an$)	Masse cumulative O_2 consommée en 350 jours (gO_2/m^2)
Couverture aqueuse stagnante	0,9	3	3,1
Couverture aqueuse totalement oxygénée et mélangée sans infiltration	34,2	94	56,2
Couverture aqueuse totalement oxygénée et mélangée avec infiltration vers le bas à une vitesse de 1m/an	40,3	110	66,2
Couverture aqueuse avec remise en suspension des résidus de 2 mm	ND[x]	ND	71,7

[x]: Non donné

Les résultats (Tablean 2.3, Figure 2.6) ont montré que le scénario de la couverture aqueuse stagnante a été celui qui a transporté la plus faible quantité d'oxygène vers les résidus submergés (de l'ordre de 3,1 gO_2/m^2 an bout de 350 jours). Cependant, il était rare de retrouver ces conditions de couverture aqueuse stagnante sur le terrain; il y avait presque toujours du vent qui pouvait mettre en mouvement la couverture aqueuse. Le mélange/oxygénation de la couverture aqueuse, l'infiltration vers le bas de l'ean entièrement aérée et la remise en suspension de résidus paraissaient donc plus réalistes. Cependant, elles étaient capables d'accroître le flux de diffusion de l'oxygène (Li et St Arnand, 2000).

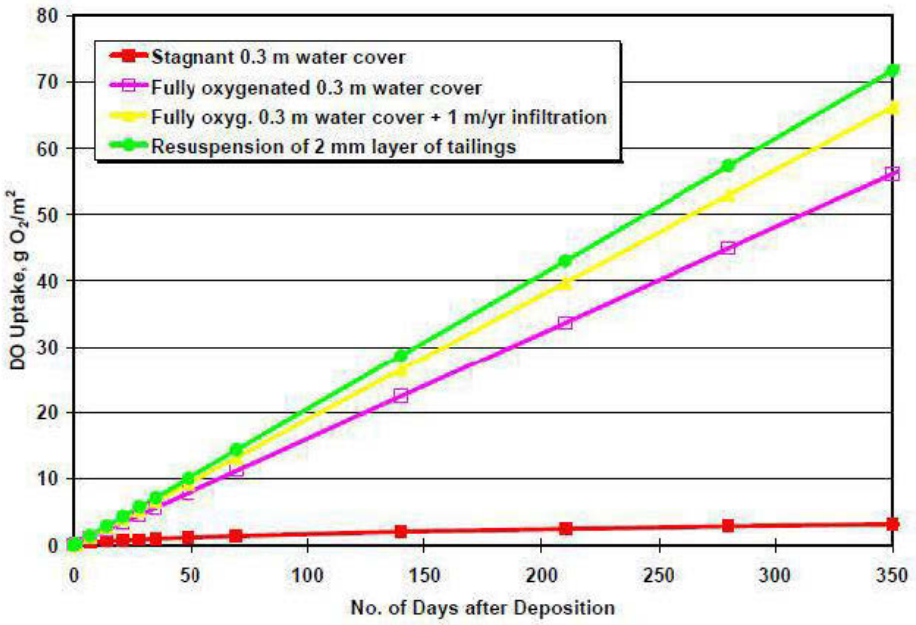


Figure 2.6 Comparaison de la consommation d'OD pour 4 scénarios différents de recouvrements en ean (Tirée de Li et St Arnand, 2000).

Catalan (1998) a également effectué des modélisations de la migration de l'oxygène à travers la couverture aqueuse de la fosse de Don Rouyn près de Rouyn-Noranda en Abitibi-Témiscamingue (Québec), pour une période de 7 mois, au cours de laquelle la couverture d'ean n'était pas couverte par une couche de glace. Cette couverture a été utilisée pour ennoyer les résidus de la mine Gallen (Rouyn-Noranda, Qc). Ces résidus étaient très sulfureux, avec principalement 76% de pyrite et quelques traces de sphalérite (1%). La

superficie inondée est d'environ 7,7 ha. En utilisant ce site de recouvrement en eau comme modèle conceptuel, Catalan (1998) a simulé quatre scénarios présentés au tableau 2.3. Les coefficients de diffusion effectif (D_e) et du taux de réaction (K_r) étaient respectivement de $1{,}25\times10^{-10}$ m^2/s et de $8{,}1\times10^{-3}$ s^{-1} pour une réaction de premier ordre. D_e a été calculé par l'équation 2-7 et K_r est obtenu à partir des vitesses d'oxydation mesurées lors des tests en flacons agités (Catalan, 1998). Le flux d'oxygène est obtenu par la résolution analytique de la seconde loi de Fick en régime permanent, en tenant compte des conditions initiales et des conditions frontières suivantes : (1) $C=0$ pour $t=0$ et pour $z>0$ (la concentration en oxygène dissous était initialement nulle dans l'eau interstitielle), et (2) $C=C_0$ pour $t>0$ et $z = 0$ (l'oxygène dissous à l'interface eau–résidus restait à saturation en tout temps). Les résultats (Tableau 2.4) ont indiqué que parmi les quatre scénarios présentés, celui incluant l'insertion d'une couche de matériaux non générateurs d'acide entre les résidus et la couverture aqueuse réduisait le flux d'oxygène à des valeurs extrêmement faibles. Cette couche avait pour avantage de contribuer à réduire efficacement le flux et à éviter la remise en suspension des particules de résidus et, par conséquent, les quantités d'acides produites. Les résultats ont aussi montré que la remise en suspension d'une couche de résidus, même mince, augmentait amplement la quantité d'oxydation des résidus dans la fosse.

Tableau 2.4 Scénarios de modélisations et résultats obtenus (comparaison des flux d'oxygène consommés par les résidus en condition stationnaire pour quatre scénarios étudiés pour une réaction d'ordre 1) (Adapté de Catalan, 1998)

Scénarios	Flux d'O_2 ($molO_2/m^2/s$)	Flux d'O_2 ($mgO_2/m^2/j$)
1- Couverture d'eau totalement oxygénée sans infiltration à l'interface eau–résidus	$3{,}55\times10^{-7}$	981
2- Couverture d'eau totalement oxygénée avec infiltration ascendante (vitesse de 0,028 m/an et 0,0081 m/an)	$3{,}55\times10^{-7}$	981
3- Couverture d'eau totalement oxygénée avec infiltration (vitesse de 0,028 m/an et 0,008 m/an) et remise en suspension des résidus d'une épaisseur équivalente de 2mm	$1{,}35\times10^{-6}$	3733
4- Couverture d'eau totalement oxygénée avec infiltration (v=0,028 m/an et 0,008 m/an) et présence d'une couche granulaire de 15 cm entre les résidus et la couverture hydrique	$2{,}94\times10^{-10}$	0,81

Certains auteurs ont aussi utilisé des modèles numériques pour étudier les profils de concentration d'oxygène dissous mesurés au laboratoire (Berg, Risgaard-Pertersed et Rysgaard, 1998; Elberling et Damgaard, 2001). Berg, Risgaard-Pertersed et Rysgaard (1998) ont développé un code numérique appelé PROFILE, pour analyser et interpréter des profils de concentration d'oxygène dissous dans les eaux interstitielles des sédiments marins (du Fjord de Skive, Danemark) et des sédiments du lac Vilhelmsborg (Danemark) contenant des microorganismes. PROFILE est un modèle numérique qui sert à calculer le taux net de consommation d'oxygène en fonction de la profondeur, en supposant que l'état permanent soit atteint. Cette approche menait à une sélection objective du profil de consommation d'oxygène le plus simple, qui reproduisait les profils de concentration d'oxygène dissous mesurés. Des carottes de 5,3 cm de diamètre de sédiment marin et de sédiment de lac ont été prélevées sous l'eau par des plongeurs et ramenées immédiatement au laboratoire. Des profils d'oxygène dissous ont été mesurés à intervalle de 100 µm, à l'aide d'une électrode de type Clark. Ces profils d'oxygène dissous ont servi par la suite comme données d'entrée pour la modélisation numérique avec le code PROFILE. Ce modèle supposait que le profil de concentration en fonction de la profondeur avait atteint l'état stable. Ainsi, le taux net de production ou de consommation d'oxygène dissous et le flux diffusif pouvaient être calculés à l'interface eau–sédiment. Berg, Risgaard-Pertersed et Rysgaard (1998) ont obtenu, à l'aide de ce code, une bonne concordance entre le profil d'oxygène dissous mesuré dans des sédiments marins à l'aide de microsenseurs de type Clark et celui calculé. Aussi, les flux d'oxygène dissous calculé et mesuré à l'interface eau–sédiment marin étaient respectivement autour de 447 ±29 µmolO_2/m^2/h ou 343 ±22 mgO_2/m^2/j, et 484 ±48 µmolO_2/m^2/h ou 372 ±37 mgO_2/m^2/j. Les flux d'oxygène dissous mesuré et calculé à l'interface eau–sédiment frais (eau douce), quant à eux, étaient autour de 785 et 792 µmolO_2/m^2/h ou 603 et 608 mgO_2/m^2/an. Ces résultats suggéraient une bonne correspondance entre les flux mesurés et calculés pour les deux types de sédiments.

Elberling et Damgaard (2001) ont également utilisé le code PROFILE (Berg, Risgaard-Pertersed et Rysgaard, 1998) pour analyser les profils de concentrations d'oxygène dissous

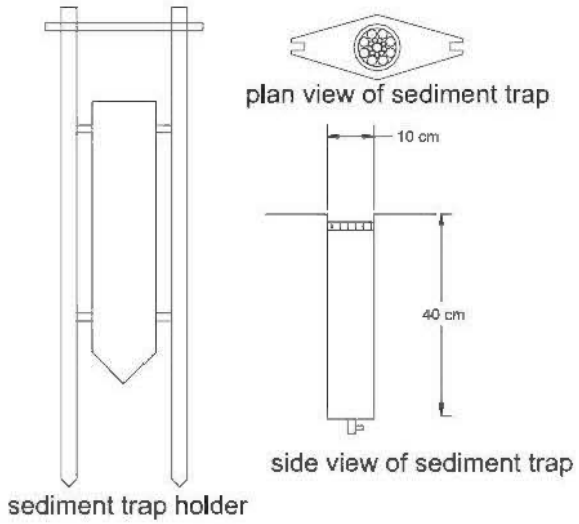
mesurés au laboratoire dans les résidus miniers sulfureux entreposés sous l'eau près de la mine Nanisvik dans le nord du Canada. Les résultats ont montré une bonne concordance entre le profil d'oxygène mesuré au laboratoire et celui calculé avec PROFILE (Figure 2.5). Aussi, le flux d'oxygène calculé avec PROFILE (39 ±2 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 248 ±64 $mgO_2/m^2/j$) dans les résidus frais était presque similaire au flux d'oxygène mesuré dans les résidus frais (40 ±6 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 280 ±192 $mgO_2/m^2/j$). Il en était de même dans les résidus oxydés, où le flux calculé était de 34 ±4 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 088 ±128 $mgO_2/m^2/j$ et le flux mesuré de 35±4 $mmolO_2/m^2/j$ ou 1 120±128 $mgO_2/m^2/j$. La Figure 2.5 a aussi présenté la courbe du taux net de consommation d'oxygène, qui était d'environ 0,6 $nmolO_2/cm^3/s$ jusqu'à une profondeur de 0,5 mm dans les résidus, 0,05 $nmolO_2/cm^3/s$ pour les profondeurs entre 0,5 mm et 1,5 mm, et 0,01 $nmolO_2/cm^3/s$ pour les profondeurs entre 1,5 et 2 mm. Dans ce cas, la partie importante de la consommation d'oxygène par les résidus s'était faite au niveau des premiers 0,5 mm. On constate que ce logiciel PROFILE permet d'avoir le flux d'oxygène, mais qu'il ne permet pas d'obtenir explicitement le paramètre K_r.

2.3 Érosion et remise en suspension des particules dans un recouvrement en eau

Dans un système de recouvrement en eau, la couverture d'eau ne demeure pas toujours stagnante. Comme elle est exposée à l'atmosphère, elle subit tous ses aléas, notamment l'effet des vents. Ceux-ci provoquent des vagues et courants qui induisent des contraintes de cisaillement à l'interface eau–résidus. Lorsque ces contraintes (τ_{tot}) deviennent plus grandes qu'une valeur seuil de contrainte de cisaillement spécifique aux résidus en place, appelée contrainte de cisaillement critique (τ_{cr}), i.e. $\tau_{tot} > \tau_{cr}$, elles peuvent éroder et remettre en suspension des résidus miniers (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001; Catalan et Yanful, 2002; Mian et Yanful, 2004). Ces contraintes τ_{tot} et τ_{cr} sont décrites en détail plus bas. Lorsqu'il y a érosion et remise en suspension des résidus, les courants associés aux vagues peuvent transporter les particules remises en suspension vers l'effluent final. Au Québec, la *Directive 019* sur l'industrie minière (Tableau 1.1) recommande des concentrations de matière en suspension moyenne mensuelle et maximale respectives de 15 mg/L et 30 mg/L à l'effluent final. De plus, parce que la concentration d'oxygène dissous est plus élevée dans la

couverture d'eau au-dessus des résidus que dans les eaux interstitielles des résidus, les particules remises en suspension peuvent s'oxyder plus facilement. Cela peut conduire à une légère augmentation de l'acidité de l'eau de la couverture et à la libération des métaux (Catalan et Yanful, 2002). De ce fait, les critères peuvent être compromis (cas de la *Directive 019* sur l'industrie minière au Québec). Ce phénomène de l'érosion et de la remise en suspension est beaucoup plus accentué dans les zones où la couverture d'eau au-dessus des résidus n'est pas suffisamment profonde (moins de 1 m) (Catalan et Yanful, 2002).

Dans de nombreux travaux, l'érosion et la remise en suspension des résidus miniers submergés sous un recouvrement en eau ont été mesurées. Certaines études ont déterminé la concentration de matière en suspension (MES) par filtration, par des pièges à sédiments (Sediment trap) (Adu-Wusu,Yanful et Mian, 2001; Catalan et Yanful, 2002) et par des sondes de MES (Kachhwal, Yanful et Rennie, 2010b). Pour la filtration, des volumes d'eau à l'interface eau–résidus sont prélevés et filtrés. Les concentrations de particules en suspension sont par la suite déterminées par filtration d'un volume connu. Les pièges à sédiments (Figure 2.7) sont des systèmes installés à quelques centimètres au-dessus de l'interface eau–résidus, qui permettent de piéger les particules en suspension.



Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Figure 2.7 Piège à sédiments (sediment trap) (Tirée de Adu-Wusu,Yanful et Mian, 2001).

D'autres études ont porté sur les méthodes permettant de déterminer les contraintes de cisaillement induites par l'effet des vents (CERC, 1984, 2002; Yanful et Mian, 2003; Mian, 2004; Mian et Yanful, 2004; Samad et Yanful, 2005; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007) et la contrainte de cisaillement critique (Krisnappan, 1993; Chien et Wan, 1998; Yanful et Catalan, 2002; Krisnappan et Marsalek, 2002; Dave *et al.*, 2003; Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007). Ces études sont décrites dans ce qui suit. Ces travaux ont aussi été réalisés en tenant compte du caractère cohérent ou non cohérent des résidus sous le recouvrement en eau (Yanful et Mian, 2003; Mian et Yanful, 2007). Les études sur les contraintes de cisaillement induites par l'effet des vents sont basées sur les travaux du centre de recherche sur le génie côtier de l'armée américaine (CERC, 1984, 2002).

2.3.1 Contrainte de cisaillement total

Plusieurs auteurs (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001; Yanful et Catalan, 2002; Samad et Yanful, 2005) considèrent que la contrainte de cisaillement totale (τ_{tot}) exercée à l'interface eau–résidus dans un recouvrement en eau est composée de la somme de la contrainte attribuable aux écoulements induits par les vagues (τ_w) et de la contrainte imputable aux courants de retour (τ_{ret}).

[2-12] $\tau_{tot} = \tau_W + \tau_{ret}$

La contrainte de cisaillement τ_w [Pa] est provoquée par les écoulements induits par les vagues produites par le vent. τ_w peut-être estimé comme suit (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001; Yanful et Catalan, 2002; Yanful et Mian, 2003; Samad et Yanful, 2005) :

[2-13] $\tau_W = \frac{1}{2}\rho_W f_W U_W^2$

où ρ_w est la densité de l'eau (1 000 kg/m^3) et U_w est la vitesse orbitale de la vague juste au-dessus des résidus (m/s). La vitesse U_w (m/s), due à une vague de période significative T_s (s), de longueur d'onde L_s (m) et de hauteur significative H_s (m) se déplaçant dans une couverture

Rapport-Gratuit.com

en eau de profondeur h (m), est donnée par la relation suivante (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001) :

[2-14] $$U_W = \frac{\pi H_S}{T_S \sinh\left(\frac{2\pi h}{L_S}\right)}$$

Dans l'équation 2-13, $f_W = B \cdot R_e^{-A}$ est un facteur de frottement (-) dépendant du type d'écoulement (laminaire ou turbulent) au-dessus des résidus. R_e est le nombre de Reynolds donné par la formule ci-dessous, alors que A et B sont des constantes.

[2-15] $$R_e = \frac{U_W a_W}{\nu}$$

où a_w représente le déplacement maximal de particules individuelles de fluide par rapport à leur position moyenne (m) et ν est la viscosité cinématique du fluide (m^2/s).

[2-16] $$a_W = \frac{H_S}{2\sinh\left(\frac{2\pi}{L_S}h\right)}$$

Si l'écoulement est laminaire ($R_e \leq 5\times10^5$), alors B=2 et A=0,5 et si l'écoulement est turbulent ($R_e > 5\times10^5$), dans ce cas, B=0,0521 et A=0,187.

La période T_s, la longueur d'onde L_s et la hauteur H_s significatives représentent la période, la longueur d'onde et la hauteur moyenne du tiers le plus élevé des vagues. Les paramètres T_s, H_s et L_s sont obtenus en utilisant les formules développées par CERC (1984, 2002).

Pour des vagues en eau profonde (deep-water wave), qui s'appliquent lorsque $h/L_s > 0,5$ (où h est l'épaisseur du recouvrement), on a (Yanful et Catalan, 2002; Peacey et Yanful, 2003; Samad et Yanful, 2005) :

[2-17] $$T_S = 0{,}2714\sqrt[3]{\frac{FU_a}{g^2}}$$

[2-18] $$H_S = 0{,}0016\sqrt{\frac{FU_a^2}{g}}$$

Pour des vagues en eau de haut de fond (shallow water wave), c'est-à-dire lorsque $h/L_s<0{,}5$, on a (Yanful et Catalan, 2002; Peacey et Yanful, 2003; Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001) :

[2-19] $$T_S = 7{,}54\frac{U_a}{g}\tanh\left[0{,}833\left(\frac{gh}{U_a^2}\right)^{3/8}\right]\tanh\left[\frac{0{,}0379\left(\frac{gF}{U_a^2}\right)^{1/4}}{\tanh\left[0{,}833\left(\frac{gh}{U_a^2}\right)^{3/8}\right]}\right]$$

[2-20] $$H_S = 0{,}283\frac{U_a^2}{g}\tanh\left[0{,}53\left(\frac{gh}{U_a^2}\right)^{3/4}\right]\tanh\left[\frac{0{,}00565\left(\frac{gF}{U_a^2}\right)^{1/2}}{\tanh\left[0{,}53\left(\frac{gh}{U_a^2}\right)^{3/4}\right]}\right]$$

Dans ces équations, U_a est défini comme étant un facteur de contrainte des vents (m/s) $\left(U_a = 0{,}71U_{10}^{1{,}23}\right)$ (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001), où U_{10} est la vitesse du vent mesurée à 10 m au-dessus de la surface du sol (m/s), F est le fetch (m) qui est la distance sur laquelle le vent souffle, h est la profondeur moyenne de la couverture en eau (m) et g est l'accélération gravitationnelle (m/s^2).

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

La longueur d'onde L_s (m) est déterminée par la relation itérative suivante (CERC ,1984; Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001) :

[2-21] $$L_s = \frac{gT_s^2}{2\pi}\tanh\left(\frac{2\pi h}{L_s}\right)$$

Cette longueur d'onde L peut être également approximée par la relation suivante (Yanful et Catalan, 2002; Peacey et Yanful, 2003) :

[2-22] $$L_s = \frac{gT_s^2}{2\pi}\sqrt{\tanh\left(\frac{4\pi^2 h}{T_s^2 g}\right)}$$

La contrainte de cisaillement provoquée par les courants de retour τ_{ret} (Pa) à l'interface eau–résidus est souvent estimée comme égale à environ 10% de la contrainte de cisaillement induite, et elle est donnée par la relation ci-dessous (Lawrence, Ward et MacKinnon, 1991; yanful et Catalan, 2002; Mian et Yanful, 2004) :

[2-23] $$\tau_{ret} = 0{,}1 C_D \rho_a U_a^2$$

$C_D = 0{,}001(0{,}75 + 0{,}067 U_a)$ (-) et ρ_a est la densité de l'air (1,24 kg/m^3 à 10 °C).

Cette contrainte de cisaillement induite par les courants de retour (τ_{ret}) est généralement négligeable par rapport à la contrainte de cisaillement τ_w causée par les écoulements induits par les vagues. Comme indiqué à la Figue 2.8 (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001) (cette figure présente les contraintes de cisaillement τ_w, τ_{ret} et τ_{tot} en fonction de l'épaisseur h du recouvrement en eau), les vagues contribuent de façon significative à la contrainte de cisaillement par rapport au courant de retour.

De façon générale, la contrainte de cisaillement augmente lorsque la vitesse de vents U_{10} s'accentue, lorsque l'épaisseur du recouvrement en eau h diminue et lorsque le fetch F augmente (les autres paramètres étant considérés constants).

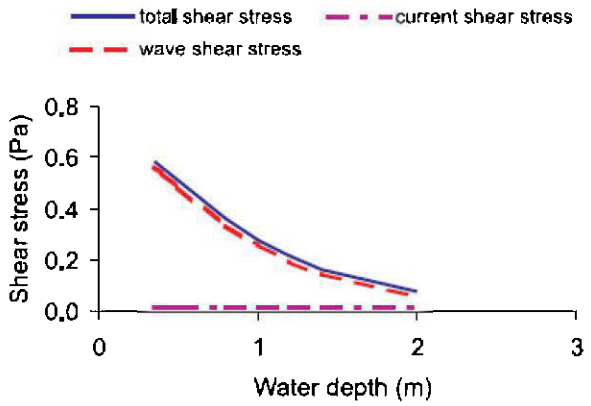


Figure 2.8 Contraintes de cisaillement τ_w et τ_{ret} en fonction de h à la vitesse de vent de 8 m/s (Tirée de Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001).

2.3.2 Contraintes de cisaillement critique

La contrainte de cisaillement critique (τ_{cr}) représente la contrainte seuil spécifique aux résidus. Lorsque celle-ci est dépassée, l'érosion et la remise en suspension des résidus s'amorcent. La contrainte de cisaillement critique peut être déterminée à l'aide de modèles expérimentaux au laboratoire. Elle peut aussi être estimée à l'aide de modèles semi-empiriques.

2.3.2.1 Mesures expérimentales au laboratoire

La contrainte de cisaillement critique peut être mesurée à l'aide de plusieurs techniques. On peut citer, entre autres, le canal circulaire tournant (rotating circular flume, RCF) de la National Water Research Institute de Burlington en Ontario (Krisnappan, 1993; Krisnappan et Marsalek, 2002; Davé *et al.*, 2003), le canal d'onde (wave flume) du Centre d'hydraulique canadien à Ottawa en Ontario (Davé *et al.*, 2003) et la colonne de plexiglas étalonnée au moyen d'un vélocimètre Doppler (Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007).

Le RCF est composé d'un canal circulaire de 5 m de diamètre moyen, de 30 cm de largeur et de 30 cm de profondeur. Il repose sur une plate-forme tournante de 7 m de diamètre. Il comporte également une plaque de recouvrement annulaire (ring), attachée à une table tournante supérieure, qui s'adapte au canal circulaire. Le RCF est équipé d'un granulomètre et d'un vélocimètre laser Doppler, qui sont utilisés pour mesurer respectivement la distribution de la taille de particules et la composante tangentielle de la vitesse appliquée pendant que le canal fonctionne. Pour mesurer les caractéristiques d'érosion avec un canal circulaire (Davé *et al.*, 2003), un lit uniforme de résidus, d'approximativement 3 cm d'épaisseur, a été placé sous l'eau du procédé dans le canal et laissé pour décantation. Avant de laisser décanter la pulpe, le canal circulaire et la plaque de recouvrement ont été mis en marche dans la même direction, à des vitesses maximales de 2 et 2,5 RPM pour environ 20 minutes. Ils ont ensuite été arrêtés progressivement jusqu'à atteindre zéro. Cette procédure permettait aux résidus d'être répartis uniformément dans le lit de canal entier. Le canal et la plaque de recouvrement ont par la suite été mis en rotation dans des directions opposées pour produire une contrainte tangentielle uniforme sur le lit des résidus. La vitesse de rotation de l'ensemble du canal tournant était intensifiée à un pas de temps uniforme. Pour chaque vitesse de rotation ou contrainte tangentielle, la concentration de matière en suspension (MES) au-dessus du lit des résidus était mesurée. La représentation de la concentration des résidus re-suspendus en fonction de la contrainte appliquée sur le lit des résidus, telle qu'illustrée à la Figure 2.9, a permis d'obtenir la contrainte de cisaillement critique, qui est la contrainte à partir de laquelle il y a MES. Dans le cas des résultats présentés dans cette figure, MES>0 pour une contrainte τ_{cr} de 0,16 N/m^2.

Le canal d'onde du Centre d'hydraulique canadien a 97 m de long, 2 m de large et 2,75 m d'épaisseur. Il comprend un générateur de vagues qui peut produire des ondes jusqu'à 1,1 m de haut et un absorbeur d'onde. Il comprend également une section de 2 m de long, 1 m de large et 0,085 m d'épaisseur, construite à la base du canal, pour contenir les résidus destinés à l'essai. Dans un canal d'ondes, les résidus étaient placés dans la zone d'essai et soumis à une série de vagues régulières et irrégulières. Les vagues dans le canal étaient mesurées avec des jauges de vague.

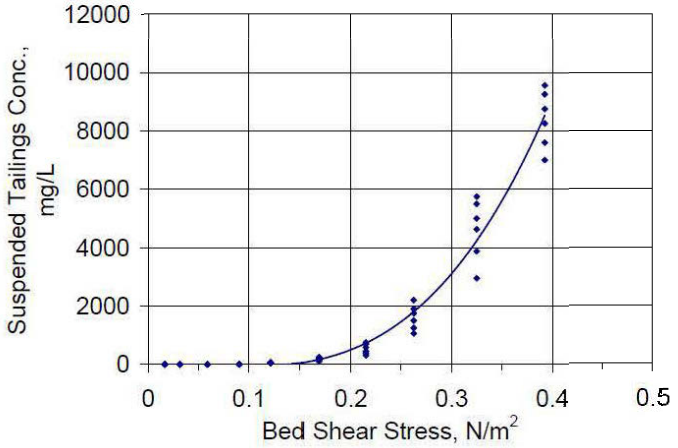


Figure 2.9 Caractérisés d'érosion de résidus dans un RCF (Tirée de Davé *et al.*, 2003).

Ces jauges, qui étaient composées d'une sonde métallique et d'un condensateur, généraient un signal de tension (voltage). Ce signal était linéairement proportionnel à l'altitude de la surface libre de l'eau. Comme le niveau d'eau dans le canal variait en fonction de la propagation des ondes, la lecture de la tension variait également, et elle était enregistrée. Une série de tensions était utilisée pour déterminer la hauteur des vagues et les périodes. La vitesse orbitale des vagues au lit des résidus était mesurée à l'aide d'une sonde à effet Doppler acoustique (Acoustic Doppler Current). Les concentrations de MES étaient mesurées en utilisant un aspirateur de particules composé de 8 prises alignées verticalement et montées de façon transversale au-dessus du lit des résidus. L'étude menée par Davé *et al.* (2003) avec le canal d'ondes utilisait 3 types de matériaux de la mine INCO Limited, Copper Cliff, Ontario, Canada, soit des résidus grossiers, des résidus fins et des résidus fins recouverts d'une couche de 5 cm de sable de silice fine. Pour les résidus grossiers et fins, les contraintes de cisaillement critiques mesurées variaient respectivement de 0,21 à 0,25 N/m^2 et de 0,2 à 0,22 N/m^2. Ces valeurs, bien que légèrement plus élevées que celles obtenues avec le RCF, étaient néanmoins comparables.

La colonne de plexiglas étalonnée au moyen d'un vélocimètre Doppler, utilisée par Mian (2004) (voir aussi Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007) pour déterminer la contrainte τ_{cr}, est une colonne de 30 cm de diamètre et de 126 cm de haut (Figure 2.10).

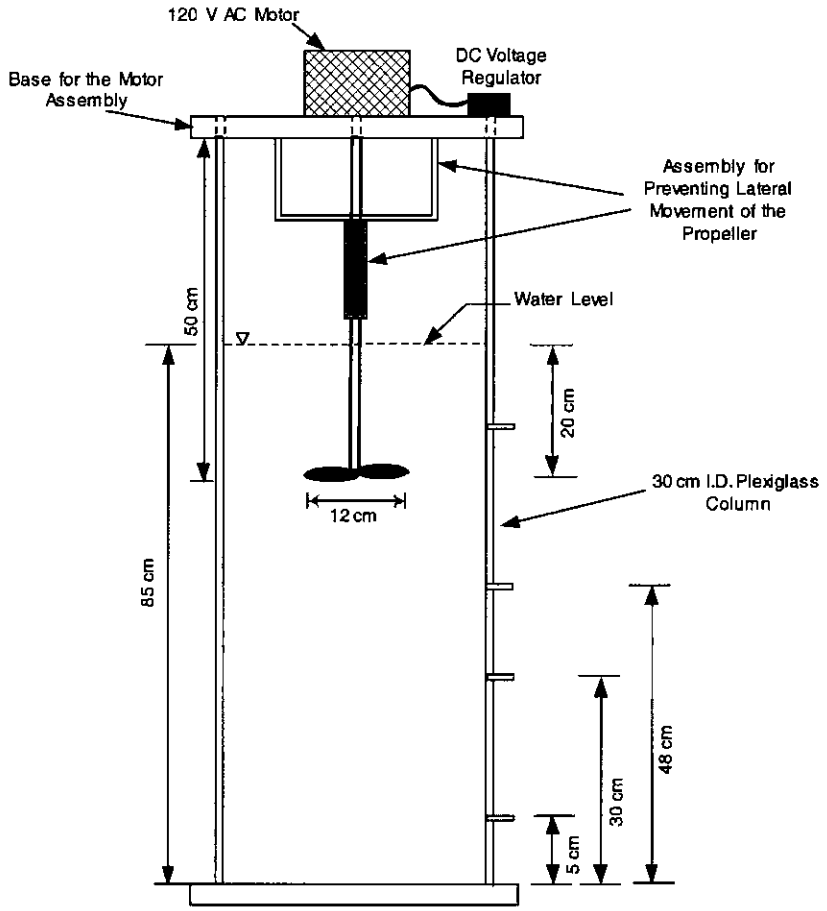


Figure 2.10 Schéma de la colonne de plexiglas (Tirée de Mian, 2004 et Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007).

La colonne était remplie d'une couche d'eau de 85 cm. Un agitateur avec hélice à deux ailes en téflon de 12 cm de diamètre était placé à 60 cm au-dessus de la surface des résidus. Dans un premier temps, l'eau du cylindre était agitée à différentes vitesses et les contraintes de cisaillement qui s'exercent sur la paroi (au fond du cylindre) étaient déterminées pour chaque vitesse de rotation. Pour cela, les profils de vitesse étaient mesurés pour chaque position radiale (du centre vers la paroi) et pour chaque vitesse de l'agitateur à l'aide d'une sonde laser Doppler (modèle LDP 100 de TSI Inc, USA). Ces profils étaient également établis en fonction de la profondeur pour chaque position radiale. Une courbe de régression polynomiale était utilisée pour décrire chaque profil. La pente de chaque courbe a été

déterminée et convertie en contrainte de cisaillement à la paroi par la formule suivante (Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007) :

$$[2\text{-}24] \quad \tau_{wall} = \mu \frac{du}{dz}$$

τ_{wall} est la contrainte de cisaillement à la paroi (Pa), μ est la viscosité dynamique ($1{,}002\times10^{-6}$ N.s/m^2 à 20°C), du/dz est la pente de la courbe de vitesse u(z) en fonction de la profondeur (z).

Pour chaque position radiale et pour chaque vitesse d'agitation, la contrainte de cisaillement à la paroi a été représentée sur un même graphique. Ensuite, pour chaque vitesse de l'agitateur, une moyenne de la contrainte de cisaillement à la paroi a été déterminée. Ces contraintes de cisaillement moyennes à la paroi ont été représentées sur un graphique en fonction des vitesses d'agitation, tel qu'illustré à la Figure 2.11.

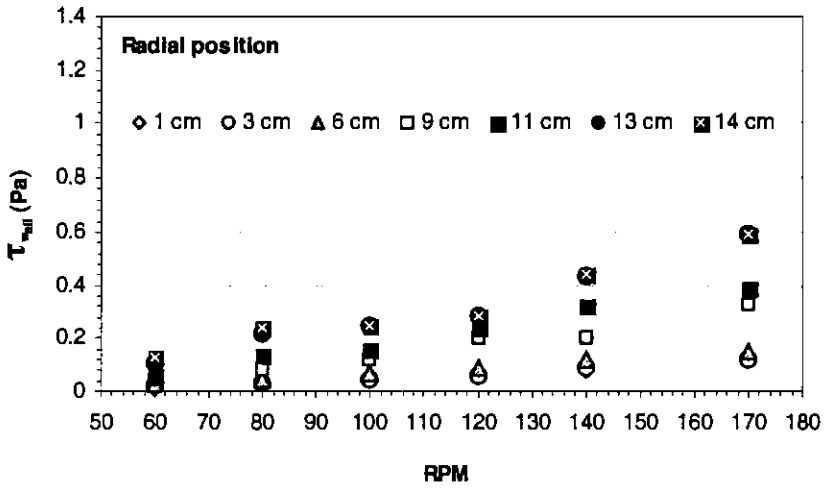


Figure 2.11 Variation de la contrainte de cisaillement à la paroi (au fond de la colonne) en fonction de la vitesse (Tirée de Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007).

Dans deuxième temps, des résidus de 2 à 3 cm d'épaisseur et d'une hauteur de 80 cm d'eau ont été mis en place dans la colonne et laissés à décantation. Plusieurs vitesses d'agitation ont

ensuite été appliquées. Des échantillons d'eau étaient prélevés à partir des ports d'échantillonnage installés le long de la colonne à 5, 30, 48 et 70 cm à partir de la base de la colonne. Les concentrations de MES étaient déterminées par filtration et séchage à l'étuve des particules recueillies.

Pour toute vitesse d'agitation appliquée, les taux d'érosion (E) (M/L^2T) (kg/m^2s) ont été déterminés avec l'équation suivante (Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007) :

$$[2\text{-}25] \quad E = \frac{h_f\,(C_t - C_i)}{\Delta t}$$

où h_f est la hauteur d'eau au-dessus des résidus en m, tandis que C_i et C_t sont respectivement les concentrations de MES en mg/L au début et à la fin de chaque étape de cisaillement de durée Δt.

Les taux d'érosion obtenus ont été mis en corrélation avec les contraintes de cisaillement à la paroi. Une courbe de tendance était appliquée aux données et par extrapolation de la courbe de tendance à la concentration zéro, la contrainte de cisaillement critique a été obtenue pour ce matériau donné (Figure 2.12). La valeur obtenue pour les résidus étudiés dans ce cas était de 0,012 N/m^2 (Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007). Il faut noter que ces résultats ne peuvent pas être appliqués à tous les types de résidus. Pour chaque matériau, il faut reprendre toutes les étapes de l'expérimentation pour obtenir une contrainte de cisaillement critique spécifique à chaque matériau.

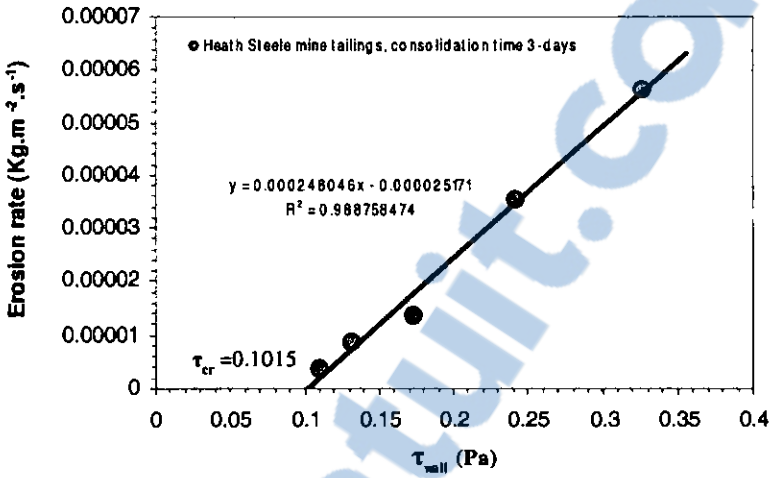


Figure 2.12 Détermination τ_{crit} pour les résidus de Heath Steele (Tirée de Mian, 2004; Mian, Yanful et Martinuzzi, 2007).

2.3.2.2 Modèles semi-empiriques

Des équations semi-empiriques ont été développées pour estimer la contrainte de cisaillement critique comme celui de Chien et Wan (1998), qui a également été utilisé par Adu-Wusu, Yanful et Mian (2001). Selon ce modèle, la contrainte de cisaillement critique peut être estimée à l'aide de l'équation suivante :

$$[2\text{-}26]\quad \tau_{cr} = \frac{1}{77{,}5}\left[3{,}2\,(\gamma_S - \gamma_W)\,D_{50} + \left(\frac{\gamma_b}{\gamma_{bo}}\right)^{10}\frac{2{,}910^{-4}}{D_{50}}\right]$$

Dans cette équation, γ_S et γ_W sont respectivement les poids volumiques des résidus (N/m^3) et de l'eau (1000 N/m^3), γ_b et γ_{bo} sont respectivement les poids volumiques des résidus à l'interface (N/m^3) et des résidus consolidés (N/m^3), et D_{50} est le diamètre moyen des résidus. γ_b et γ_{bo} sont généralement supposés équivalents lorsque les résidus sont sous l'eau depuis longtemps, et qu'ils sont de ce fait supposés avoir eu le temps de se consolider.

Rapport-Gratuit.com

2.3.3 Épaisseur du recouvrement

Lors du design d'un recouvrement en eau, il importe de déterminer l'épaisseur d'eau minimale requise afin d'éviter en permanence la remobilisation des résidus en place par le vent. L'épaisseur du recouvrement en eau intervient dans les équations 2-16, et 2-19 à 2-22, qui sont utilisées pour calculer la contrainte de cisaillement τ_{tot}. De façon générale, la hauteur minimale du recouvrement en eau h_{min} est la valeur qui satisfait la condition $\tau_{tot}<\tau_{cr}$. Dans le cas des vagues en eau profonde, des relations analytiques simples ont été développées pour déterminer h_{min} (Yanful et Simms, 1997; Lawrence, Ward et Mckinnon, 1991; Atkins, Hay et Robertson, 1997). À titre d'exemple, Atkins, Hay et Robertson (1997) proposent la relation suivante pour obtenir h_{min} qui est une solution dérivée de la méthode de Lawrence, Ward et Mckinnon (1991) :

$$[2\text{-}27]\quad h_{min} = 1{,}58\times10^{-3} g\,(U_A F)^{2/3} \ln\left[5{,}14\times10^{-2}\frac{\left(FU_A{}^4\right)^{1/6}}{V_{cr}}\right]$$

$$[2\text{-}28]\quad V_{cr} = \left[0{,}2\lg\left(\frac{\rho_s-\rho_w}{\rho_w}\right)\left(\frac{D_{50}T_s}{\pi}\right)^{1/2}\right]^{2/3}$$

Dans ces équations, V_{cr} est la vitesse critique (m/s) qui amorce la remise en suspension, g est l'accélération gravitationnelle (m/s^2), ρ_s et ρ_w sont respectivement la densité relative des résidus (kg/m^3) et la masse volumique de l'eau (kg/m^3) et T_s est la période significative définie par l'équation 2-17.

Pour des vagues en eau de haut de fond, les équations 2-19 et 2-20 sont assez complexes pour dériver une solution analytique de h_{min}. L'épaisseur minimale peut dans ce cas être calculée numériquement. Il faut aussi noter que l'épaisseur finale du recouvrement en eau doit tenir compte de l'épaisseur minimale et des pertes possibles d'eau (évaporation, etc.). Dans ce qui suit, nous présentons quelques études de la littérature sur la conception de systèmes de recouvrement tenant compte du h_{min}.

Lors de la conception du système de recouvrement en eau du site Equity Silver en Colombie-Britannique (Canada), HAY Consultants (1996) a effectué des travaux, afin de prédire la profondeur d'eau nécessaire pour empêcher la resuspension des résidus miniers sous la couverture d'eau en mettant en relation l'épaisseur du recouvrement, les caractéristiques des vagues et les caractéristiques du dépôt. La vitesse de vent la plus haute observée sur la couverture d'eau de Equity Silver, au cours d'une période d'étude de trois ans où la couverture n'était pas gelée, était de 18,6 m/s. La période de retour des vents a été estimée à 8 ans. En se basant sur le travail de Lawrence, Ward et Mckinnon (1991), l'épaisseur de la couverture d'eau nécessaire pour empêcher la remise en suspension des résidus a été estimée à 1,4 m.

Pour le design du recouvrement en eau du site Hjerkinn en Norvège et du site Stekenjokk en Suède les mêmes types de travaux ont été effectués. L'épaisseur du recouvrement nécessaire pour éviter la remise en suspension des résidus calculée était de 1,5 m dans le cas du recouvrement en eau de Hjerkinn, avec une période de retour des vents de 10 ans (Yanful et Simms, 1997). Quant à celui de Stekenjokk, la hauteur d'eau requise calculée variait entre 0,2 à 2,2 m pour un fetch de 0,05 à 1,10 km et une vitesse de vent de 22 m/s, s'il n'y avait pas d'ajout de couche de sable au-dessus des résidus. Dans le cas d'un ajout de sable sur les résidus, l'épaisseur minimale requise était de 0,2 à 0,93 m (Yanful et Simms, 1997).

Lors de la phase de conception et de construction du recouvrement en eau du site Louvicourt au Québec, les épaisseurs d'eau moyenne et minimale de 1 m et de 0,5 m étaient proposées pour limiter la génération du DMA (Julien *et al.*, 2003; Mian, 2004).

2.4 Relargage des métaux dissous et géochimie des eaux d'un recouvrement en eau

L'oxydation des minéraux sulfureux contenus dans les résidus miniers par l'oxygène dissous et l'augmentation de l'acidité peuvent entraîner la dissolution des métaux dans la couverture aqueuse. Ces métaux sont soit sous forme d'ions, soit sous forme de précipités en fonction de la qualité géochimique de l'eau de la couverture. Le relargage des métaux dans la couverture

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

d'eau se produit suivant trois mécanismes : la diffusion moléculaire, la remontée de l'eau interstitielle (infiltration ascendante), et la remise en suspension des résidus (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997). La diffusion moléculaire est le phénomène par lequel les métaux se déplacent du milieu où leurs concentrations sont élevées, vers le milieu où les concentrations sont plus faibles ou inexistantes. C'est en général un processus lent. La remontée de l'eau interstitielle ou l'infiltration ascendante a lieu s'il y a un gradient ascendant comme une infiltration des eaux souterraines. Ce facteur dépend de la stratigraphie et de la perméabilité du milieu. La remise en suspension intervient lorsque la contrainte de cisaillement totale (τ_{tot}) à l'interface eau–résidus dépasse une contrainte de cisaillement critique (τ_{cr}) (section 2.3). Les études effectuées sur le relargage des métaux sont souvent liées aux études sur l'évolution de la géochimie des eaux (couverture, eau interstitielle) au laboratoire, sur le terrain et aussi par des modélisations géochimiques. Comme mentionné à la section 1.1, le phénomène de relargage des métaux est moins critique pour les résidus déversés par la technique de déposition subaquatique que pour les résidus entreposés par inondation (MEND, 2001). Cependant, l'impact de cette contamination sur la couverture d'eau dans le cas d'une inondation peut être négligeable à long terme, par suite des dilutions occasionnées par des apports d'eau douce et aux précipitations. Dans ce qui suit, quelques études sont brièvement décrites pour des recouvrements en eau issus de la déposition subaquatique et de l'inondation.

2.4.1 Mesures physiques au laboratoire

Généralement, au laboratoire, des colonnes représentant le système à étudier sont mises en place. Des ports d'échantillonnage sont installés à différentes positions sur les colonnes, où des échantillons d'eau sont prélevés suivant un pas de temps. Les concentrations des métaux sont déterminées par ICP MS (Inductively coupled plasma mass spectroscopy) et/ou ICP AES (Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy), et des profils de concentrations de métaux sont établis en fonction de la profondeur et du temps. Le suivi de ces profils dans le temps permet de vérifier ou de montrer la variation géochimique des eaux et le relargage des métaux dans les eaux de la couverture. Dans ce qui suit, quelques études sont présentées.

Karam et Guay (1994) ont étudié la qualité de l'eau de l'inondation artificielle de rejets miniers traités avec de la chaux. Des essais dans des bassins en polypropylène de 23 cm de diamètre et de 25 cm de longueur ont été utilisés. Les résidus miniers utilisés étaient de deux types : (1) un échantillon composite (résidus miniers oxydés + résidus miniers non oxydés), et (2) un échantillon de résidus miniers oxydés. Ces résidus étaient inondés de 6 litres d'eau distillée, et ils provenaient de la mine Solbec-Cupra au Québec. L'eau de la couverture fut prélevée et analysée dans le temps. Les résultats pour la période d'observation considérée, soit entre le 8 juin 1993 et le 7 février 1994, montraient que les valeurs de pH fortement acides de l'eau de recouvrement au début de l'essai des bassins 1 et 4 (bassins témoins et sans addition de chaux) tendaient à diminuer légèrement avec le temps, tandis que les valeurs de fer dissous augmentaient légèrement. Dans les bassins chaulés, le pH demeurait autour de la neutralité (7) et les concentrations de Fe étaient plus faibles (0,18 à 0,34 mg/L pour les résidus oxydés et recouverts par 30 g de chaux et de 0,10 à 0,12 mg/L pour les résidus composites et recouverts de 30 g de chaux mélangés au 1/3 supérieur de résidus) que celles des bassins non chaulés (70 à 100 mg/L). L'eau recouvrant les résidus miniers non chaulés (bassins 1 et 4) demeurait très acide (pH = 2,7) après 37 semaines d'inondation. Ces résultats ont montré que, dans cette étude, le recouvrement d'une couche d'eau non tamponnée ne contribuait pas à résoudre le problème du drainage minier acide.

Dans une étude réalisée au laboratoire pour évaluer l'efficacité des couvertures d'eau dans la prévention de la génération du DMA, Aubé *et al.* (1995) ont mesuré la libération des métaux dans des haldes à stériles non oxydés placées sous l'eau. Les échantillons de la halde à stériles provenaient du site minier Stratmat des mines Heath Steele près de Newcastle au Nouveau-Brunswick (Canada) et contenaient 19% de pyrite. Trois colonnes en PVC de 15 cm de diamètre étaient remplies de 1 m d'eau. Par la suite, 20 kg de stériles ont été déversés dans chacune des colonnes, de sorte à avoir un recouvrement d'une épaisseur de 1 m au-dessus des stériles. Les stériles utilisés avaient 25 à 50 mm de diamètre. Des échantillons d'eau de la couverture et de l'effluent à la base de chaque colonne ont été prélevés et analysés à pas de temps définis. Dans l'effluent des colonnes, le pH augmentait jusqu'à 8 au bout de la 60e semaine. Ensuite, le pH restait élevé jusqu'à la 122e semaine. Après ce temps, le pH

baissait jusqu'à atteindre les conditions de pH acide. Selon les auteurs, la chute du pH coïncidait avec l'augmentation du Fe, Zn et Pb dans l'effluent. Cette chute du pH, selon eux, serait provoquée par l'épuisement de minéraux neutralisants. Ainsi, la diminution du pH vers les conditions de pH acide serait la cause de l'élévation des concentrations de métaux dissous (Zn, Fe, Pb). L'acidité moyenne de l'eau à l'effluent était estimée à 1,24 $gCaCO_3$ équivalent /L, la concentration moyenne de sulfate était de $0{,}0286\times10^{12}$ mol/g de roches et la concentration moyenne de Fe était de $0{,}000162\times10^{12}$ mol/g de roches. Pour le Zn, avant une année, la concentration était restée inférieure à 1 mg/L, mais après une année, les concentrations ont augmenté jusqu'à atteindre le double après 154 semaines. Le Pb, quant à lui, est resté en général indétectable dans l'eau de l'effluent. Dans l'eau de la couverture, aucune variation significative des éléments n'a été observée. Les auteurs ont aussi constaté que certaines différences de concentrations de métaux entre la couverture d'eau et l'effluent sont significatives. Les concentrations de Cu, par exemple, n'ont jamais été détectées dans l'effluent; par contre, dans la couverture, des concentrations de 0,04 à 0,08 mg/L ont été déterminées. Les concentrations de Al et Pb sont un peu plus élevées dans la couverture que dans l'effluent, ce qui suggérait, selon les auteurs que ces métaux ont précipité pendant qu'ils traversaient les stériles dans la colonne. Quant au Zn, les concentrations dans la couverture étaient légèrement inférieures aux concentrations à l'effluent. Concernant les sulfates, les concentrations dans la couverture d'eau étaient similaires à celles de l'effluent et elles étaient comprises entre 114 et 146 mg/L.

Yanful et Simms (1997) ont effectué des expérimentations en colonnes, afin d'évaluer la performance d'un recouvrement en eau en tenant compte de l'épaisseur de la couverture et du type de couche protectrice mise sur les résidus. Dans ce cas, du sable et de la tourbe ont été utilisés comme couche protectrice. Les résidus utilisés provenaient du parc à résidus de Mattabi au nord de l'Ontario (Canada). Ils étaient composés à 33% de pyrite, 8% de pyrrhotite, 1,5% de sphalérite et 1 à 4% d'autres sulfures. Des colonnes (au total 8) en plexiglas de 30 cm de diamètre et de 2 m de hauteur ont été utilisées. Chaque colonne a été remplie de 60 cm de résidus non oxydés dans la section inférieure et 35 cm de résidus oxydés dans la section supérieure. Deux des huit colonnes étaient remplies d'eau du lac Sturgeon et

les 6 autres par de l'eau distillée. Les colonnes 1 et 2 étaient recouvertes uniquement d'eau, les colonnes 3 et 4 étaient couvertes par 10 cm de sable, le tout recouvert de 1 m d'eau. Les colonnes 5 et 6 étaient couvertes par 10 cm de tourbe, le tout recouvert de 1 m d'eau et les colonnes 7 et 8 contenaient des résidus saturés en eau sans couverture d'eau ni couche protectrice. Chaque colonne était équipée de 28 ports d'échantillonnage dont 14 étaient destinés à l'échantillonnage de l'eau interstitielle dans les résidus et les autres au contrôle de la qualité de la couverture d'eau à différentes profondeurs. La colonne comportait aussi un port d'échantillonnage à la base, qui était fermé pendant le test statique, mais ouvert pour échantillonner l'effluent pendant la phase cinétique. En fait, les expérimentations ont été conduites dans deux phases : La première, dite statique, où l'eau restait stagnante, et la seconde, dite cinétique, où 1 litre d'eau déminéralisée était ajouté par semaine au sommet de chaque colonne pour simuler la précipitation. L'effluent était collecté à la base de la colonne pour analyse. Les résultats des essais montraient que, dans des conditions statiques, le transfert des métaux des résidus vers la couverture d'eau était significatif dans des colonnes 1 et 2, et qu'il a fait augmenter les concentrations dans la couverture d'eau. Dans les colonnes 3 à 6, contenant le sable et de la tourbe, aucun transfert significatif de métaux vers la couverture d'eau n'a été observé, à l'exception du zinc dans les colonnes couvertes de tourbe. Selon les auteurs, ce zinc provenait probablement de la tourbe elle-même, qui contenait initialement plus de zinc que ce qui a été transféré vers la couverture d'eau (Yanful et Simms, 1997). Les Eh, OD, pH ont été mesurés à la fin du test statique. Ils ont montré que l'utilisation de la couche de tourbe a contribué à réduire la concentration d'oxygène dissous dans les résidus (1-2 mg/L) en dessous de la concentration mesurée dans les résidus couverts de sable (2-3 mg/L). Les résultats ont aussi montré que les concentrations d'oxygène dissous dans les résidus des colonnes 7 et 8 étaient semblables aux concentrations d'oxygène dissous dans les résidus des colonnes 1 et 2. Selon les auteurs, cette similitude pourrait être attribuée à la consommation d'oxygène par l'oxydation du fer ferreux en fer ferrique et probablement la réduction de la diffusion d'oxygène par les dépôts d'oxyhydroxide ferriques à la surface des résidus. Les résultats ont aussi montré que le pH (3,5) dans la couverture d'eau dans les colonnes 1 et 2 était inférieur à celui dans les résidus (5,5) dans les mêmes colonnes. Aussi, cette étude a démontré que l'utilisation de couches d'interception a gardé le pH des

couvertures d'eau aux niveaux neutres. En condition cinétique, il a été montré que les taux de précipitation/dissolution du fer dans le sable, dans la tourbe et dans les colonnes sans couverture variaient avec le débit descendant d'eau. Le changement du débit avait peut-être produit des concentrations d'effluent différentes. La masse totale de sulfates, de fer et de zinc éliminée par le lessivage était plus élevée dans les colonnes 5 et 6 (couche de tourbe) et semblable dans les colonnes 3 et 4 et dans les colonnes non couvertes 7 et 8. Une comparaison des concentrations d'effluent final montrait que les concentrations de fer et de sulfate des colonnes 5 et 6 étaient deux fois plus élevées que celles des colonnes 7 et 8 et six fois supérieures à celles des colonnes 3 et 4 (avec couche de sable). Ceci indiquait qu'avec le temps, les colonnes de tourbe produiraient possiblement des concentrations les plus élevées de polluants, suivies des colonnes sans couverture et, en dernier, des colonnes couvertes de sable.

Davé *et al.* (1997) ont utilisé des colonnes lysimétriques de 0,3x0,3 m de section transversale et 2,2 m de hauteur au laboratoire pour déterminer l'oxydation et le relargage des métaux dans les rejets déposés sous l'eau. Les conditions de l'expérimentation au laboratoire sont décrites à la section 2.2.2. Des profils de concentrations de Fe, de Ni et SO_4 de la couverture aqueuse placée au-dessus des résidus ont été établis pour une année. Les résultats indiquaient que l'oxydation se faisait à l'interface eau–résidus dans toutes les colonnes, sauf dans celles où une couche additionnelle de matériau servant de barrière à oxygène a été ajoutée. Les concentrations de Fe étaient en dessous de leur limite de détection (<0,008 mg/L), les concentrations de SO_4^{2-} se situaient autour de 30 mg/L. Les résultats montraient aussi que la légère oxydation des résidus à l'interface eau–résidus contribuait à libérer du Ni dans la couverture à des concentrations comprises entre 0,4 et 0,6 mg/L. Cette étude a également montré que la couche de matériau organique prévenait la migration de métaux des résidus oxydés vers la couverture d'eau. Quant à la couche de résidus faiblement sulfureux, elle atténuait l'acidité et la migration des métaux des résidus oxydés vers la couverture d'eau.

Simms *et al.* (2000) ont réalisé une étude au laboratoire pour examiner les phénomènes de libération des métaux dans des conditions contrôlées. Cette étude, exécutée pendant plus de

2 ans consistait en quatre essais en colonnes de 30 cm de diamètre et 2 m de hauteur. Les résidus partiellement oxydés provenaient du parc à résidus de Mattabi, près d'Ignace en Ontario (Canada) et étaient composés de 33% de pyrite, 8% de pyrrhotite, 1,5% de sphalérite et 1 à 4% d'autres sulfures. Dans deux des quatre colonnes, 1 m d'eau a été ajouté pour établir une couverture d'eau, tandis que les deux autres ont été juste saturées en eau (remplies jusqu'à la surface des résidus). Les couvertures d'eau des colonnes ont été stagnantes pour la première moitié (phase statique) de l'étude. Les colonnes étaient rincées à débit constant pendant la seconde moitié de l'étude (phase cinétique). Les échantillons d'eau interstitielle et de la couverture d'eau ont été collectés et analysés pour des métaux, les sulfates, l'acidité, le pH, le potentiel redox et l'oxygène dissous. Les résultats des essais ont montré que la qualité de l'eau interstitielle avec un pH de 6 était meilleure que celle de la couverture d'eau qui avait un pH de 3. Pendant la première moitié de l'essai, la dissolution minérale a libéré de grandes quantités de Fe dans toutes les expérimentations, alors qu'aucune dissolution substantielle ou de libération de Fe n'a pas été détectée après 300 jours. Dans la couverture d'eau, le Zn n'a pas été détecté pendant les phases tant statiques que cinétiques à cause de la co-précipitation ou de l'adsorption du Zn par les hydroxydes de Fe (III). Les concentrations des métaux et de SO_4^{2-} obtenues au laboratoire étaient semblables à celles observées à grande échelle sur le terrain. Les observations de laboratoire de cette étude ont permis de conclure qu'en mettant en place une couverture d'eau sur les résidus miniers, celle-ci réduisait considérablement la libération de métaux, mais sur le terrain, ce résultat pouvait être influencé par d'autres facteurs comme la dilution créée par les débits d'eau de surface et la remise en suspension des particules causée le vent.

Catalan et Kumari (2005) ont effectué une étude visant à évaluer l'efficacité de l'ajout de résidus de boues de chaux aux résidus miniers oxydés avant de les ennoyer. L'hypothèse émise était que l'ajout de résidus de boue de chaux pourrait réduire l'acidité et la libération de métaux lourds dans la couverture aqueuse et dans l'eau interstitielle. Des essais en colonne avec renouvellement continu de l'eau ont été effectués en utilisant les trois configurations suivantes : (1) une couverture d'eau par-dessus des résidus miniers oxydés; (2) une couverture d'eau sur une couche de résidus de boues de chaux recouvrant les résidus

miniers oxydés; et (3) une couverture d'eau par-dessus un mélange de résidus de boues de chaux et de résidus miniers oxydés recouvrant des résidus miniers oxydés. Au total, 6 combinaisons de couverture aqueuses et de résidus ont été mises en place. En fonction de la combinaison, l'épaisseur de la couche de boue variait de 3,5 à 5 cm, l'épaisseur du mélange de boue et de résidus, entre 5 et 6 cm, et l'épaisseur de la couverture d'eau entre 4 et 5 cm. Les résidus provenaient de 7 endroits au sud du parc à résidus de la mine Kam Kotia à Timms en Ontario (Canada). Les résultats ont montré que l'ajout de résidus de boues de chaux a permis de maintenir un pH neutre ou légèrement alcalin et des concentrations de métaux lourds dissous sous les limites réglementaires dans la couverture aqueuse et dans l'eau interstitielle dans la colonne avec la configuration résidus miniers oxydés + résidus de boues de chaux + eau. Toutefois, dans l'eau interstitielle de la couche de résidus oxydés sous-jacente, le pH était resté acide et les concentrations de métaux lourds étaient élevées, même une fois que des centaines de volumes interstitiels d'eau avaient été infiltrés à travers les colonnes. Selon les auteurs, le comportement du pH de l'eau interstitielle dans les résidus miniers oxydés sous-jacents a été attribué à la faible solubilité du carbonate de calcium $CaCO_3$ et à la consommation d'ions de bicarbonate par la réaction avec les minéraux d'oxyhydroxydes de Fer et de sulfate.

2.4.2 Mesure de terrain

Rescan (1996) a réalisé une étude afin d'évaluer la chimie de la couverture d'eau, et de déterminer des flux de métaux des résidus vers la couverture d'eau du site Equity Silver en Colombie-Britannique (Canada). Comme décrite à la section 2.2.3, l'épaisseur moyenne de la couverture d'eau au-dessus des résidus était de 4,3 m. Les résidus étaient composés principalement de pyrite, d'arsenopyrite et de pyrrhotite. L'étude comportait l'examen des carottes de résidus miniers pour déterminer la composition solide, l'échantillonnage des eaux interstitielles à l'aide de dialyseurs (un exemple de dialyseur est présenté par Martin *et al.*, 2003 à la Figure 2.13) et l'échantillonnage de la couverture d'eau.

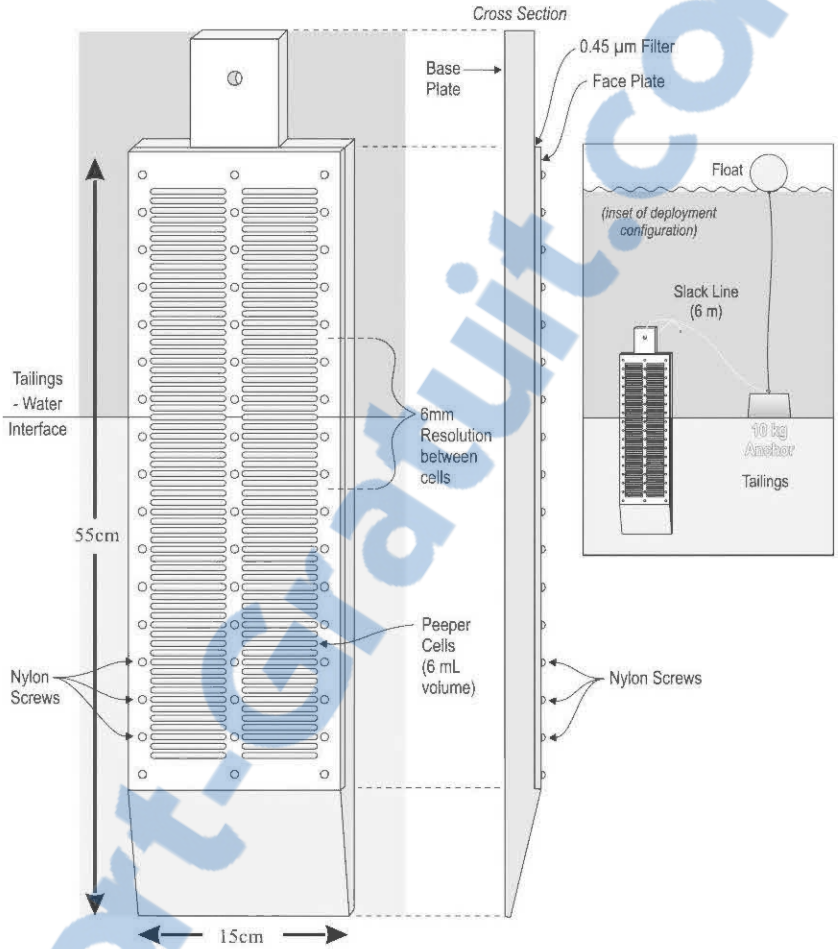


Figure 2.13 Schéma d'un dialyseur (Tirée de Martin *et al.*, 2003).

L'échantillonnage a été conduit à deux emplacements de la couverture : le premier, dans une zone où la couverture d'eau était peu profonde (1,8 m) et le second, dans une zone où la couverture était profonde (5 m). L'analyse des eaux a porté, entre autres, sur le pH et les métaux. Les résultats ont montré un pH compris entre 7,2 et 8,6 dans la couverture d'eau et entre 8,5 et 9,5 dans les eaux interstitielles au deux points de mesure. Les concentrations des métaux libérés dans la couverture d'eau à partir des résidus miniers étaient faibles : les concentrations de Fe étaient en dessous de leur limite de détection; le Mn était inférieur à 0,5 mg/L; le Cu inférieur à 0,02 mg/L; le Zn inférieur 0,5 mg/L; le Sb inférieur à 0,04 mg/L; l'arsenic négligeable; et le cyanure inférieur à 0,06 mg/L.

Rapport-Gratuit.com

Une étude géochimique de la couverture d'eau du recouvrement en eau du site Stekenjokk (Suède) a été réalisée par Holmström et Ohlander (1999). La description du site et des résidus est présente à la section 2.2.2. Des échantillons d'eau de la couverture et des eaux interstitielles dans les résidus ont été prélevés et analysés à deux points dans la couverture d'eau. Les résultats obtenus ont montré que les concentrations de Cu, Zn, Cd, Ni, Mg, Si, Ba, Sr, Ca, et S étaient plus élevées dans les eaux interstitielles que dans la couverture d'eau. Ces résultats suggéraient, selon les auteurs, que la diffusion des métaux avait lieu des résidus vers la couverture d'eau au-dessus des résidus, et que cette diffusion des métaux était confirmée par la présence des éléments Ca, Mg, S, Si, Ba et Sr dans la couverture d'eau. En effet, ces éléments provenaient d'une ancienne eau de procédé prise au piège dans les résidus, et leur présence dans la couverture d'eau ne pouvait venir que de leur diffusion à partir des résidus.

Vézina et Amyot (1999) ont réalisé une étude pour vérifier l'efficacité du recouvrement en eau par inondation des résidus miniers de la mine Solbec-Cupra. Ces investigations ont porté, entre autres, sur la qualité de l'eau du recouvrement et de l'effluent, et des eaux interstitielles. Des échantillons d'eau ont été prélevés en surface, à la mi-profondeur du recouvrement et à environ 150 mm du fond du bassin d'eau à 6 stations. Le pH, la conductivité électrique et les métaux ont été analysés. Pour les eaux interstitielles, des échantillons d'eau ont été prélevés dans les piézomètres installés au travers des résidus. Les résultats obtenus montraient que l'eau du recouvrement respectait les exigences de la *Directive 019* sur l'industrie minière; le pH par exemple était maintenu près de la neutralité (autour de 7). Dans les eaux interstitielles par contre, on a assisté à une migration du Fe, Zn et Cu de la couche des résidus oxydés vers la couche sous-jacente non oxydée. Des concentrations de Fe et Zn ont également été mesurées dans la couche de tourbe, qui compose la première strate naturelle sous les résidus miniers. Cependant, les résultats ont en général montré que l'inondation était efficace pour atténuer la génération du DMA.

Vigneault *et al.* (2001) ont réalisé une étude sur deux cellules expérimentales de terrain dans lesquelles des résidus frais ont été submergés sous 30 cm d'eau. La description des résidus est déjà présentée à la section 2.2.3. De 1996 à 1998, la chimie de l'eau interstitielle près de

l'interface eau–résidus a été déterminée *in situ* par des dialyseurs. Ces derniers étaient insérés verticalement dans les résidus en quatre points dans chacune des cellules expérimentales. Une fois en place, chaque dialyseur s'étendait de 7 à 9 cm au-dessus de l'interface eau–résidus, les 21 à 23 cm restants demeuraient dans les résidus. Ils étaient maintenus pendant deux semaines pour leur permettre d'être en équilibre avec le milieu. Après la période équilibre, le dialyseur était retiré, rincé avec l'eau de la couverture et échantillonné immédiatement. Les échantillons étaient par la suite analysés pour déterminer les concentrations des métaux. Les résultats de cette étude ont montré qu'il y avait absence d'oxygène dissous dans les résidus. Cette absence a été démontrée par l'apparition d'acide sulfurique H_2S, et des concentrations élevées de Fe^{2+} et Mn^{2+} à des profondeurs de moins de 1,5 cm en dessous de l'interface eau–résidus. En effet, la présence de ces éléments prouve l'existence de conditions anoxiques à cette profondeur. Cependant, il y avait la preuve évidente d'oxydation superficielle des résidus à l'échelle du millimètre. La mobilisation de Cd et Zn de cette couche superficielle est soulignée par la présence des concentrations de ces deux métaux dans l'eau interstitielle des résidus. Contrairement au Cd et au Zn, la mobilisation de Cu des résidus était moins évidente.

Une étude géochimique a été réalisée dans la cellule de recouvrement en eau 14 (64 ha) du site Quirke près d'Elliot Lake en Ontario (Canada) par Peacey, Yanful et Payne (2002). Des stériles préoxydés de la mine souterraine d'uranium ont été submergés pour limiter la génération du DMA. Les stériles contenaient de 1 à 8% de pyrite. L'objectif de cette étude était de développer une compréhension des processus géochimiques, qui contrôlent l'évolution des eaux interstitielles et de la couverture, et aussi d'évaluer les flux à travers l'interface eau–résidus. Cette étude incluait des mesures de terrain des paramètres physico-chimiques et des modélisations géochimiques. Dans la cellule de recouvrement en eau 14 du site Quirke, trois piézomètres ont été installés dans les résidus au travers de la couverture d'eau, afin de prélever les eaux interstitielles. Les eaux de la couverture et les eaux interstitielles furent par la suite analysées. Les résultats ont indiqué que l'inondation des stériles préoxydés pouvait conduire à la libération initiale de solides dissous, de l'acidité et des sulfates des stériles vers le couvert d'eau. En effet, après la première inondation dans la cellule de recouvrement en eau 14 du site Quirke avec de l'eau douce de lac, l'acidité, les

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

sulfates et les solides totaux dissous (TDS) étaient initialement élevés (120,4 et 554 mg/L, respectivement), et le pH était entre 3 et 4. Cependant, l'impact global de cette libération sur la couverture d'eau était minimal à long terme, par suite de la dilution attribuable aux apports d'eau douce, des précipitations et au lessivage des produits oxydés vers l'eau interstitielle (Peacey, Yanful et Payne, 2002). Les profils des métaux dissous et du sulfate à travers l'interface sur le site de l'étude ont indiqué un fort degré de stabilité chimique. Les concentrations de soluté dans le couvert d'eau étaient homogènes et généralement faibles à toutes les stations. Les profils dans l'eau interstitielle ont révélé, quant à eux, une légère remobilisation de métaux traceurs et de radionucléides dans l'eau interstitielle peu profonde (≈0,15 m).

Dans la cellule de recouvrement en eau 14 du site Quirke près d'Elliot Lake en Ontario (Canada), Martin *et al.* (2003) ont également utilisé des dialyseurs (Figure 2.13) pour évaluer la remobilisation du radium des résidus miniers pyriteux uranifères préoxydés vers la couverture d'eau. Les principaux objectifs étaient de quantifier la direction et l'ampleur des flux de radium, et d'élucider les mécanismes contrôlant le radium (^{226}Ra) ainsi que sa mobilité dans les zones de végétation et sans végétation. Dans la zone sans végétation, ^{226}Ra était remobilisé à une activité maximale de 5 Bq/l (becquerels par litre) dans les eaux interstitielles. Toutefois, l'activité invariante du ^{226}Ra à l'interface eau–résidus indiquait que les résidus peu profonds sans végétation ne contribuaient pas de manière significative au relargage de ^{226}Ra dans la couverture d'eau. Dans les zones avec végétation inversement, une remobilisation du ^{226}Ra dans les eaux de fond à des valeurs supérieures à 70 Bq/l a été observée. Le calcul des flux du ^{226}Ra a démontré que les résidus recouverts par de la végétation représentaient la principale source du ^{26}Ra dans les eaux du recouvrement en eau de la cellule 14. Les auteurs ont aussi montré que la remobilisation du ^{226}Ra était régie par la dissolution d'une phase de sulfate de baryum. La modélisation à l'aide du logiciel PHREEQC (Parkhurst, Thorstenson et Plummer, 2000) a confirmé ce principe et a montré que la remobilisation du ^{226}Ra provenait d'une phase amorphe de barytine (sulfate de baryum) [(Ra, Ba) SO4] (Martin *et al*, 2003).

2.4.3 Modélisation géochimique

La géochimie des eaux dans le cas d'un recouvrement en eau peut être aussi étudiée à l'aide de modèles numériques. La modélisation est utile, et elle est fréquemment utilisée pour mieux visualiser et comprendre l'influence des différents paramètres intervenant dans les processus de génération du DMA. Un de ses avantages par rapport aux modèles de laboratoire et de terrain est que plusieurs scénarios peuvent être envisagés, avec une variété de conditions possibles. À partir d'un modèle conceptuel bien défini et de paramètres représentatifs, on peut obtenir des résultats de simulations, qui peuvent se rapprocher des observations de laboratoire ou de terrain. Par la suite, des calculs peuvent être réalisés pour des périodes supérieures à la durée de suivi des tests au laboratoire ou sur le terrain.

De nombreux logiciels existent pour effectuer des modélisations géochimiques, mais le choix est fonction des objectifs de la modélisation. Les modèles de transport réactif sont les modèles les plus utilisés pour l'étude de la géochimie des eaux liées au DMA. Ils visent généralement à représenter les phénomènes géochimiques (oxydation, neutralisation, précipitation, etc.) et physiques (transport de l'eau et des gaz) pour prédire le comportement des aires d'entreposage de rejets miniers (rejets de concentrateur et stériles miniers). Ils peuvent également être utilisés pour simuler des scénarios de restauration et estimer l'impact de cette restauration sur la qualité de l'eau à long terme. Parmi ces logiciels, on peut citer MINTOX, qui est la combinaison des modèles numériques PYROX et MINTRAN. PYROX est un modèle numérique 1D de diffusion de l'oxygène et d'oxydation des sulfures en milieu variablement saturé (Walter *et al.*, 1994ab). MINTRAN est un modèle de transport réactif 2D, qui comprend le modèle de transport PLUME2D (Frind *et al.*, 1990) et le modèle géochimique de spéciation/transfert de masse MINTEQA2 (Allison, Brown et Nova-Gradac, 1991). On peut également mentionner le code MIN3P (Mayer, 2000). Ces modèles sont brièvement décrits ci-dessous.

MINTOX (Wunderly *et al.*, 1996) est un modèle numérique de transport réactif, qui a été conçu pour simuler l'oxydation cinétique contrôlée de minéraux sulfureux et le transport réactif ultérieur de produits de l'oxydation des sulfures et d'autres constituants dissous à

travers des résidus et des sédiments d'aquifères. MINTOX tient compte de facteurs prérequis avant la modélisation, comme la conception d'un modèle conceptuel, qui inclut la connaissance des minéraux primaires et secondaires qui sont initialement présents dans les matériaux poreux et qui peuvent précipiter ou se dissoudre. D'autres facteurs importants incluent la connaissance de la géochimie de l'eau et des conditions de flux d'eaux souterraines. MINTOX a été utilisé par Bain *et al.* (2000) pour simuler l'oxydation des sulfures et le transport réactif bidimensionnel des produits de l'oxydation des sulfures de nickel des résidus miniers du parc à résidus de Rim près de Sudbury en Ontario. Le modèle de simulation était en accord avec le modèle conceptuel du site d'étude. MINTEQA2 a été utilisé dans cette étude pour déduire les phases minérales, qui pouvaient limiter potentiellement la concentration aqueuse des constituants dissous. Les simulations ont donné des résultats proches des observations sur le terrain pour une période d'au moins 35 années d'oxydation. Les résultats obtenus montraient une correspondance entre les résultats de simulation et les observations de terrain, ce qui suggérait que MINTOX était un outil utile pour comprendre l'ordre complexe de mécanismes physiques et chimiques, qui contrôlaient le développement de panache dans les environnements présentant du DMA.

Dans l'étude géochimique réalisée par Peacey, Yanful et Payne (2002), afin d'évaluer l'évolution de la qualité de l'eau du recouvrement en eau de la cellule 14 située près de Elliot Lake en Ontario (Canada), des modélisations géochimiques ont été effectuées. Le logiciel MINTEQA2 (Allison, Brown et Nova-Gradac, 1991) a été utilisé dans cette étude pour déterminer et pour mieux comprendre les minéraux qui peuvent contrôler les concentrations des espèces minérales dissoutes dans les eaux interstitielles des résidus sous l'eau. Les indices de saturation ont été calculés avec MINTEQA2, et les valeurs indiquent si oui ou non la phase minérale qui précipite ou qui est dissoute correspond aux données d'entrées dans le logiciel. Les données de terrain sur l'eau de la couverture et les eaux interstitielles obtenues auparavant (10 novembre 1999) ont été utilisées dans la modélisation d'équilibre géochimique de la couverture d'eau et des eaux interstitielles. Ces données ont permis de calculer les indices de saturation des différents minéraux et de confirmer la présence de minéraux, qui pourraient contrôler les concentrations de constituants dissous. Les résultats

avec le logiciel MINTEQA2 ont montré que les indices de saturation obtenus des phases minérales identifiées étaient soit proches, soit supérieurs à zéro. En effet, les eaux interstitielles étaient sursaturées en minéraux de fer (ferrihydrite, jarosite) et en hydroxyde d'aluminium (Gibbsite, Boehmite). Ces minéraux étaient les produits d'altération des minéraux primaires comme la pyrite et les aluminosilicates, qui étaient les minéraux très abondants dans les résidus miniers. La présence de pyrite a été confirmée par microscopie électronique et les aluminosilicates, par diffraction aux rayons X. Les eaux interstitielles étaient par contre sous-saturées en sulfures, ce qui, selon les auteurs, signifiait que les phases de minéraux sulfureux étaient thermodynamiquement instables.

PYROX (Wunderly *et al.*, 1996) est un modèle initialement développé pour simuler en 1D la diffusion d'oxygène dans la zone vadose des résidus miniers et l'oxydation ultérieure de minéraux sulfureux, comme la pyrite. PYROX détermine le coefficient de diffusion de l'oxygène sur la base de la teneur en eau, de la porosité et de la température des résidus miniers. Les résultats de modèle incluent les masses d'H^+, SO_4^{2-}, Fe^{2+} et Fe^{3+} obtenues par l'oxydation de sulfures dans un profil vertical de résidus miniers dans la zone non saturée. Dans l'étude sur l'efficacité de diverses couvertures sur le taux d'oxydation des résidus miniers, Romano *et al.* (2003) ont utilisé le modèle PYROX pour simuler différents scénarios de restauration pour des résidus potentiellement générateurs de DMA. Les quatre scénarios modélisés par PYROX étaient les suivants : (1) les résidus exposés (scénario ET) ; (2) des résidus couverts par 1 m de CFT (cassiterite float tails) exposé (scénario EC) ; (3) des résidus couverts par une couverture permanente d'eau (scénario FT) ; et (4) des résidus couverts par 1 m de CFT + une couverture permanente d'eau (scénario FC). Les résultats (Figure 2.14) de la modélisation, après une période de simulation de 100 ans, ont montré qu'une couche de 1 m de CFT + une couverture permanente d'eau était le scénario le plus efficace pour minimiser le taux de l'oxydation des sulfures (oxydation réduite de 99,8%), suivis de la couverture d'eau seule (oxydation réduite de 99,1%), suivie par la couverture de CFT seule (oxydation réduite de 75-82%).

Le logiciel MIN3P (Mayer, 2000) est un modèle de transport réactif en 1D, 2D et 3D pour des milieux poreux variablement saturés. MIN3P inclut le transport par advection-diffusion dans la phase aqueuse et le transport diffusif dans la phase gazeuse. Les réactions d'équilibre considérées sont l'hydrolyse, la complexation, l'oxydoréduction, la dissolution/précipitation, les échanges d'ions et la dissolution de gaz. Le code MIN3P a été utilisé pour évaluer les effets potentiels de la fermeture de la mine Königstein, située en Allemagne, sur l'évolution géochimique d'un aquifère localisé à proximité de la mine (Bain *et al.*, 2001).

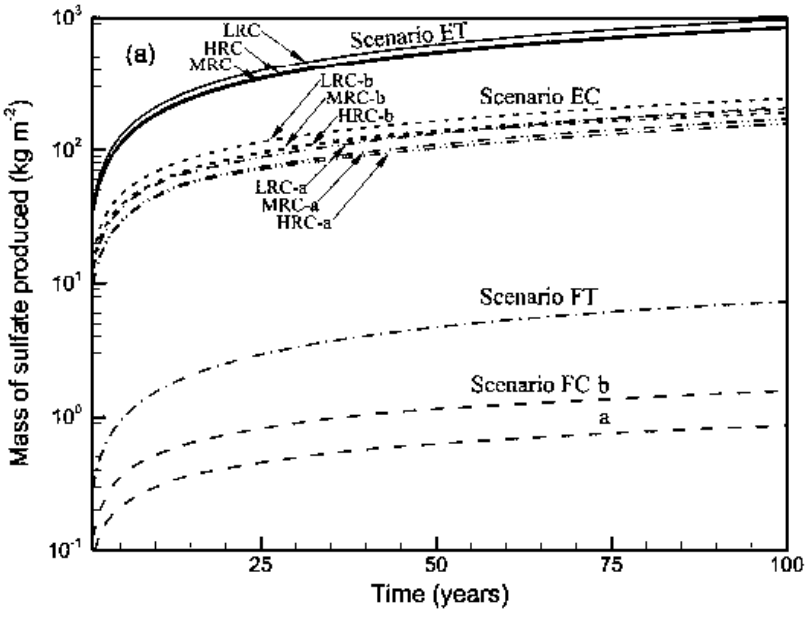


Figure 2.14 Modélisation géochimique de 4 scénarios de recouvrement (Tirée de Romano *et al.*, 2003).

Molson *et al.* (2004) ont également utilisé MIN3P pour simuler le drainage minier acide généré par des rejets miniers réactifs. Les simulations ont permis de montrer que l'oxydation des sulfures et la production de DMA sur le site de Manitou près de Val-d'Or (Québec) sont considérablement réduites avec l'utilisation d'une couverture avec effets de barrière capillaire. Ouangrawa (2007) a également utilisé MIN3P dans le but de mieux comprendre les résultats obtenus au laboratoire et d'évaluer l'efficacité de la méthode de la nappe surélevée dans la prévention du DMA. Les propriétés des matériaux, mesurées au laboratoire,

ont été utilisées pour simuler le comportement des résidus avec une nappe surélevée pour différents scénarios analysés. Les résultats obtenus lors des essais en colonnes ont montré que le maintien des résidus à un degré de saturation élevé permettait de limiter la diffusion et la consommation d'oxygène par les minéraux sulfureux. En effet, plus le degré de saturation était élevé et plus le coefficient de diffusion (D_e) était faible.

Les divers cas de modélisation évoqués ci-dessus illustrent les possibilités maintenant offertes par les simulations géochimiques, qui permettent une analyse du transport réactif dans le cas du DMA. À la base, ces modèles furent créés pour modéliser les écoulements et le transport de réactifs (polluants) dans les eaux souterraines. Ils ont par la suite été adaptés dans le cas du DMA. Cependant, ces logiciels de modélisation ont été très peu utilisés dans le cas de systèmes de recouvrement en eau utilisés pour limiter le DMA. Les modélisations faites impliquaient très souvent des modèles de spéciation, comme c'est le cas avec le logiciel MINTEQA2.

2.5 Besoin en recherche

Les travaux présentés dans la revue de la littérature montrent que la technique de recouvrement en eau a été largement étudiée. Ces travaux se sont intéressés au transport de l'oxygène de l'air vers l'eau, et de la couverture d'eau vers les résidus (section 2.2). La majorité des études ont calculé le flux diffusif d'oxygène dissous dans les résidus à partir de la première loi de Fick, en déterminant le gradient de concentration d'oxygène à partir des profils verticaux d'OD dissous mesurés. Lorsque ces profils ne sont pas connus, le calcul du flux d'oxygène nécessite la connaissance du coefficient du taux de réaction K_r (en plus du coefficient de diffusion D_e qui peut être estimé). Ce coefficient du taux de réaction K_r (impliqué dans les équations de transport d'oxygène) a été déterminé à partir d'essais en flacons agités et en cellules humides. Avec l'hypothèse que le coefficient ainsi obtenu n'est pas assez représentatif de la réactivité des résidus stables placés sous un recouvrement en eau, des travaux de recherche s'avèrent nécessaires, afin de proposer une approche pour déterminer un paramètre K_r plus représentatif des conditions de recouvrement en eau. La

connaissance de K_r permet d'évaluer le flux diffusif à l'interface eau–résidus avec beaucoup plus de flexibilité (étude de scénarios variés).

Les études présentées dans la littérature se sont également penchées sur le phénomène d'érosion et de remise en suspension des résidus sous l'eau en déterminant la contrainte de cisaillement induite par les vents à l'interface eau-résidus et de la contrainte de cisaillement critique des résidus de manière théorique et expérimentale. Des études ont aussi été consacrées à l'évaluation de l'efficacité d'un recouvrement en eau en termes de qualité géochimique des eaux du recouvrement qui résulte de l'impact de la diffusion moléculaire de l'oxygène dissous et de l'érosion et de la remise en suspension des résidus sous l'eau. Néanmoins, l'impact de ces facteurs pouvant affecter l'efficacité d'un recouvrement en eau dépend de la particularité d'un site. En effet, le site d'étude choisi pour ce projet, Don Rouyn, présente des caractéristiques particulières. Ce site se distingue des autres sites de recouvrement en eau connus dans la littérature par sa topographie, sa superficie et la teneur en minéraux sulfureux des résidus. En effet, comparativement aux sites dont les rejets sont entreposés dans des bassins d'eau ceinturés par des digues, le site Don Rouyn était une ancienne mine à ciel ouvert dans un gisement de type porphyre cuprifère. Cette fosse confinée par des parois rocheuses (GEOCON, 1997b) ayant des contours irréguliers a té inondée entièrement et a servi à entreposer les résidus sulfureux de la mine Gallen sous l'eau, afin de prévenir la production du DMA.

Une autre particularité du site est sa superficie (7,7 ha), qui est considérée petite par rapport à la plupart des autres sites de recouvrement en eau. On peut citer à titre d'exemple les sites Louvicourt au Québec, avec 150 ha (Vigneault, Kwong et Warren, 2007), Shebandowan en Ontario, avec 115 ha (Kachhwal, Yanful et Rennie, 2010b; Kachhwal, Yanful et Lanteigne, 2010), Quirke Waste Management Area en Ontario, avec 192 ha (Adu-Wusu, Yanful et Mian, 2001), Heath Steele au Nouveau-Brunswick, avec 215 ha (Mian et Yanful, 2004), et Stekenjokk en Suède, avec 110 ha (Holmström et Öhlander, 1999). Cette faible superficie du site Don Rouyn fait que le fetch F (équations 2-17 à 2-20 et 2-27) est également plus petit que celui des autres sites de recouvrement en eau, ce qui peut théoriquement amoindrir l'effet

des mécanismes hydrodynamiques. Quant à la teneur en pyrite des résidus sous le recouvrement en eau, les analyses réalisées par GEOCON (1997b) indiquaient 95%. Les analyses réalisées par Catalan (1998), deux ans avant la fin de la déposition des rejets qui a eu lieu en 2000, indiquaient des proportions en pyrite d'environ 76% en moyenne. Des analyses réalisées sur 4 échantillons prélevés à l'été 2005 montraient des proportions en pyrite très élevées, comprises entre 86 et 96%, avec une moyenne de 91% (Mbonimpa *et al.*, 2008). À titre de comparaison, les résidus de Louvicourt contiennent 30 à 50% de pyrite (Li, Aubé et St-Arnaud, 1997) et ceux de Stekenjokk 35% de pyrite (Holmström et Öhlander, 1999). Compte tenu des spécificités géométriques du site Don Rouyn et de la teneur en pyrite très élevée des résidus de ce site, il serait intéressant d'étudier le comportement de ce recouvrement *in situ* d'une part, et d'autre part d'étudier le comportement de résidus hautement sulfureux submergés sous des recouvrements soumis à différentes conditions hydrodynamiques à l'échelle de laboratoire.

2.6 Références

Aachib, M., Mbonimpa, M., Aubertin, M. 2004. "Measurement and prediction of the oxygen diffusion coefficient in unsatured media, with applications to soil cover". *Water, Air, and Soil Pollution*, 156:163−193.

Adu-Wusu, C., Yanful, E.K., Mian, M.H. 2001. "Field evidence of resuspension in a mine tailings pond". *Canadian Geotechnical Journal,* 38: 796−808.

Allison, J.D., Brown, D.S., Nova-Gradac, K.J. 1991. *MINTEQA2rPRODEFA2, A geochemical assessment model for environmental systems: version 3.0 user's manual.* Athens, GA: Environmental Research Laboratory, Office of Research and Development, U.S. EPA, 106p.

Atkins, R.J., Hay, D., Robertson, J. 1997. "Shallow water cover design methodology and field verification". *4th International Conference on Acid Mine Drainage,* May 31-June 6, *Vancouver*, Canada, 211−228.

Aubé, B.C, St-Arnaud, L.C., Payant S.C., Yanful, E.K. 1995. "Laboratory evaluation of the effectiveness of water covers for preventing acid generation from pyritic rock". *Mining and the Environment Conference*, May 28-June 1, Sudbury, Ontario, Canada, 495−504.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L. 2002. *Environnement et gestion des rejets miniers.* CD-ROM, Les Presses Internationales Polytechnique, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.

Rapport-Gratuit.com

Aubertin, M., Chapuis, R.P., Aachib, M., Bussière, B., Ricard, J-F., Tremblay, L. 1995. "Évaluation en laboratoire de barrières sèches construites à partir de résidus miniers". *MEND report 2.22.2a,* 164p.

Bain, J.G., Blowes, D.W., Robertson W.D. Frind, E.O. 2000. "Modelling of sulfide oxidation with reactive transport at a mine drainage site". J*ournal of Contaminant Hydrology,* 41: 23−47.

Bain, J.G., Mayer, K.U., Blowes, D.W., Frind, E.O., Molson, J.W., Kahnt, R. Jenk, U. 2001. "Modeling the closure-related geochemical evolution of groundwater at a former uranium mine". *Journal of Contaminant Hydrology*, 52: 109−135.

Berg, P., Risgaard-Pertersed, N., Rysgaard, S. 1998. "Interpertation of measured concentration profiles in sediment pore water". *Limnology and oceanography*, 43: 1500−1510.

Blanchette, M.C., Davé, N.K., Kwong, Y.T.J., Tisch, B. 2001. "Evaluation of man-made subaqueous disposal option as a method of controlling oxidation of sulfide minerals: column studies". *MEND report 2.12.1e*, 112p.

Catalan, L.J.J., Kumari, A. 2005. "Efficacy of lime mud residues from kraft mills to amend oxidized mine tailings before permanent flooding". *Journal of Environmental Engineering and Science,* 4: 241−256.

Catalan, L.J.J. 1998. "Prédiction à long terme de la qualité de l'eau dans l'ancienne carrière Don Rouyn". Rouyn-Noranda, Québec, Fonderie Horne, 77p.

Catalan, L.J.J., Yanful, E.K. 2002. "Sediment-trap measurements of suspended mine tailings in shallow water cover". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 19−30.

Chien, N., Wan, Z. 1998. *Mechanics of sediment transport.* Virginia: Reston, VA: ASCE Press.

CERC. 1984. *Shore protection manual.* Army Corps of Engineers, Coastal Engineering Research Center, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C. USA.

CERC. 2002. *Coastal engineering manual.* U.S. Army Corps of Engineers, Coastal Engineering Research Center, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C. USA.

Dave, N.K., Krishnappan, B.G., Davies, M., Reid, I. 2003. "Erosion characteristics of underwater deposited mine tailings". *Mining and the Environment Conference*, May 25-28, Sudbury, Ontario, Canada, 11p.

Davé, N.K., Lim, T.P., Horne, D., Boucher, Y., Stuparyk, R. 1997. "Water cover on reactive tailings and wasterock: Laboratory studies of oxidation and metal release characteristics." *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, Canada, 779−794.

Elberling, B., Damgaard, L.R. 2001. "Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulphide tailings". *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 65: 1897−1905.

Frind, E.O., Duynisveld, W.H.M., Strebel, O., Boettcher, J. 1990. "Modeling of multicomponent transport with microbial transformation in groundwater: the Furhberg case". *Water Resources Research,* 26: 1707−1719.

GEOCON. 1997b. "Plan de restauration, ancienne carrière". Fonderie Horne, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, dossier M-6270 (601148).

HAY Consultants. 1996. "Shallow Water Covers - Equity Silver Base Information on Physical Variables". *MEND report 2.11.5ab*, 71p.

Holmes, P R., Crundwell, F. K. 2000. "The kinetics of the oxidation of pyrite by ferric ions and dissolved oxygen: An electrochemical study". *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64: 263−274.

Holmström, H., Öhlander, B. 1999. "Oxygen penetration and subsequent reactions in flooded sulphidic mine tailings: a study at Stekenjokk, northern Sweden". *Applied Geochemistry*, 14: 747−759.

Julien, M., Lemieux, M., Cayouette, J., Talbot, D. 2003. "Performance and monitoring of the Louvicourt mine tailings disposal area". *21st ICOLD Congress,* Montréal Québec, Canada.

Kachhwal, L.K., Yanful, E.K., Lanteigne, L. 2010. "Water cover technology for reactive tailings management: A case study of field measurement and model predictions". *Water Air Soil Pollution,* 214: 357−382.

Kachhwal, L.K., Yanful, E.K., Rennie, C.D. 2010b. "Field measurement of re-suspension in a tailings pond by acoustic and optical backscatter instruments". *63rd Canadian Geotechnical Conference & 6th Canadian Permafrost Conference,* September 12−16, Calgary, AB, Canada.

Karam, A., et Guay, R. 1994. "Inondation artificielle du parc à residus Solbec-Cupra: etudes microbiologiques et chimique". *MEND Report, 2.13.2c*, 79p.

Krishnappan, B.G., Marsalek, J. 2002. "Transport characteristics of fine sediments from an on-stream stormwater management pond". *Urban Water*, 4: 3−11.

Krishnappan, B.G. 1993. "Rotating circular flume". *ASCE Journal of Hydraulic Engineering*, 119: 658−767.

Lawrence, G.A., Ward, G.A., et MacKinnon, P.R.B.1991. "Wind wave-induced suspension of mine tailings in disposal ponds. A case study". *Canadian Journal of Civil Engineering*, 18: 1047−1053.

Lee, M. 2002. "Visualization of oxygen transfer across the air–water interface using fluorescence oxygen visualization method". *Water Research*, 36: 2140−2146.

Li, M., Aubé, B., St-Arnaud, L. 1997. "Consideration in the use of shallow water covers for decommissioning reactive tailings". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31−June 6, Vancouver, BC, Canada, 115−130.

Li, M., Catalan, L., St-Germain, P. 2000. "Rates of oxygen consumption by sulphidic tailings under shallow water covers - Field measurements and modelling." *5th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 20-26, Denver, USA, 913−920.

Li, M., St-Arnaud, L. 2000. "Reactivity assessment and subaqueous oxidation rate modelling for Louvicourt tailings- Final Report". *MEND report No. 2.12.1d,* Natural Resources Canada, CANMET, Ottawa, ON, Canada, 204p.

Liss, P.S. 1973. "Processes of gas exchange across an air–water interface". *Deep-Sea Research,* 20: 221−238.

Lorke, A., Müller, B., Maerki, M., Wü, A.2003. "Breathing sediments: The control of diffusive transport across the sediment–water interface by periodic boundary-layer turbulence". *Limnology Oceanography*, 48: 2077−2085.

Martin, A.J., Pedersen, T.F., Crusius, J., McNee J.J., Yanful, E.K. 2003. "Mechanisms of metal release from subaqueous mine waste at circum-neutral pH-Examples from four

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

case studies". *6th International Conference on Acid Mine Drainage,* 12−18 July, Cairns, QLD, 10p.

Mayer, K.U. 2000. *MIN3P V1.0 User Guide.* University of Waterloo, Department of Earth Sciences.

Mbonimpa, M., Awoh, A. S., Beaud, V., Bussière, B., Leclerc, J. 2008. "Spatial water quality distribution in the water cover used to limit acid mine drainage generation at the Don Rouyn site (QC, Canada)". *61th Canadian Geotechnical Conference and the 9th Joint CGS/IAH-CNC Groundwater Conference*, 21−24 September, Edmonton, AB, Canada, 855-862.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Aachib, M., Bussière, B. 2003. "Diffusion and consumption of oxygen in unsaturated cover materials". *Canadian Geotechnical Journal*, 40: 916−932.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Dagenais, A-M., Bussière, B., Julien, M., Kissiova, M. 2002. "Interpretation of field tests to determine the oxygen diffusion and reaction rate coefficients of tailings and soil covers." *55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conference,* October 20−23, Niagara Falls, Ontario, Canada. 147−154.

MEND. 2001. "MEND Manual: prevention and control". *MEND report 5.4.2d,* CANMET, Ottawa, Canada, 154 p.

Mian, M.F. 2004. "Erosion and resuspension of cohesive mine tailings". Ph.D thesis, London University of western Ontario, 434p.

Mian, M.H., etYanful, E.K. 2004. "Analysis of wind-driven resuspension of metal mine sludge in a tailings pond". *Journal of Environmental Engineering and Science*, 3:119−135.

Mian, M.F., Yanful, E.K. 2007. "Erosion characteristics and resuspension of sub-aqueaous mine tailings". *Journal of Environmental Engineering and Science,* 6: 175-190.

Mian, M.F., Yanful, E.K., Martinuzzi, R. 2007. "Measuring the onset of mine tailings erosion". *Canadian Geotechnical Journal*, 44: 473−489.

Mölder , E., Mashirin, A., Tenno, T. 2005. "Measurement of the oxygen mass transfer through the air–water interface ". *Environmental Science and Pollution Research*, 12: 66−70.

Morin, K.A. 1993. "Rates of sulfide oxidation in submerged environments: Implication for subaqueous disposal". *17th Annual British Columbia Mine Reclamation Symposium,* May 4-7, Port Hardy, BC, Canada, 235−247.

Molson, J.W., Frind, E.O., Aubertin, M., Blowes, D. 2004. *POLYMIN: A Reactive Mass Transport and Sulphide Oxidation Model*. École Polytechnique, Montréal : User Guide.

Ouangrawa, M. 2007. "Étude expérimentale et analyse numérique des facteurs qui influencent le comportement hydro-géochimique des résidus miniers sulfureux partiellement saturés". Ph D thesis, Montréal, École polytechnique de Montréal, Département des génies civil, géologique et des mines, 481 p.

Parkhurst, D.L., Thorstenson D.C., Plummer, L.N. 2000. "PHREEQC-A computer program for geochemical calculations". *US Geological Survey Water Resources Investigations Report.*

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Peacey, V., Yanful, E.K. 2003. "Metal mine tailings and sludge co-deposition in a tailings pond". *Water, Air, and Soil Pollution*, 145: 307−339.

Peacey, V., Yanful, E.K Payne, R. 2002. "Field study of geochemistry and solute fluxes in flooded uranium mine tailings". *Canadian Geotechnical. Journal,* 39: 357−376.

Rescan. 1996. "Geochemical assessment of Equity Silver tailings pond". *MEND Project 2.11.5c*, Vancouver, Canada, 123p.

Rolston, D.E., Glauz, R.D., Grundmann, G.L., Louie, D.T. 1991. " Evaluation of an i*n situ* method for measurement of gas diffusivity in surface soils". *Soil Science Society of America Journal*, 55: 1536−1542.

Romano, C.G., Mayer, K.U., Jones, D.R., Ellerbroek, D.A., Blowes, D.W. 2003. "Effectiveness of various cover scenarios on the rate of sulfide oxidation of mine tailings". *Journal of Hydrology,* 271: 171−187.

Samad, M.A., Yanful, E.K. 2005. "A design approach for selecting the optimum water cover depth for subaqueous disposal of sulfide mine tailings". *Canadian Geotechnical Journal,* 42: 207−228

Schladow, S.G., Lee, M., Hürzeler, B.E., Kelly, P.B. 2002. "Oxygen transfer across the air–water interface by natural convection in lakes". *Limnology and Oceanography,* 47: 1394−1404.

Simms, P.H., Yanful, E.K. St-Arnaud, L., Aubé, B. 2000. "A laboratory evaluation of metal release and transport in flooded pre-oxidized mine tailings". *Applied Geochemistry*, 15: 1245−1263.

Vézina, S., Amyot, G. 1999. "Le suivi de la restauration par inondation su parc à résidus miniers Solbec". *Rapport MEND 2000*, 13p.

Vigneault, B., Kwong, Y.T.J., Warren, L. 2007. "Assessing the long term performance of a shallow water cover to limit oxidation of reactive tailings at Louvicourt Mine". *MEND report 2.12.2*, 63p.

Vigneault, B., Campbell, P. G. C., Tessier, A., et De Vitre, R. 2001. "Geochemical changes in sulfidic mine tailings stored under a shallow water cover". *Water Research*, 35: 1066−1076.

Walter, A.L., Frind, E.O., Blowes, D.W., Ptacek, C.J. Molson, J.W. 1994a. "Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater: 1. Model development and evaluation". *Water Resources Research,* 30: 3137−3148.

Walter, A.L., Frind, E.O., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., Molson, J.W. 1994b. "Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater: 2. Metal mobility in aquifers impacted by acidic mine tailings discharge". *Water Resources Research,* 30: 3149−3158.

Williamson M. A., Rimstidt J. D. 1994. "The kinetics and electrochemical rate-determining step of aqueous pyrite oxidation". *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58: 5443−5454.

Wunderly, M.D., Blowes, D.W., Frind, E.O., et Ptacek, C.J. 1996. "Sulfide mineral oxidation and subsequent reactive transport of oxidation products in mine tailings impoundments: A numerical model". *Water Resources Research*, 32: 3173−3187.

Yanful, E.K., Mian, M.H. 2003. "The nature and implications of resuspension in subaqueous sulfide tailings". *6th International Conference on Acid Mine Drainage*, 12-18 July, Cairns, QLG, CD-rom, 1177−1183.

Yanful, E.K., Catalan, L.J.J. 2002. "Predicted and field measured resuspension of flooded mine tailings". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 341–351.

Yanful, E.K., Simms, P.H., Payant, S.C.1999. "Soil covers for controlling acid generation in mine tailings: A laboratory evaluation of the physics and geochemistry". *Water, Air, and Soil Pollution*, 114: 347–375

Yanful, E.K., Simms, P.H. 1997. "Review of water cover sites and research projects". *MEND report 2.18.1*, 136 p.

CHAPITRE III

DETERMINATION OF THE REACTION RATE COEFFICIENT OF SULPHIDE MINE TAILINGS DEPOSITED UNDER WATER

Cet article a été soumis au Journal of Environmental Management

Auteurs

Akué Sylvette Awoh[A,1,2], Mamert Mbonimpa[A,1], Bruno Bussière[A,1]

[A] Environment and Mine Research Institute, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), 445 boul. de l'Université, Rouyn-Noranda, Québec, J9X 5E4 Canada.

[1] NSERC Polytechnique-UQAT Industrial Chair, Environment and Mine Waste Management.

[2] Corresponding author: Phone: 819-762-0971 # 4314,
Email: akue-sylvette.awoh@uqat.ca

ABSTRACT

The efficiency of a water cover to limit dissolved oxygen (DO) availability to underlying acid-generating mine tailings can be assessed by calculating the DO flux at the tailings–water interface. Fick's equations, which are generally used to calculate this flux, require knowing the effective DO diffusion coefficient (D_w) and the reaction (consumption) rate coefficient (K_r) of the tailings, or the DO concentration profile. Whereas D_w can be accurately estimated, few studies have measured the parameter K_r for submerged sulphide tailings. The objective of this study was to determine K_r for underwater sulphide tailings in a laboratory experiment. Samples of sulphide mine tailings (an approximately 6 cm layer) were placed in a cell under a water cover (approximately 2 cm) maintained at constant DO concentration. Two tailings were studied: TA1 with high sulphide content (83% pyrite) and TA2 with low sulphide content (2.8% pyrite). DO concentration was measured with a microelectrode at various depths above and below the tailings–water interface at 1 mm intervals. Results indicate that steady-state condition was rapidly attained. As expected, a diffusive boundary layer (DBL) was observed in all cases. An iterative back-calculation process using the numerical code POLLUTEv6 and taking the DBL into account provided the K_r values used to match calculated and experimental concentration profiles. K_r obtained for tailings TA1 and TA2 were about 80 d^{-1} and 6.5 d^{-1}, respectively. For comparison purposes, K_r obtained from cell tests on tailings TA1 was lower than K_r calculated from the sulphate production rate obtained from shake-flask tests. Steady-state DO flux at the water–tailings interface was then calculated with POLLUTEv6 using tailings characteristics D_w and K_r. For the tested conditions, DO flux ranged from 608 to 758 $mgO_2/m^2/d$ for tailings TA1 and from 177 to 221 $mgO_2/m^2/d$ for tailings TA2. The impact of placing a protective layer of inert material over the tailings was also investigated for tailings TA1 (with high sulphide content). A protective

layer of only 5 cm reduced the DO flux into the tailings at about 5 $mg/m^2/d$, compared to 608 $mgO_2/m^2/d$ without a protective layer, or an approximately 99% reduction in flux.

Key words: tailings, high sulphide content, diffusive boundary layer, protective layer, dissolved oxygen, microelectrode, sulphate production rate

RÉSUMÉ

L'efficacité d'un recouvrement en eau à limiter la diffusion de l'oxygène dissous (OD) vers des résidus miniers potentiellement générateur de DMA peut être évaluée en calculant le flux d'OD à l'interface résidus–eau. Les équations de Fick, qui sont généralement utilisées pour calculer ce flux, nécessitent la connaissance du coefficient effectif de diffusion de l'OD (D_w) et du coefficient du taux de réaction (consommation) (K_r) des résidus, ou le profil de concentration OD. Alors que D_w peut être estimé avec précision, peu d'études ont déterminé le paramètre K_r pour des résidus sulfureux submergés. L'objectif de cette étude était de déterminer K_r pour les résidus sulfureux submerges à l'aide d'essai en cellule au laboratoire. Des échantillons de résidus miniers sulfureux (une couche d'environ 6 cm) ont été placés dans une cellule sous une couverture d'eau (environ 2 cm) maintenue à une concentration en OD constante. Deux résidus ont été étudiés : des résidus minier très sulfureux TA1 (83% pyrite) et des résidus miniers faiblement sulfureux TA2 (2,8% de pyrite). Les concentrations en OD ont été mesurées à l'aide d'une microélectrode à différentes profondeurs au-dessus et en dessous de l'interface résidus–eau à intervalles de 1 mm. Les résultats indiquent que l'état stationnaire a été rapidement atteint. Comme prévu, une couche limite de diffusion (diffusive boundary layer DBL) a été observée pour tous les profils. Un processus itératif de rétrocalcul utilisant le code numérique POLLUTEv6 et prenant en compte le DBL a été utilisé pour déterminer K_r. Le coefficient K_r a été défini pour chaque matériau, en comparant le profil d'OD mesuré au profil d'OD calculé à l'aide du code POLLUTEv6. Les valeurs de K_r obtenues pour les résidus TA1 et TA2 étaient respectivement d'environ 80 j^{-1} et 6,5 j^{-1}. Pour des fins de comparaison, K_r obtenu à partir d'essais en cellule pour les résidus submergés TA1 était inférieur à K_r calculé à partir du taux de production de sulfate obtenu à l'aide des essais en flacons agités. En condition stationnaire, le flux OD à l'interface eau–résidus a ensuite été calculé avec POLLUTEv6 en utilisant les caractéristiques des résidus D_w et K_r. Pour les conditions testées, le flux d'OD variait de 608 à 758 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus TA1 et de 177 à 221 $mgO_2/m^2/j$ pour les résidus TA2. L'impact de la mise en place d'une couche protectrice de matériau inerte au-dessus des résidus a également été étudié pour les résidus très sulfureux TA1. Une couche de protection de seulement 5 cm a permis de réduire le flux d'OD dans les résidus à environ 5 $mgO_2/m^2/j$, par rapport à 608 $mgO_2/m^2/j$ sans couche de protection, soit une réduction d'environ 99% du flux.

Mots clés: résidus miniers hautement sulfureux, couche limite de diffusion, couche protectrice, oxygène dissous, microélectrodes, taux de production de sulfate, coefficient du taux de réaction

3.1 Introduction

One of the most effective techniques to prevent acid mine drainage (AMD) is to submerge the sulphide tailings under an optimally designed water cover. The efficiency of the water cover to limit dissolved oxygen (DO) availability to underlying tailings depends on the molecular diffusion of dissolved oxygen (DO) in the water cover and in the water-filled spaces in the tailings. In water covers, oxygen is first transferred from the air into the water through the water–air interface. The oxygen transfer at the air–water interface is a complex process that depends on the oxygen concentration gradient between the air and water phases, temperature, turbulence (wind-induced mixing of water), and the transfer coefficient of oxygen between air and water (e.g., Liss, 1973; Li, Aubé and St-Arnaud, 1997; Lee 2002; Schladow *et al.*, 2002; Mölder, Mashirin and Tenno, 2005). The dissolved oxygen then diffuses through the water column until it reaches the tailings–water interface. Vertical transport of DO through the water cover depends on the molecular diffusion of DO in water, which is controlled by the DO diffusion coefficient in water D_w^0 ($\approx 2.5\times10^{-9}$ m^2/s at 25°C), which is about 10 000 times lower than the oxygen diffusion coefficient in air (D_a^0). The DO then diffuses through the tailings, where it is consumed. This transport process is controlled by the effective DO diffusion coefficient (D_w) in the pore water space and the reaction rate coefficient (K_r) of the sulphide tailings. When D_w and K_r are known, the DO flux in the sediment at the tailings–water interface required to assess the cover efficiency can be calculated using numerical or analytical solutions of Fick's laws and considering different initial and boundary conditions.

Several laboratory and/or field and/or numerical studies were conducted on DO diffusion in submerged sulphide mine tailings (e.g., Rescan, 1996; Davé *et al.*, 1997; Li, Aubé and St-Arnaud, 1997; Catalan, 1998; Holmström and Ohlander, 1999; Li and St-Arnaud, 2000; Blanchette *et al.*, 2001; Elberling and Damgaard, 2001; Vigneault *et al.*, 2001). These studies are briefly described next

Rescan (1996) measured DO concentrations in the water cover of the Equity Silver site in British Columbia (Canada), where submerged tailings contained pyrite (5-10%),

arsenopyrite, and pyrrhotite. DO profiles were determined in the sediment at shallow water depth (1.8 m) and at deep water depth (5 m). DO concentrations in tailings pore waters were measured with microelectrodes inserted through peepers. Results showed that DO concentrations in the zone close to the tailings–water interface were around 5 mg/L at both measurement depths and decreased thereafter below the interface until reaching zero or near-zero at depths of 6 to 7 cm. DO fluxes at the tailings–water interface were assessed using the oxygen gradient (Fick's first law) obtained graphically on DO profiles. DO Fluxes of 31 $mgO_2/m^2/d$ and 14 $mgO_2/m^2/d$ were obtained for shallow and deep water depths, respectively.

Davé *et al.* (1997) studied DO diffusion in various combinations of water covers using laboratory lysimeter column tests. Four types of tailings obtained from INCO's Copper Cliff nickel and gold mine, Sudbury, Ontario (Canada) were used. These included fresh, partially oxidized and weathered, pyrrhotite and low sulfur tailings containing 3%S, 3%S, 10%S and 1%S, respectively. Natural lake water was used for the water cover, with two cover depths of 0.5 m and 1 m. Mixed (circulated) and unmixed (un-circulated) water cover conditions were studied. Water samples were drawn by syringe from various ports and DO concentration was measured using a DO sensing membrane probe. At a given time, DO concentration was fairly constant along the water column depth for all tests, irrespective of water cover depth (0.5 m or 1 m) or mixing condition, i.e. no DO concentration gradient was observed in the water cover except near the water–tailings interface. However, in the un-circulated water cover condition, DO concentration in the cover water decreased with time, from 9.5 mg/L at the start of the experiment to 6.5-7.0 mg/L. DO concentration in pore water decreased rapidly and was consumed within the first 10 cm from the tailings–water interface for all combinations studied.

Holmström and Öhlander (1999) measured DO profiles *in situ* in a water cover at Stekenjokk (Sweden) at two stations. Water cover thickness varied from 0.6 to 9 m, with an average of 2 m. The water depths at Stations 1 and 2 were 9 m and 2 m, respectively. The tailings contained about 35% sulphides; mainly pyrite, but chalcopyrite, sphalerite, pyrrhotite, and galena also occurred. The tailings were covered with a 0.5-cm-thick layer of organic matter.

DO profiles indicated well-mixed water cover with homogeneous saturated DO concentrations at about 11.4 mg O_2/L for temperatures around 4 °C. Two cores of undisturbed tailings were recovered at the two stations and used to determine pore water DO profiles in the laboratory using a microelectrode coupled with a micromanipulator. DO profiles within the tailings showed that DO was consumed (up to 0 mg/L) down to depths of 11-17 mm.

Microscale DO profiles were determined in the laboratory using columns filled with undisturbed tailings from the Nanisivik mine in Nunavut (Canada) (Elberling and Damgaard, 2001). Tailings exposed to atmospheric O_2 for several years contained 40 to 75% pyrite, and tailings that were never exposed to the atmosphere 70 to 85% pyrite. The water cover was 10 cm thick. A current of air was maintained on the water surface to ensure mixing. DO concentration in the cover and pore water was determined using an OX10 Clark-type oxygen microsensor (Unisense, Denmark). Results showed constant DO concentration in the water cover (indicating a well-mixed cover), except for a 0.5 mm–thick diffusive boundary layer (DBL) above the tailings–water interface, where DO concentration decreased linearly up to the tailings–water interface, corresponding to a DO flux of 35 (±4) mmolO_2/m^2/d or 1120 (±128) mgO_2/m^2/d for the old tailings and 40 (±6) mmolO_2/m^2/d or 1280 (±192) mgO_2/m^2/d for fresh tailings. DO was fully consumed in the tailings at a depth of 1.7 mm. Additional microscale profiles were also made *in situ*. The depth of DO depletion observed in the field and laboratory was almost the same. Field and laboratory DO fluxes were also very close.

Blanchette *et al*. (2001) performed a laboratory study of DO diffusion through tailings in mixed cover water conditions. Tailings were obtained from the Louvicourt copper and zinc mine in Abitibi Témiscamingue, Quebec (Canada), and contained 30 to 50% pyrite. DO profiles were determined in four series of triplicated columns in which tailings were covered with 0.3 m and 1 m-thick water covers. This study was performed in two phases, phase I was focused on oxygen diffusion and ionic fluxes under conditions of a circulated water cover; this phase lasted 200 days. In the first 100 days, the water cover in each column was circulated but not aerated. In the second 100 days, the water cover was circulated and aerated.

Rapport-Gratuit.com

Water covers were initially circulated to minimize the development of concentration gradients (initial DO concentrations around 9 mg/L at 20 °C). Later measurements (Day 7 through Day 70) indicated decreasing DO concentration over time. After 100 days, the measured DO profiles showed pronounced gradients across the tailings–water interface from saturated concentration value around 9.2 to below 0.2 mg/L, or the detection limit, a few centimeters below the tailings–water interface. DO flux calculated for the four series ranged between 10 $mgO_2/m^2/d$ and 17 $mgO_2/m^2/d$. DO flux was estimated by modeling one-dimensional oxygen diffusion into tailings using Fick's first law, where the effective DO diffusion coefficient D_w in submerged tailings was estimated from the porosity (n=0.4) and tortuosity (T_o=5) of the tailings and the bulk molecular diffusion coefficient of oxygen $D_w^0=2\times10^{-9}$ m^2/s (Yanful, 1991).

Vigneault *et al.* (2001) determined DO microprofiles *in situ* in fresh tailings submerged under a 30 cm-thick water cover in experimental cells. Tailings were taken from the Louvicourt copper and zinc mine, near Val d'Or, Quebec (Canada). DO microprofiles were measured using Clark-type microelectrodes controlled by a submersible micromanipulator, showing oxygen depletion at depths of a few millimeters (<7 mm) from the tailings–water interface. DO flux into the tailings calculated from the profiles was 1.7 $(\pm0.2)\times10^{-3}$ $nmolO_2/cm^2/s$ or 47 (±6) $mgO_2/m^2/d$.

In these studies, DO flux into submerged tailings was determined with Fick's first law using DO concentration gradients obtained on measured DO profiles. However, when these profiles are not known (particularly during preliminary project phases), it is difficult to estimate the DO flux into submerged tailings. In this case, theoretical or numerical models can be used to estimate DO flux (for known boundary conditions), which requires knowing the effective diffusion coefficient (D_w) in the water-filled space and the reaction rate coefficient (K_r) of the tailings. Li, Aubé and St-Arnaud (1997) and Li and St-Arnaud (2000) simulated 0.3 m-thick water covers placed over tailings at the Louvicourt mine, near Val d'Or, Quebec (Canada). Different hydrodynamic conditions were applied, including stagnant water and mixed water with and without infiltration. D_w and K_r values of 1.04×10^{-10} m^2/s and 2.6×10^{-4} s^{-1} (or 22.5 d^{-1},

or 8199 y^{-1}) were used, respectively. The coefficient D_w was estimated from the diffusion coefficient of oxygen in water (D_{0w}), the porosity, and the tortuosity. K_r was determined from the tailings oxidation rate obtained from humidity cell tests. The steady-state DO flux into the submerged tailings at steady state was about 0.9 $gO_2/m^2/y$ or 3 $mgO_2/m^2/d$ for the stagnant water condition and about 34.2 $gO_2/m^2/y$ or 94 $mgO_2/m^2/d$ for the well-mixed water condition. Presumably, the K_r value used was overestimated: in humidity tests, tailings are exposed to ambient air and are not continuously saturated, as opposed to submerged tailings, which are continuously exposed to DO.

Catalan (1998) simulated four potential cover scenarios after tailings with high sulphide content (about 76.2% pyrite) were deposited at the Don Rouyn site located near Rouyn-Noranda, Quebec (Canada). The effective diffusion (D_w) and rate of reaction (K_r) coefficients were 1.25×10^{-10} m^2/s and 8.1×10^{-3} s^{-1} (or 670 d^{-1} or 255442 y^{-1}), respectively. D_w was estimated as described above and K_r was obtained from oxidation rates determined from shake-flask tests. Oxygen flux obtained analytically at the tailings–water interface for a fully oxygenated water cover and assuming first-order oxidation reaction kinetics was 3.55×10^{-7} $molO_2/m^2/s$ (or 981 mg $O_2/m^2/d$). The tailings oxidation in shake-flask test may be stronger than that for stable tailings submerged under water. K_r obtained from shake-flask tests can however provide the oxidation rates for resuspended tailings. Indeed, the sulfate production rate from the shake flask was combined with the tailings erosion rate to estimate the sulfate mass flux generated by resuspended tailings under a water cover (e.g., Yanful and Mian, 2003; Samad and Yanful, 2005).

Elberling and Damgaard (2001) used the PROFILE program developed by Berg, Risgaard-Perterded and Rysgaard (1998) to analyze DO profiles measured in the laboratory for undisturbed partly oxidized and fresh tailings cores sampled from the Nanisvik mine, Nunavut (Canada). D_w values were estimated. The net DO consumption rate per unit volume of sediment was obtained iteratively. Results showed good agreement between profiles measured in the laboratory and calculated with PROFILE. In fresh tailings, the calculated DO flux (39 ±2 $mmolO_2/m^2/d$ or 1248 ±64 $mgO_2/m^2/d$) was similar to the measured flux (40 ±6

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

mmolO_2/m^2/d or 1280 ±192 mgO_2/m^2/d). In oxidized tailings, the measured and calculated fluxes were 35 ±4 mmolO_2/m^2/d (or 1120 ±128 mgO_2/m^2/d) and 34 ±4 mmolO_2/m^2/d (or 1088 ±128 mgO_2/m^2/d) respectively.

This brief literature review shows that few studies have determined directly the reaction rate coefficient (K_r) of submerged sulphide tailings. The values K_r used in the studies presented previously were obtained from humidity cell or shake-flask tests. However, these values may not be representative of the reactivity of stable submerged tailings. The objective of this study was to develop laboratory testing and interpretation procedures to determine the reaction rate coefficient K_r of tailings submerged under water using cell tests. In the proposed method, inspired by Elberling and Damgaard (2001), the DO concentration (DOC) profile is measured through tailings submerged under a stagnant water cover in a cell. Numerical simulations are then run to solve Fick's second law for the conditions prevailing during the DOC test, considering an estimated D_w and a variable K_r. The optimal K_r to produce the closest match between measured and calculated DO profiles is determined by an iterative method using the code POLLUTEv6. Having K_r provides more flexibility for simulating water cover scenarios under different boundary conditions during preliminary project phases.

Before presenting the developed method and discussing the results, equations used in the present study for the molecular diffusion for DO in submerged tailings are recalled.

3.2 Equations for DO diffusion in flooded sulphide tailings

Oxygen transport in a stagnant water cover is controlled by the transfer of oxygen from air to water followed by the vertical transport of DO through the cover water and into the tailings. DO diffusion into tailings depends on the DO diffusion and reaction rate coefficients in the tailings. The diffusive DO flux F_{OD} can be described by Fick's first law, given by Eq. [3-1] for one-dimensional (vertical) diffusion:

[3-1] $$F_{OD}(t,z) = -n D_W \frac{\partial C(t,z)}{\partial z}$$

where n is the porosity, D_w is the effective diffusion coefficient of DO in the water-filled space in the tailings, and C is the DO concentration in the pore water at a given time t and depth z. For systems in which concentrations change with time, Fick's second law applies to express the law of continuity or conservation of mass. Fick's second law, which gives the net mass of DO per total volume (water and tailings) unit and per time unit, can be written as follows: The development of this equation is presented in Appendix A.

$$[3\text{-}2] \quad \frac{\partial}{\partial t} nC(z,t) = \frac{\partial}{\partial z}\left[nD_W \frac{\partial C(z,t)}{\partial z} \right] - \frac{\partial R_{oxy}(z,t)}{\partial z}$$

where $\partial R_{oxy}/\partial z$ is the net mass of DO consumed by the tailings per total volume (water and tailings) unit and per time unit. If sulphide mineral reactions with DO are considered as irreversible first-order kinetic reactions (e.g., Catalan, 1998; Li, Aubé and St-Arnaud, 1997; Li and St-Arnaud, 2000; Elberling and Damgaard, 2001), this term can be written as follows:

$$[3\text{-}3] \quad \frac{\partial R_{oxy}(z,t)}{\partial z} = K_r C(z,t)$$

where K_r is the effective reaction rate coefficient of the tailings [T^{-1}].

In submerged tailings assumed to be homogenous, n and D_w can be taken as independent of time t and depth z, which facilitates calculations (but is not required for a full theoretical development). In this case, equation [3-2] can be rewritten in as follows:

$$[3\text{-}4] \quad \frac{\partial C}{\partial t} = D_W \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{K_r}{n} C$$

When D_w and K_r are known, differential equation3-2 (or 3-4) can be solved for both steady- and transient-state conditions to obtain the concentration profile C(z, t) and the corresponding

flux (using eq. [3-1]). A numerical treatment is often required to solve the equations for representative boundary conditions, such as tailings submerged under a water cover. The simplified equation [3-4] was used in the interpretation of the OC test presented below.

3.3 Materials and methods

3.3.1 Materials properties

Two types of tailings, TA1 and TA2, were sampled from the Abitibi-Témiscamingue region, Quebec (Canada). Physical, mineralogical, and chemical characteristics are briefly presented below. Particle size was obtained using a Malvern Mastersizer laser particle size analyzer, which determines the volume size distribution for diameters from 0.05 to 900 µm. Details on the techniques of grain-size distribution measurements are given by Merkus (2009). The relative density of tailings was determined using a Micromeritics Accupyc 1330 helium pycnometer. Elemental analysis was performed on tailings solids completely digested in $HNO_3/Br_2/HF/HCl$, followed by inductively coupled plasma and atomic emission spectroscopy (ICP-AES, Perkin-Elmer, relative precision of ±5%; Villeneuve, 2004). The mineralogical characterization of solids was determined by X-ray diffraction (XRD) with the quantitative Rietveld method (relative precision of ±0.5%) using the software TOPAS (Young, 1995). Total sulphur content was determined also on these samples with an ELTRA CS 2000 carbon/sulphur determinator.

For tailings TA1, the grain-size distribution curve presented in Figure 3.1 shows particle diameters D_{10} = 5.0 µm, D_{50} = 38.7 µm, D_{60} = 50.5 µm, and D_{90} = 118.4 µm, corresponding to 10%, 50%, 60%, and 90% of particles passing on the cumulative curve, respectively. The coefficient of uniformity C_U (C_u= D_{60}/D_{10}) was about 9.6. These tailings contained 85% of particles finer than 80 µm and 5% of particles finer than 2 µm. DRX mineralogical analysis showed 83% pyrite, 8.9% chlorite, 6.4% quartz, and 1.9% muscovite. Carbon/Sufur analysis showed 0.13% of carbon and 47% of sulfur. ICP-AES chemical analysis of digested tailings indicated high Fe and S concentrations, at 48.9 and 38.7%, respectively. The presence of Zn

(0.38%), Ni (0.001%), Cu (0.05%), Ca+Mg+Mn (0.53%), and Pb (0.068%) was also observed. The relative density of solid particles (G_s) was about 4.58, or close to that of pure pyrite (5.01; Landry *et al.*, 1995), which indicated that tailings TA1 were highly pyrite-rich.

For tailings TA2, particle diameters were D_{10} = 3.1 µm, D_{50} = 23.4 µm, D_{60} = 33.3 µm, and D_{90} = 119.1 µm (see Figure 3.1). The coefficient of uniformity C_U was about 11. The main minerals quantified by DRX were quartz (51.72%), albite (23.20%), muscovite (17.69%), and pyrite (2.8%). ICP-AES analysis of digested tailings showed the presence of Fe (4.8%), Zn (0.013%), Cu (0.063%), and S (3.6%). Specific gravity G_s (or D_r) was 2.81.

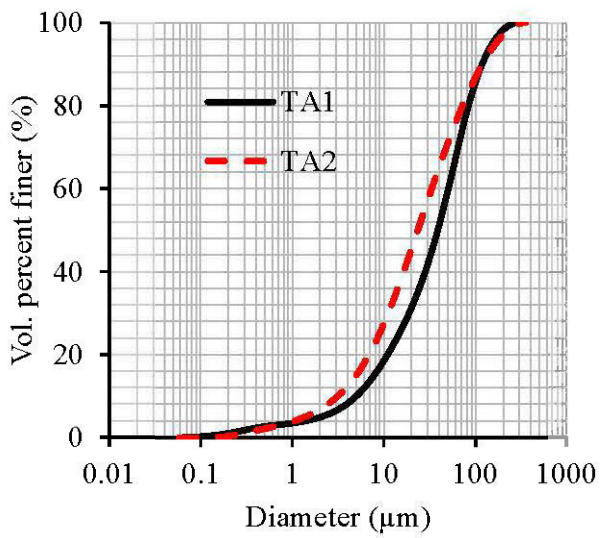


Figure 3.1 Grain-size distribution curves for tailings TA1 and TA2.

3.3.2 Testing procedure proposed to evaluate K_r

The experimental setup consisted of a Plexiglas cylinder 20 cm in height and 15 cm in diameter (see Figure 3.2), to which a micromanipulator coupled with a DO sensor was attached. Tailings stored under water in a closed bucket were homogenized, gradually introduced into the cell through a funnel, and allowed to sediment and consolidate (for a few days) until the height of the clear supernatant water remained constant. Target tailings layer

thickness after sedimentation was about 6 cm. Additional pulp was added as required. The thickness of the water column above the tailings was limited to about 2 cm.

The micromanipulator was firmly attached to the border of the cell and equipped with an arm which could be moved vertically to determine a vertical DO concentration profile in the water cover and tailings at a given point and moved horizontally to change the point of measurement. Measurements were spaced generally at 1 mm intervals vertically and at 2 cm horizontally.

Figure 3.2 Photo of the experimental cell setup.

The OX100 Clark-type DO microsensor from Unisense (Aarhus, Denmark) was securely attached to the manipulator arm, and measured DO concentrations in the cover and pore water. The microelectrode had a sharp, thin tip (diameter of 90-110 μm) to ensure accurate DO measurements without disturbing the tailings. The microelectrode was coupled to a picoammeter (PA2000, Unisense) to measure small variations in electric current, which were directly related to DO concentration (in μmol/L). The DO electrode had a response time t_{90} (time to reach 90% of the final response) <5 s and a detection limit of 0.3 μmol/l. In this study, readings were made after reaching a stable value at each depth. The electrode was

calibrated before each measurement campaign with a standard 2-point calibration (deoxygenated water for 0% DO and oxygen-saturated water for 100% DO). Benson and Krause's (1984) equation was used to estimate 100% DO concentration at a given water temperature.

Various initial and boundary conditions were tested in an exploratory manner, including transient and steady-state conditions with and without initial nitrogen purging of the cell using the red tube shown in Figure 3.2. The steady-state test procedure without initial nitrogen purging was finally retained to allow for a simplified interpretation of results.

The supernatant water was emptied by low-flow pumping using a peristaltic pump. Oxygenated tap water previously agitated to increase DO concentration was added, minimizing tailings resuspension. The setup was exposed to air long enough to reach equilibrium. Each test series consisted of many tests performed within a period of 8 days with the same tailings and water cover. For each test, the vertical DO profile was determined at three different points by moving the micromanipulator at horizontal intervals of 2 cm. The measurement points were changed from one test to another.

Note that DO concentration profiles were initially measured using 2 mm fiber-optic oxygen minisensors (PSt3) (with the 10-channel OXY 10 oxygenmeter, PresSens GmbH, Germany) placed permanently at different depths in the water cover and tailings for the test duration. However, this approach revealed the limited sensitivity of these sensors within the tailings. For this reason, a microsensor was then used.

3.3.3 Interpretation procedure of the test results

The measurement results of vertical DO concentration profiles showed the presence of a diffusive boundary layer (DBL), as observed by Elberling and Damgaard (2001) (see also JØgensen and Revsbech, 1985; Higashino, Gantzer and Stefan, 2004). The DBL acts as a resistant layer to oxygen diffusion, such that DO concentration decreases sharply from C_w (in

the water) to C_0 (at the tailings–water interface), as illustrated in Figure 3.3. DO is fully consumed at a depth d_p into the tailings.

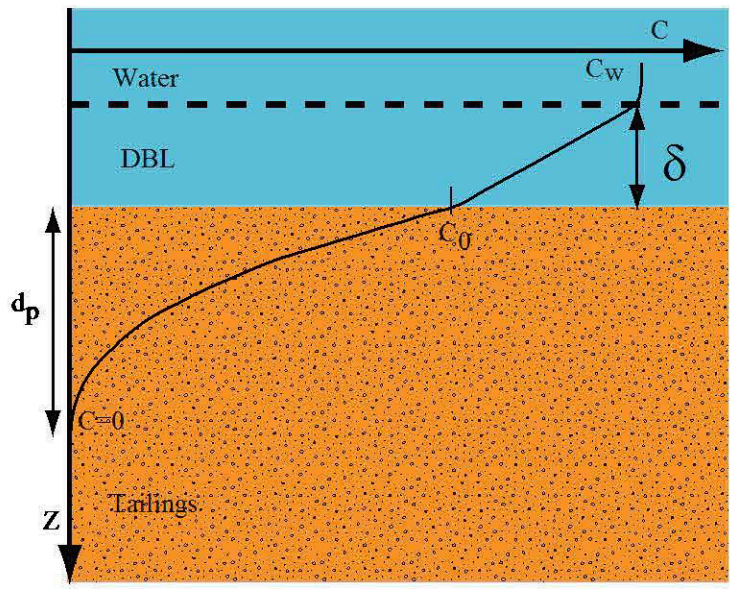


Figure 3.3 Schematic diagram of the effect of DBL on DO concentration profile through a water cover above tailings.

The DO flux at the tailings–water interface must be the same on both the DBL and tailings sides in order to respect the Law of the Conservation of Mass. Assuming that the DO concentration profile within the DBL is linear, which is generally the case in the absence of any significant DO sources or consumption in the water side of the DBL, the diffusive DO flux at the tailings–water interface can be obtained using Fick's First Law, as follows:

$$[3\text{-}5] \qquad F_{OD} = D_W^0 \frac{C_W - C_0}{\delta}$$

In the field, wind-induced waves can cause a spontaneous, short-term reduction in DBL thickness (Elberling and Damgaard, 2001). In laboratory cell tests, DBL thickness may be stable.

Initially, the PROFILE program developed by Berg, Risgaard-Pertersed and Rysgaard (1998) (see also Elberling and Damgaard, 2001) was targeted for the interpretation of the results from this study. The PROFILE numerical solution of Fick's Laws is based on a control volume approach, where the tailings layer is divided into thin horizontal layers, or control volumes. Known values D_w, PROFILE provided net mass DO consumption rates $\partial R_{oxy}/\partial z$ (see equation 3-2) to match calculated and experimental concentration profiles. As expected, net DO consumption rates that varied with depth were obtained for given tailings. However, the results were not given for each control volume, but for relatively large zones along which DO concentration varied. It was therefore not possible to relate this net DO consumption rate to a reaction rate coefficient K_r (using eq. [3-3]). Furthermore, the use of net DO consumption rates provides in general less flexibility compared to K_r for simulating oxygen diffusion. For these reasons, POLLUTEv6 (Rowe, Booker and Fraser, 1994) was used to determine the reaction rate coefficient K_r from the measured DO profiles.

POLLUTEv6 is a program that solves the one-dimensional dispersion-advection equation. It has been widely used in recent years to analyze the experimental results of oxygen diffusion and/or consumption tests and to assess oxygen flux in partially saturated tailings and dry cover systems designed to limit acid mine drainage (e.g., Aubertin *et al.*, 1995, 1999; Aubertin, Mbonimpa and Dagenais, 2000a; Aubertin, Aachib and Authier, 2000b; Yanful, Simms and Payant, 1999, Mbonimpa *et al.*, 2002, 2003; Mbonimpa, Aubertin and Bussière, 2011; Dagenais, Aubertin and Bussière, 2005, 2012; Renken, Yanful and Mchaina, 2005; Gosselin, 2007; Gosselin *et al.*, 2007, 2012). The equations and numerical methods in POLLUTEv6 have been presented by Rowe and Booker (1985) and Rowe, Booker and Fraser (1994). In this study, POLLUTEv6 provided the solutions to equation [3-4] in terms of DO concentration C (z, t).

POLLUTEv6 does not allow modeling the oxygen transfer from ambient air to water that is exposed to atmosphere. DO diffusion into the tailings was therefore modeled, considering the DO concentrations C_w and C_0 (see Figure 3-3) as constant. For that purpose, the tailings–water interface was considered as depth z=0. The homogeneous column of tailings (with

Rapport-Gratuit.com

constant parameters n and D_w) was divided into several thin layers, the number and thickness of which corresponded to measurement intervals during the tests (up to depth d_p taken from the experimental data). Layer thickness, porosity n, and estimated effective diffusion coefficient D_w were inserted in POLLUTEv6.

The effective diffusion coefficient of oxygen in the porewater D_w was estimated with the model proposed by Collin and Rasmuson (1988) (see also Aachib, Mbonimpa and Aubertin, 2004). The model includes the diffusion coefficient of oxygen in water D_W^0, a tortuosity parameter explained by the porosity, and a model factor y:

[3-6] $$D_W = n^{2y} D_W^0$$

The model factor y can be obtained iteratively from:

[3-7] $$n^{2y} + (1-n)^y = 1$$

Other authors (e.g., Yanful, 1991; Morin, 1993, Catalan, 1998; Elberling and Damgaard, 2001) have proposed the following equation for D_w:

[3-8] $$D_W = \frac{D_W^0 n}{T_O}$$

where T_o is the tortuosity (T_o=5 for tailings) (Yanful, 1991; Morin, 1993; Catalan, 1998).

Figure 3.4 presents D_w values estimated with these models as a function of porosity. Collin's model predicts values from 3.1 (for n=0.1) to 4.7 (for n=0.9) times higher than those estimated by eq. [3-8].

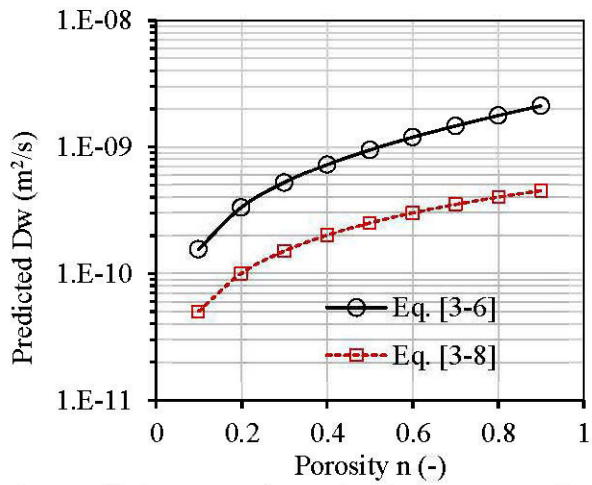


Figure 3.4 DO diffusion coefficient D_w estimated with the presented models (eqs. [3-6] and [3-8]) as a function of porosity.

It was decided to use Collin and Rasmuson's (1988) model (eq. [3-6]), as the tortuosity in this model depends on the porosity n, and because this model produces conservative values (higher than those estimated with eq. [3-8]). To avoid the iterative procedure for obtaining y from eq. [3-7], a relationship between y and n is proposed with the following linear function for $0.2 \leq n \leq 0.9$ (y increases sharply for $n > 0.9$ to reach $y = 1$ at $n = 1$), as shown in Figure 3.5:

[3-9] $$y = 0.24n + 0.58$$

The top boundary condition C (z=0) was a constant concentration C_0, and the concentration at the bottom boundary C ($z=d_p$) was 0. The factor K_r/n in equation [3-4] was then entered as the half-life time $t_{1/2}$ that was changed iteratively until the numerical results matched the experimental measurements. This half-life time was then used to calculate the reaction rate coefficient K_r using eq. [3-10].

[3-10] $$K_r = n \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$$

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

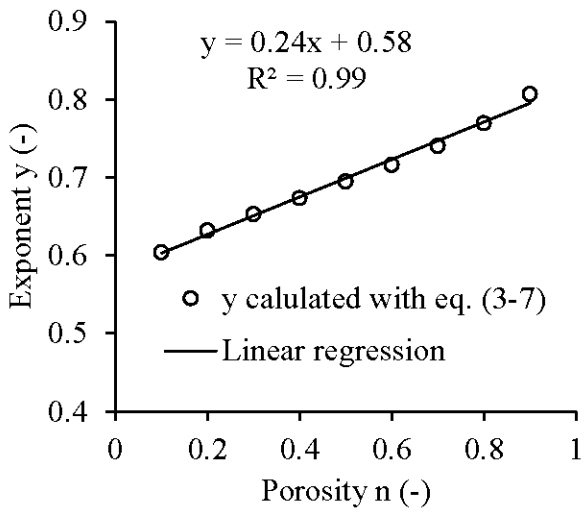


Figure 3.5 Proposed relationship for the estimation of exponent y from the porosity.

The POLLUTEv6 calculations were made for a sufficiently long time to guarantee reaching steady-state conditions. For oxygen diffusion in unsaturated homogenous materials (initially without oxygen), Mbonimpa *et al.* (2003) showed that the time required to reach steady-state conditions decreases with increasing K_r. The time t_{ss} required to reach steady-state conditions decreases when the oxygen diffusion through inert material (with $K_r = 0$) is longer than for a reactive material (other conditions being the same). Verifications of steady-state conditions were therefore made with POLLUTEv6 by analyzing changes in calculated DO concentration C(t) at different depths in the tailings assuming $K_r = 0$. Steady-state conditions were reached rapidly. Indeed, when D_w corresponding to submerged tailings at porosities of 0.40; 0.45 and 0.50 are considered (i.e. D_w = 0.62; 0.71 and 0.82 cm^2/d, respectively), simulations with POLLUTEv6 considering $K_r = 0$ indicated that the steady state was reached after less than 12 h. A time of 50 days was applied to all test simulations.

3.4 Results

Two series of tests were performed for tailings TA1 (in June and September 2010) and one series for tailings TA2 (in October 2010). The tests with for tailings TA1 were set up on June, 1 for the series 1 and on September,14 for the series 2. The tests with Tailings TA2 were set

up on October, 11. New tailings were used for each of the two test series with TA1. However, tests within a series were performed without changing the tailings, as mentioned above. In this section, the vertical DO profiles are first presented for the two tailings. Results of the numerical interpretation with POLLUTEv6 follow.

3.4.1 Measured vertical DO profiles

Figure 3.6 shows typical DO profile measurements at 3 points spaced at 2 cm intervals (x = 0 is the position of the first measurement point), as described above, at a given time t, revealing good consistency of results for all depths. Therefore, the average of values obtained at three stations was considered to establish an average profile through the water and tailings for each test (at a given date).

Average vertical DO profiles obtained from tests performed on different days in June 2010 (June 8-15, 2010 for Series 1) and September 2010 (June 9-16, 2010 for Series 2) for tailings TA1 and from 20 to 28 October 2010 for tailings TA2 are shown in Figures 3.7 to 3.9, respectively. For each test series, two tests were at least performed within a period of about 8 days. For a given test series, no significant variation in DO profiles over time was observed, suggesting that steady state was almost reached at the time of measurement. DO concentrations were constant at from 8 to 9 mg/L in 20 mm-thick water layers at approximately 20 °C. At this temperature, DO saturation concentration should be about 9.0 mg/L (Benson and Krause 1984). This suggests that the water cover was almost oxygen saturated. DO concentration appears to decrease linearly over a thin layer close to the tailings–water interface. This may correspond to the diffusive boundary layer (DBL), as observed by Elberling and Damgaard (2001) and presented in Figure 3.3.

DO concentration decreases thereafter from the tailings–water interface to reach close to 0 at a depth d_p about 4 mm into tailings TA1 (Figures 3.7 and 3.8) and around 9 mm into tailings TA2 (Figure 3.9). This indicates that DO is consumed rapidly in the first few millimeters below the tailings–water interface. The above-presented studies (Holmström and Ohlander, 1999; Elberling and Damgaard, 2001; Blanchette *et al.*, 2001, Vigneault *et al.*, 2001) found

similar results. These figures also show that DO is consumed more rapidly in tailings TA1 (83% pyrite) than in tailings TA2 (2.8% pyrite).

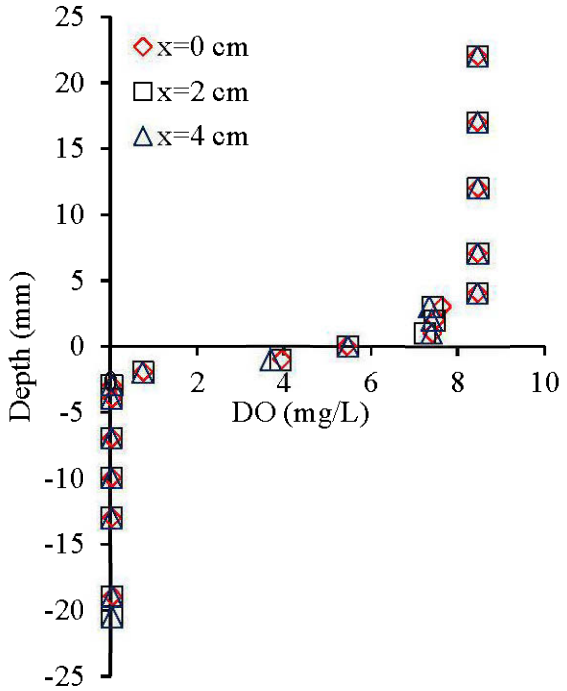


Figure 3.6 Typical DO profiles measured successively at three points in tailings TA1 on June 15, 2010.

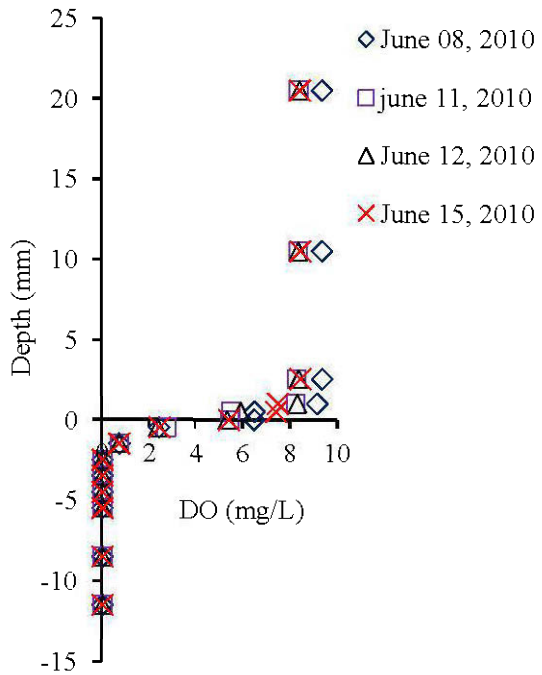


Figure 3.7 DO profiles measured on June 08, 2010 for tailings TA1.

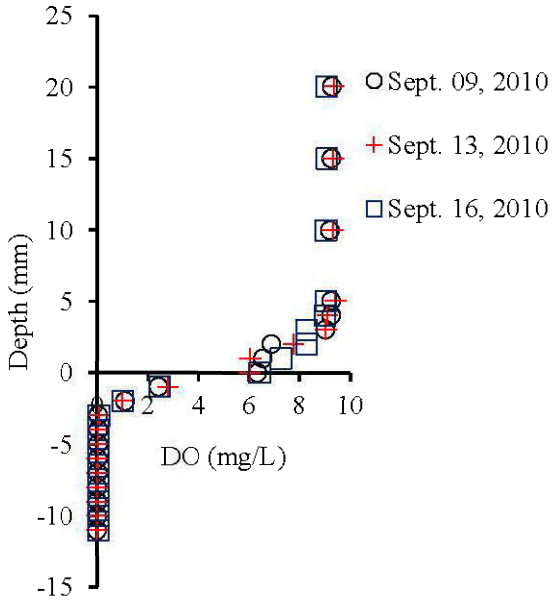


Figure 3.8 DO profiles measured on September 2010 for tailings TA1.

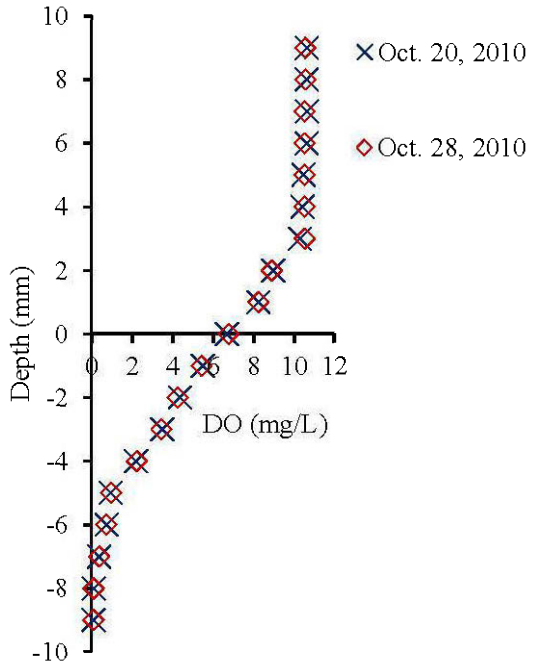


Figure 3.9 DO profiles measured on October 2010 for tailings TA2.

3.4.2 Test results interpretation

Table 3.1 shows the main parameters used to interpret the DO profiles for each test series. The effective diffusion coefficient D_w was predicted with equations [3-6] and [3-9]. Figures 3.10 to 3.12 compare the measured and calculated DO profiles C(z). Table 3.1 presents the final K_r values. Although the concentration C_w and C_0 were different for the two test series with tailings TA1, the values K_r obtained are almost identical with an average value of about 80.2 d^{-1} or 29284 y^{-1}. This reaction rate coefficient for tailings TA1 (83% pyrite) is clearly higher than that for tailings TA2 (2.8% pyrite) (with K_r = 6.5 d^{-1} or 2378 y^{-1}) due to the difference in sulphide content.

Table 3.1 Materials characteristics used as input for POLLUTEv6 calculations and results obtained

Parameters	TA1 Series June 2010	TA1 Series Sept. 2010	TA2 Series Oct. 2010
	Input		
n (-)	0.40	0.41	0.47
C_w (mg/L)	8.5	9.1	11.0
C_0 (mg/L)	5.4	6.4	6.8
D_w (cm^2/d)	0.62	0.62	0.76
d_p (cm)	0.4	0.4	0.9
	Final results		
t ½ (d)	0.0035	0.0035	0.05
K_r (d^{-1})	79.3	81.2	6.5
K_r (y^{-1})	28914	29637	2378

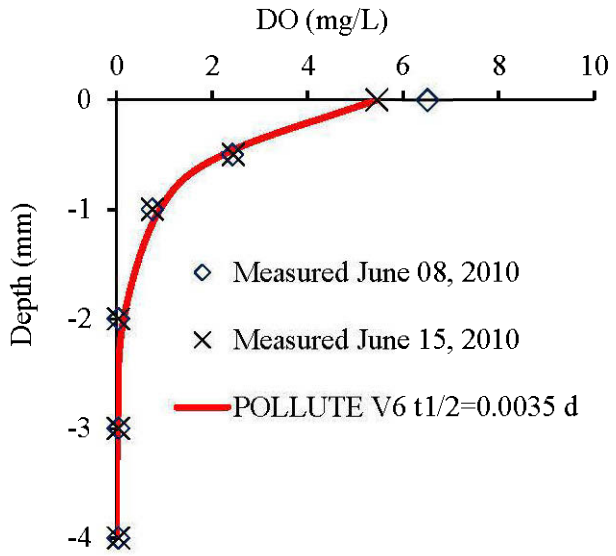


Figure 3.10 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on June 2010 on tailings TA1.

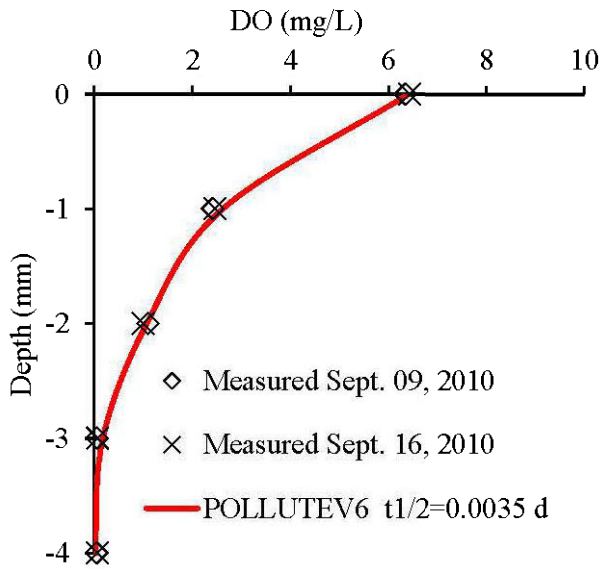


Figure 3.11 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on September 2010 on tailings TA1.

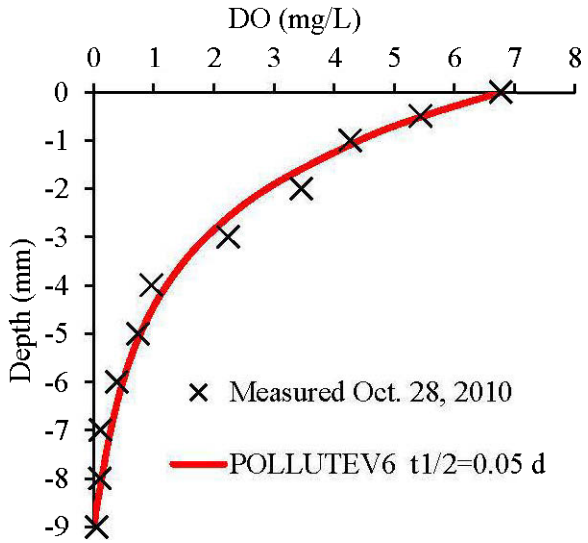


Figure 3.12 DO profiles measured and calculated numerically with POLLUTEv6 for a test series performed on October 2010 on tailings TA2.

3.5 Discussion

3.5.1 Comparison with batch reactor (shake-flask) test results

As mentioned above, some authors used shake-flask tests to determine the reaction rate coefficient K_r of tailings under a water cover (Catalan, 1998). In the present study, shake-flask tests were performed for comparison with cell test results for tailings TA1 only. The shake-flask test procedure proposed by Gleisner (2001) was used. A known amount of dry tailings (50 g) was placed in each of eight 1-litre Erlenmeyer flasks which were then filled with 500 mL of deionized water (i.e. liquid-to-solid ratio of 10 or solid concentration of 10^5 mg/L). The flasks were opened to the atmosphere and placed on a vibrating plate for continuous stirring at 150 rpm to maintain DO saturation in the solution. The flasks were regularly weighed to ensure that no evaporation occurred. The first bottle was removed at time t = 0 (immediately after mixing water and tailings). Afterwards, one flask was removed from the remaining seven flasks every three days over 21 days. The removed flask was left at rest to allow tailings to settle. The supernatant water was then sampled using a syringe for analyses of temperature (T), pH, redox potential (Eh), dissolved oxygen (DO), and electrical conductivity. A sample of the supernatant water (about 20 mL) was then filtered, acidified, and analyzed by ICP-AES for metallic element and sulphur concentrations. Concentrations of produced sulphate were derived from the sulphur concentrations. The measured concentrations of dissolved elements in a given flask were cumulative values produced by oxidation (or dissolution) when the flask was removed. The DO concentration was about 8.3 mg/L during the tests.

Figure 3.13 shows the cumulative sulphate amounts measured in the shake flasks per unit mass of dry tailings TA1. The slope of the normalized cumulative sulphate content over time represents the sulphate production rate R_M. The trend line or regression that best fits the data is a linear regression with a coefficient of determination of 0.93 and a slope R_M of 470.9 mg SO_4^{2-}/kg dry tailings/d, or 56.7 nmol SO_4^{2-}/kg of dry tailings/s.

Rapport-Gratuit.com

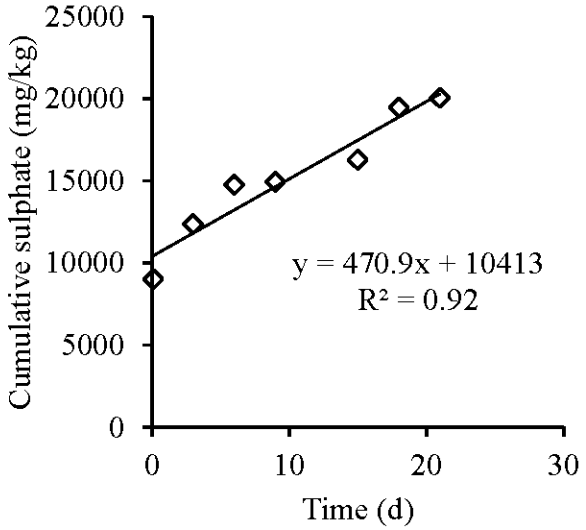


Figure 3.13 Change in sulphate production per unit mass of dry tailings TA1 in the shake-flask test.

The sulphide content of tailings TA1 (83%) was close to that of tailings (76.2%) studied by Catalan (1998). The rate of sulphate production determined in the present study (R_M=56.7 nmol SO_4^{2-}/kg of dry tailings/s) are in the same range as those obtained by Catalan (1998) at acidic pH, which ranged from 53 to 311 nmol SO_4^{2-}/kg/s. This wide variation in the oxidation rate is attributable to the fact that the tests were conducted under three liquid-to-solid ratios (100, 500 and 2000).

The relationship between R_M and K_r is based on the following global oxidation reaction of pyrite by DO (e.g., Jambor and Blowes, 1994; Evangelou, 1995; Aubertin, Bussière and Bernier, 2002).

[3-11] $$FeS_2 + 15/4O_2 + 7/2H_2O \Rightarrow Fe(OH)_3 + 2SO_4^{2-} + 4H^+$$

This equation indicates that the oxidation of each mole of pyrite consumes 15/4 moles (or 120×10^3 mg) of oxygen to produce 2 moles (or 192.2×10^3 mg) of sulphate. In other words, 1

mg of sulphate is produced after 0.624 mg of O_2 is consumed. It can be shown that the mass of solids M_s (kg) contained in a given volume V_T (m^3) of tailings with a porosity n is:

[3-12] $$M_S = (1-n)\rho_S V_T$$

where ρ_s is the density of solid grains of tailings (in kg/m^3). When it is assumed that sulphate at t > 0 was generated exclusively by pyrite oxidation in the shake-flask tests (tailings were not handled under anaerobic conditions, so that dissolved metals and sulphates may have formed during storage and homogenization), this mass M_s of solid tailings will generate $M_S \times R_M$ mg sulphate/d after $0.624 \times M_s \times R_M$ mg of oxygen consumption/d, where R_M is the sulphate production rate as defined in Figure 3.13 (in mg sulphate/kg solid tailings/d). Hence, the change in DO concentration with time due to oxygen consumption by pyrite oxidation per unit volume of tailings and per unit time (here, $mgO_2/m^3/d$), as defined in equation [3-2], is given by:

[3-13] $$\frac{\partial R_{oxy}}{\partial z} = \frac{0.624 M_S R_M}{V_T} = 0.624(1-n)\rho_S R_M$$

Based on equation [3-3], the reaction rate coefficient K_r (d^{-1}) is given by eq. [3-14] (with C in mg/m^3):

[3-14] $$K_r = 0.624\frac{(1-n)\rho_S}{C} R_M$$

For tailings TA1 with n=0.40; ρ_s=4560 kg/m^3, R_M=470.9 mg SO_4^{2-}/kg dry tailings/d, and DO concentration C=8.3 mg/L or 8300 mg/m^3, equation [3-14] gives K_r=96.9 d^1 or 35354 y^{-1}. In this case, K_r is about 1.2 times higher than the K_r obtained from cell tests. In this case, the 20% difference is not significant, and K_r obtained with the shake flask test may be acceptable. However, for a given liquid/solid ratio, the results found by Catalan (1998) indicated that R_M values obtained under neutral conditions were higher (by more than one order of magnitude) than those obtained under acidic conditions (see Table 2.1). During the

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

shake flask tests performed in the present study, pH decreased from 5 to 2.7. It can be assumed that higher R_M would have been obtained if the shake flask test was conducted under neutral conditions (e.g., the cell test). This would increase the difference between the K_r values obtained from the proposed approach using cell test and from the shake flask test. Furthermore, R_M may depend on the liquid/solid ratio, which may affect the time required to reach acidic pH conditions.

3.5.2 Steady-state DO flux consumed by tailings

The steady-state DO fluxes into the submerged tailings TA1 and TA2 were calculated using POLLUTEv6 considering the three C_0 values observed during the cell tests (see Table 3.2). As mentioned above, POLLUTE does not allow simulating O_2 transfer at the air–water interface. Consequently, the water cover layer was not considered in the simulations. Instead, a homogeneous tailings layer (with thickness d_p; see Table 3.1) was assumed (with constant parameters n=0.40, D_w=0.62 cm^2/d and $t_{1/2}$=0.0035 d for tailings TA1 and n=0.47, D_w=0.76 cm^2/d and $t_{1/2}$=0.05 d for tailings TA2, see Table 3.1). This layer was divided into several thin layers. The top layer had a thickness dz=0.001 mm, which was used to calculate the oxygen flux at the tailings surface according to Fick's first law (Eq. [3-1]). Results are presented in Table 3.2. Steady-state DO fluxes ranged from 608 to 758 $mg/m^2/d$ for tailings TA1 and from 177 to 221 $mg/m^2/d$ for tailings TA2. For the same concentration C_0, the DO flux is higher for TA1 than for TA2, largely due to the difference in reactivity.

Table 3.2 Steady-state DO flux ($mgO_2/m^2/d$) into stable tailings TA1 and TA2 and into DBL

		Fux into tailings		Fux into DBL
		TA1	TA2	TA1
C_w (mg/L)	8.5			
C_0 (mg/L)	5.4	608	177	583
	6.4	714	208	
	6.8	758	221	

In the tests on tailings TA1 performed on June 15, 2010, DBL thickness was $\delta \approx 2.5$ mm. Using eq. [3-5], the DO flux at the upper tailings–water interface (assuming C_w=8.5 mg/L

and C_0=5.4 mg/L; see Table 3.1) can be calculated. The resulting DO flux is about 583 mg/m^2/d, which is close to the POLLUTEv6-calculated flux at 608 mg/m^2/d (Table 3.2). Using a smaller DBL thickness corresponding to the predominantly linear portion of the vertical profile close to the tailings–water interface, the flux can be more accurately calculated with eq. [3-5]. As mentioned above, the DO flux at the tailings–water interface must theoretically be the same at the DBL and tailings sides. Disagreements between the DO flux across the DBL and the DO consumption up to 12% can however be noted (Elberling and Damgaard, 2001).

A layer of inert material placed above tailings can be used to reduce particle resuspension and limit the DO flux consumed by the underlying tailings (e.g., St-Arnaud 1994; Davé *et al.*, 1997; Yanful and Simms, 1997; Li, Aubé and St-Arnaud, 1997). Steady-state DO fluxes consumed by tailings TA1 covered by layers of inert material with thicknesses H_c= 5, 10, and 20 cm were modeled with POLLUTEv6. For this purpose, a homogeneous layer of inert material with constant parameters n=0.46 and D_w=0.74 cm^2/d (estimated with eq. [3-6] and [3-9]) was placed over a column of tailings (with constant parameters n=0.40, D_w=0.62 cm^2/d and $t_{1/2}$= 0.0035 d or K_r=79.3 d^{-1}). Each material was divided into several thin layers. The top layer in the tailings had a thickness dz=0.1 mm (there was no change in DO concentration with dz=0.001 mm, as used above to calculate the flux without a protective layer), which was used to calculate the oxygen flux at the tailings surface according to Fick's first law (Eq. [3-1]). DO concentration C_w=8.5 mg/L was applied to the surface of the inert material (the effect of the DBL was ignored, which represents the worst case scenario). DO concentrations at the interface between the layer of inert granular material and the tailings were 0.129 mg/L, 0.060 mg/L, and 0.022 mg/L for thicknesses H_c=5, 10, and 20 cm, respectively. DO concentrations at depth dz=0.1 mm into the tailings were 0.107 mg/L, 0.054 mg/L, and 0.0183 mg/L for thicknesses H_c=5, 10, and 20 cm, respectively. Placing layers of inert material with thickness H_c=5, 10, and 20 cm over the tailings produced a DO flux into the tailings of 5.2; 1.5; and 0.8 mg/m^2/d, respectively (Table 3.3). Without these layers, DO concentration at the tailings surface C_0 was 5.4 mg/L and DO flux was 608 mgO_2/m^2/d. The daily DO flux consumed by

the tailings was reduced by about 99% when a layer of inert material 5 cm in thickness was placed over the tailings.

Table 3. 3 Comparison of modeling oxygen flux into tailings with and without layer of inert material

	TA1 without inert material	Layer of inert material
H_c (cm)		5, 10, 20
n	0.40	0.46
D_w (cm^2/d)	0.62	0.74
$t_{1/2}$ (d)	0.0035	
d_z (mm)	0.1	
F_{OD} ($mg/m^2/d$)	608	5.2−1.5−0.8

3.6 Conclusions

The objective of this study was to develop laboratory testing and interpretation procedures to determine the reaction rate coefficient K_r of tailings submerged under water using cell tests. After trying various scenarios (transient and steady-state testing conditions with and without initial nitrogen purging of test setup) steady-state conditions were retained to allow a simplest results interpretation. The main conclusions of this research effort can be summarized as follows:

- DO penetration was limited to about 4 mm into tailings TA1 and about 9 mm into tailings TA2. DO profiles varied slightly over time, indicating that steady-state conditions were reached at the time of measurement.
- For tailings TA1 and TA2, K_r of 80.2 d^{-1} and 5.61 d^{-1} were obtained, respectively. Steady-state DO fluxes calculated for the test conditions ranged from 608 to 758 $mgO_2/m^2/d$ for tailings TA1 and from 177 to 221 $mgO_2/m^2/d$ for tailings TA2.
- If K_r is known, the influence of different water covers scenarios can be simulated, especially in the preliminary project phase. For example, the impact of placing a protective layer of inert material over tailings on the DO flux into the tailings can be numerically simulated. This impact was investigated for tailings TA1, considering protective layers with thicknesses of 5, 10, and 20 cm. When a 5-cm, 10-cm, and 20 -cm-

thick protection layer was placed over tailings TA1, DO flux decreased from 608 $mgO_2/m^2/d$ to 5.2 $mgO_2/m^2/d$ (or by 99.1%), to 1.5 $mgO_2/m^2/d$ (or by 99.7%), and to 0.8 $mgO_2/m^2/d$ (or by 99.8%), respectively. Placing this inert layer over highly reactive tailings is advantageous because it also prevents potential tailings resuspension caused by wind-induced waves.

Two main limits can be noted: 1) The proposed approach requires probes capable of measuring low DO concentrations within the tailings and 2) The proposed approach is only applicable under steady state conditions. Simulations of the cell test under transient conditions were not possible because the software used cannot simulate the transfer of O_2 from air to water. The use of DO profiles obtained under steady state conditions has however the advantageous that analytical solutions can possibly be used.

3.7 Acknowledgements

The authors wish to thank the NSERC Polytechnique-UQAT Industrial Chair on Environment and Mine Waste Management for their financial contribution and the NSERC for an individual Discovery Grant awarded to the second author. Thanks also go to Professor Peter Campbell at the INRS Centre Eau Terre Environnement for rental of the picoammeter PA2000.

3.8 References

Aachib, M., Mbonimpa, M., Aubertin, M. 2004. "Measurement and prediction of the oxygen diffusion coefficient in unsaturated media, with applications to soil cover". *Water, Air, and Soil Pollution*, 156: 163−193.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L. 2002. *Environnement et gestion des rejets miniers*. CD-ROM, Les Presses Internationales Polytechnique, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.

Aubertin, M., Mbonimpa, M., Dagenais, A-M. 2000a. "Nouvelles procédures d'essais de diffusion et de consommation d'oxygène : applications au site LTA, Malartic, Québec". *report Submitted to Golder Associates*, École Polytechnique de Montréal, Project CDT P2380.

Aubertin, M., Aachib, M., Authier, K. 2000b. "Evaluation of diffusive gas flux through covers with a GCL". *Geotextiles and Geomebranes*, 18: 1−19.

Aubertin, M., Bussière, B., Monzon, M., Joanes, A-M., Gagnon, D., Barbera, J-M., Aachib, M., Bédard, C., Chapuis, R.P., et Bernier, L. 1999. "Étude sur les barrières sèches construites à partir des résidus miniers. Phase II-Essais en place". *NEDEM/MEND report 2.22.2c*, CD−ROM.

Aubertin, M., Chapuis, R.P., Aachib, M., Bussière, B., Ricard, J.F., Tremblay, L. 1995 "Évaluation en laboratoire de barrières sèches construites à partir de résidus miniers". *Rapport NEDEM/MEND 2.22.2a*,12p.

Benson, B.B., Krause, D.Jr. 1984. "Concentration and isotopic fractionation of dissolved oxygen in freshwater and seawater in equilibrium with the atmosphere". *American Society of Limnology and Oceanography,* 29: 620−632.

Berg, P., Risgaard-Pertersed, N., Rysgaard, S. 1998. "Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water". *Limnology and oceanography*, 43: 1500−1510.

Blanchette, M.C., Davé, N.K., Kwong, Y.T.J., Tisch, B. 2001. "Evaluation of man-made subaqueous disposal option as a method of controlling oxidation of sulfide minerals: column studies". *MEND report 2.12.1e*, 112p.

Catalan, L.J.J. 1998. "Prédiction à long terme de la qualité de l'eau dans l'ancienne carrière Don Rouyn". Rouyn-Noranda, Québec, Fonderie Horne, 77p.

Collin, M., Rasmuson, A. 1988. "Gas diffusivity models for unsaturated porous media." *Soil Science Society of America Journal*, 52: 1559−1565.

Dagenais, A-M., Mbonimpa, M., Bussière, B., Aubertin, M. 2012. "The modified oxygen consumption test to evaluate gas flux through oxygen barrier covers".*Geotechnical Testing Journal, ASCE*, 31: 150−158.

Dagenais, A-M., Aubertin, M., Bussière, B., Cyr, J. 2005. "Performance of the Lorraine mine site cover to limit oxygen migration." *SME transactions*, 318: 190−200.

Davé, N.K., Lim, T.P., Horne, D., Boucher, Y., Stuparyk, R. 1997. "Water cover on reactive tailings and wasterock: Laboratory studies of oxidation and metal release characteristics". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, 779−794.

Elberling, B., Damgaard, L.R. 2001. "Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulphide tailings". *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 65:1897−1905.

Evangelou, V.P. 1995. *Pyrite oxidation and its control*. CRC Press. Inc. Boca Raton, Florida.

Gleisner, M. 2001. "Sulfide Mineral Oxidation in freshly processed tailings from Boliden". *Mining and the Environment Conference*, June 27-July 1, Skelleftea Sweden, 241−249.

Gosselin, M., Mbonimpa, M., Pabst, T., Aubertin, M. 2012." Evaluating the oxygen reaction rate coefficient of sulphidic tailings using laboratory and field tests". *9th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 20−26, Ottawa, Ontario, Canada, 13p.

Gosselin, M. Mbonimpa, M., Aubertin, M., Martin, V. 2007. "An investigation of the effect of the degree of saturation on the oxygen reaction rate coefficient of sulphidic tailings". ERTEP 2007−*First International Conference on Environmental Research,*

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Technology and Policy Building Tools and Capacity for Sustainable Production, 17 −19 July 2007, Accra, Ghana, 10p.

Gosselin, M. 2007. "Étude de l'influence des caractéristiques hydrogéochimiques des résidus miniers réactifs sur la diffusion et la consommation de l'oxygène". Mémoire de Maîtrise, Montréal, École Polytechnique de Montréal, département des génies Civil, Géologique et des Mines, 216p.

Higashino, M., Gantzer, C.J., Stefan, H.G. 2004. "Unsteady diffusional mass transfer at the sediment–water interface: Theory and significance for SOD measurement". *Water Research,* 38: 1−12.

Holmström, H., Öhlander, B. 1999. "Oxygen penetration and subsequent reactions in flooded sulphidic mine tailings: a study at Stekenjokk, northern Sweden". *Applied Geochemistry*. 14: 747−759.

Jambor, J.L., Blowes, D.W. 1994. "The environmental chemistry of sulphide mine-Wastes". *Mineralogical Association of Canada Short Course Handbook*, 22, 438p.

JØgensen, B.B., Revsbech, N.P. 1985. "Diffusive boundary layers and the oxygen uptake of sediments and detritus". *Limnology and Oceanography*, 30: 111−122.

Knapp, R.A. 1987."The biogeochemistry of acid generation in sulphide tailings and wasterock". *Acid Mine Drainage Seminar/Workshop*, Halifax N.S., Environment Canada, Transport Canada and the Panel for Energy Research and Development, 47−62.

Landry, B., Pageau, J.G., Gauthier, M., Bernard, J., Beaudin. J., Duplessis, D. 1995. *Prospection minière*. Modulo Éditeur, Mont-Royal, Québec.

Lee, M. 2002. "Visualization of oxygen transfer across the air–water interface using fluorescence oxygen visualization method". *Water Research*. 36: 2140−2146.

Li, M., St-Arnaud, L. 2000. "Reactivity assessment and subaqueous oxidation rate modelling for Louvicourt tailings-Final Report". *MEND report No. 2.12.1d*, 204p.

Li, M., Aubé, B., St-Arnaud, L. 1997. "Consideration in the use of shallow water covers for decommissioning reactive tailings". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, BC, 115−130.

Liss, P.S. 1973. "Processes of gas exchange across an air–water interface". *Deep-Sea Research,* 20: 221−238.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Bussière, B. 2011. "Oxygen consumption test to evaluate the diffusive flux into reactive tailings: interpretation and numerical assessment". *Canadian Geotechnical Journal*, 48: 878−890.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Aachib, M., Bussière, B. 2003. "Diffusion and consumption of oxygen in unsaturated cover materials". *Canadian Geotechnical Journal,* 40: 916−932.

Mbonimpa, M., Aubertin, M., Dagenais, A-M., Bussière, B., Julien, M., Kissiova, M. 2002. "Interpretation of field tests to determine the oxygen diffusion and reaction rate coefficients of tailings and soil covers." *55th Canadian Geotechnical Conference and 3rd Joint IAH-CNC and CGS Groundwater Specialty Conference,* October 20−23, Niagara Falls, Canada.

MEND. 1991. "Acid Rock Drainage Prediction Manual". *MEND report 1.16.1b,*83p.

Merkus, H.G. 2009. *Particle size measurements: Fundamentals, Practice, Quality*. Springer, The Netherlands.

Mölder , E., Mashirin, A., Tenno, T. 2005. "Measurement of the oxygen mass transfer through the air–water interface "*Environmental Science and Pollution Research*, 12: 66−70.

Morin, K.A. 1993. "Rates of sulfide oxidation in submerged environments: Implication for subaqueous disposal". *17th Annual British Columbia Mine Reclamation Symposium,* May 4-7, Port Hardy, BC, Canada, 235−247.

Renken, K., Yanful, E.K., Mchaina, D.M. 2005. "Effective oxygen diffusion coefficient and field oxygen concentrations below a geosynthetic clay liner (GCL) covering mine tailings". *Geotechnical Special Publication*, 130−142: 3503−3517.

Rescan. 1996. "Geochemical assessment of Equity Silver tailings pond". *MEND Project 2.11.5c*, Vancouver, Canada, 123p.

Rowe, R. K., Booker, J. R., Fraser, M.J. 1994. *POLLUTEv6 and POLLUTE-GUI User's Guide.* GAEA Environmental Engineering Ltd., London, 305p.

Rowe, R. K., Booker, J. R. 1985. "1-D polluant migration in soils of finite depth." *Journal of Geotechnical Engineering-Asce*, 111: 479−499.

Samad, M.A., Yanful, E.K. 2005. "A design approach for selection the optimum water cover depth for subaqueous disposal of sulfide mine tailing". *Canadian Geotechnical Journal,* 42: 207−228.

Schladow, S.G., Lee, M., Hürzeler, B.E., Kelly, P.B. 2002. "Oxygen transfer across the air–water interface by natural convection in lakes". *Limnology and Oceanography,* 47: 1394−1404.

St-Arnaud, L. 1994. Water covers for decommissioning of sulfidic mine tailings impoundments. *International Land Reclamation and Mine Drainage and third International Conference on the abatement of acidic drainage*, April, 24-29, Pittsburgh, USA, 279−287.

Vigneault, B., Campbell, P.G.C., Tessier, A., De Vitre, R. 2001. "Geochemical changes in sulfidic mine tailings stored under a shallow water cover". *Water Research*, 35: 1066−1076.

Villeneuve, M. 2004. "Évaluation du comportement géochimique à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétiques ". Mémoire de maîtrise, Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Montréal, Québec, Canada.

Yanful, E.K., Mian, M.H. 2003. "The nature and implications of resuspension in subaqueous sulfide tailings". *6th International Conference on Acid Mine Drainage*, 12-18 July, Cairns, QLG, CD-rom, 1177−1183.

Yanful, E.K. Simms, P.H. 1997. "Review of water cover sites and research projects". *MEND report 2.18.1*, 136p.

Yanful, E.K., Simms, P.H., Payant, S.C.1999. "Soil covers for controlling acid generation in mine tailings: A laboratory evaluation of the physics and geochemistry". *Water, Air, and Soil Pollution*, 114: 347−375

Yanful, E.K. 1991. "Engineered soil covers for reactive tailings management: Theoretical concepts and laboratory development". *Second International Conference on the Abatement of Acidic Drainage,* Montreal, Quebec, Canada, 461−485.

Young, R.A. 1995. *The Rietveld method.* Young, R. A. éd., Oxford University Press, 312p.

CHAPITRE IV

LABORATORY STUDY OF HIGHLY SULPHIDE-RICH TAILINGS SUBMERGED BENEATH A WATER COVER UNDER VARIOUS HYDRODYNAMIC CONDITIONS

Cet article a été soumis à Water, Air and Soil Pollution

Auteurs

Akué Sylvette Awoh[A,1,2], Mamert Mbonimpa[A,1], Bruno Bussière[A,1], Benoît Plante[A,1], and Hassan Bouzzaza[A,1]

[A] Environment and Mine Research Institute, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), 445 boul. de l'Université, Rouyn-Noranda, Québec, J9X 5E4 Canada

[1] NSERC Polytechnique-UQAT Industrial Chair, Environment and Mine Waste Management

[2] Corresponding author: Phone: 819-762-0971 # 4314,
Email: akue-sylvette.awoh@uqat.ca

ABSTRACT

Many studies have examined the efficiency of water covers to control acid mine drainage generation from sulphide tailings. However, few have addressed the underwater deposition of highly sulphide-rich tailings with low neutralizing capacity. The objective of this study was to simulate the impact of various hydrodynamic conditions on water quality when highly sulphide-rich tailings (containing more than 80% pyrite) were deposited beneath a water cover. Laboratory columns were used. Tailings were placed at the bottom of the columns and covered with deionized water. The applied hydrodynamic conditions consisted of water covers that were stagnant, stagnant with downward intermittent infiltration, continuously stirred with low tailings resuspension (130 to 180 mg/L of suspended solids SS), and continuously stirred with high tailings resuspension (2910 to 3100 mg/L of SS). A continuously stirred water cover with a sand layer placed over the tailings was also studied. For each column, cover and pore water samples were analyzed monthly to determine changes in the geochemical parameters over a monitoring period ranging from 369 to 840 days. For water covers with tailings at rest, results indicated that pH remained near neutrality and concentrations of dissolved metals (Cu, Fe, Ni, Pb, and Zn) were generally low compared to columns with resuspension. Adding a layer of inert material (20 cm of sand) significantly prevented sulphide tailings from oxidizing. Results showed that Zn was the main dissolved metal leachate with the highest concentration in all columns (except for Fe), although the tailings contained only 0.38% Zn in forms of sphalerite free, attached to pyrite and included within pyrite.

Rapport-Gratuit.com

Key words: acid mine drainage, underwater deposition, chemical stability, tailings reactivity, tailings resuspension, water cover geochemistry, geochemical modeling

RÉSUMÉ
De nombreuses études ont examiné l'efficacité de recouvrements en eau utilisés pour contrôler la génération du drainage minier acide par des résidus miniers sulfureux. Cependant, peu d'entre-elles ont abordé la déposition subaquatique de résidus hautement sulfureux avec une capacité de neutralisation très faible, voire négligeable. L'objectif de cette étude était de simuler l'impact de différentes conditions hydrodynamiques sur la qualité de l'eau quand des résidus très riches en sulfure (contenant plus de 80% de pyrite) sont déposés sous une couverture d'eau. Des essais en colonne ont été utilisés au laboratoire. Les résidus ont été placés dans des colonnes et recouverts avec de l'eau déionisée. Les conditions hydrodynamiques appliquées comprenaient des couvertures aqueuses qui étaient stagnante, stagnante avec une infiltration intermittente descendante, agitée en continu avec une faible remise en suspension des résidus (130 à 180 mg/L de matières en suspension MES), et agitée en continu avec une forte remise en suspension des résidus (2910 à 3100 mg/L de MES). Une couverture d'eau agitée en continu, mais où une couche de sable placé au-dessus des résidus a également été étudiée. Pour chaque colonne, des échantillons d'eaux des recouvrements et d'eaux interstitielles ont été analysés mensuellement pour déterminer les changements dans les paramètres géochimiques au cours d'une période de suivi allant de 369 à 840 jours. Pour les couvertures d'eau stagnantes, les résultats ont indiqué que le pH restait proche de la neutralité et les concentrations de métaux dissous (Cu, Fe, Ni, Pb et Zn) étaient généralement faibles par rapport aux couvertures d'eau avec remise en suspension où les sulfates et les métaux étaient très élévés. L'ajout d'une couche de matériau inerte (20 cm de sable) limitait significativement l'oxydation des résidus sulfureux. Les résultats ont aussi montré que le Zn était le principal métal dissous ayant la plus forte concentration dans toutes les colonnes (à l'exception du Fe), bien que les résidus ne contenaient que 0,38% de Zn sous forme de sphalérite libre, attaché à la pyrite et incluse dans la pyrite.

Mots clés: Drainage minier acide, déposition subaquatique, stabilité chimique, réactivité des résidus, remise en suspension des résidus miniers, géochimie de la couverture d'eau, modélisation géochimique

4.1 Introduction

Sulphide-rich tailings can oxidize in the presence of oxygen and water and generate acid mine drainage (AMD). Reducing the oxygen supply to the tailings appears to be one of the most effective ways to prevent the generation of AMD in humid climates. This can be achieved by depositing the tailings beneath a water cover. The efficiency of this technique is due to the limited availability of dissolved oxygen (DO) and the low DO diffusion coefficient in the cover water. The DO concentration and diffusion coefficients in water (8.6 mg/L and

2×10^{-9} m^2/s at 25 °C, respectively) are low compared to those for oxygen in air (285 mg/L and 1.8×10^{-5} m^2/s at 25 °C, respectively) (Yanful and Verma, 1999; Romano *et al.*, 2003; Davé *et al.*, 2003).

DO concentration and resuspension of submerged tailings can affect the effectiveness of the water cover. DO concentration in the water cover depends on the transfer of oxygen from air to water (which is influenced by wind speed) and DO transport through the water cover to the tailings. DO transport through the water cover depends on the DO concentration gradient between the air–water and water–tailings interfaces, the oxidation rates of resuspended tailings (if present) and of tailings at rest, the DO diffusion coefficient in the tailings, and the water infiltration rate, if applicable (Li, Aubé and St-Arnaud, 1997). DO transport in the water cover has been studied in the field, in the laboratory, and using mathematical and numerical models (Berg, Risgaard-Pertersed and Rysgaard, 1998; Elberling and Damgaard, 2001; Vigneault *et al.*, 2001). Generally, measured vertical DO profiles have been used to determine the DO flux at the water–tailings interface using Fick's first law. In the previous chapter, laboratory testing and interpretation procedures were developed to determine the reaction rate coefficient K_r of tailings submerged under water with cell tests that can be used to estimate the flux.

Resuspension is generally caused by wind-induced waves and return currents. The hydrodynamic conditions for resuspension in shallow water covers have been previously studied (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Catalan and Yanful, 2002; Yanful and Catalan, 2002; Peacey and Yanful, 2003; Samad and Yanful, 2004; Mian, 2004; Mian and Yanful, 2004; Mian and yanful, 2007; Mian, Yanful and Martinuzzi, 2007). Most of these studies have focused on determining wave– and return current–induced shear stress and the critical shear stress above which resuspension begins. Resuspension exposes the tailings to greater contact with DO in the water cover. Resuspended particles can more easily oxidize, increasing the acidity of the water cover and the release of dissolved metals.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

The efficiency of the technique of water cover in terms of oxidation control has been evaluated *in situ* (e.g. Yanful and Simms, 1997; Holmström and Öhlander, 1999; MEND, 2001; Vigneault *et al.*, 2001; Peacey and Yanful, 2003; Mbonimpa *et al.*, 2008) and in the laboratory (Doeppker and Drake, 1991; Davé *et al.*, 1997; Yanful, Verma and Straatman, 2000; Davé and Patkunc, 2003). A brief literature review focusing on laboratory studies on the behaviour of water covers used to control sulphide-rich tailings oxidation is presented below. Given the huge amount of results presented in each of these studies, only general conclusions are presented below.

Doeppker and Drake (1991) studied the dissolution of metals from three metal-mine tailings using a series of submerged tailings batch tests at the U.S. Bureau of Mines laboratories. The tailings from two lead mine tailings contained essentially dolomite [$CaMg(C0_3)_2$] with trace amounts of sphalerite (ZnS), pyrite (FeS_2), galena (PbS). The copper mine tailings contained abundant free pyrite with minor amounts of chalcopyrite ($CuFeS_2$). Metal release in tests with aerated water close to DO saturation was greater than metal dissolution from stagnant waters. Metal mobilization also increased with contact time, which varied from 76 to 156 days. For a given contact time, the contact surface area, leachate exchange rates (dilution effects), and dissolved oxygen, as well as the nature of the tailings themselves were the most important factors affecting dissolution from submerged tailings.

Davé *et al.* (1997) evaluated the oxygen diffusion and metal release characteristics of underwater deposited reactive tailings using laboratory column lysimeters. Fresh, pyrrhotite, low-sulphide, and partially oxidized tailings containing 3, 10, 1, and 4% S, respectively, were used. The molecular diffusion of oxygen from the water surface to underwater reactive tailings was measured under three test conditions: unmixed water covers with depths of 0.5 and 1.0 m and mixed water cover with depth of 1.0 m. The tests lasted for approximately one year after reaching equilibrium conditions. The main findings were that tailings submersion did not completely prevent oxidation or metal release. Unexpectedly, neither the height of the water cover above the tailings nor mixing had any effect on oxygen diffusion or leaching characteristics.

Laboratory experiments were performed to examine the impact of resuspension on metal release from unoxidized mine tailings obtained from the Falconbridge Strathcoma Mine, near Sudbury, Ontario, Canada (Yanful, Verma and Straatman, 2000). Column tests using different water cover depths with and without resuspension were monitored for 126 days. Tailings resuspension was induced by a stirrer placed 10 cm from the water cover surface. The stirred water covers were not fully oxygen saturated. The tailings contained 75% pyrrhotite and 0.14% chalcopyrite. In the columns, a 10-cm thick tailings layer was sandwiched between an 80 cm water cover and a 15 cm bottom water layer. Results indicated that tailings at rest oxidized less and released less acidity and fewer metals than resuspended tailings. Acidity and metal release increased with increasing mixing energy.

Davé and Patkunc (2003) studied the surface reactivity of copper mine tailings under shallow water cover conditions using aquarium-type diffusion lysimeters containing 30 cm of tailings at the bottom and 26 cm of saline see water and natural lake fresh water covers. The tailings used were acid generating with a sulfide content of 18 - 20%, a negligible neutralization potential (NP) of approximately 0 - 2 kg $CaCO_3$/ton and a negative net neutralization potential (NNP) in the range of -600 to -700 kg $CaCO_3$/ton. The water was recirculated to create well-mixed and oxygenated water cover conditions without turbulence and tailings resuspension. The cover and pore water quality was measured as a function of time for the 1.5 year study period. The dissolution and release of previous oxidation-reaction products present in the tailings influenced the pore water chemistry.

Laboratory studies (e.g., Davé *et al.*, 1997; Yanful and Simms, 1997) and theoretical calculations (Li, Aubé and St-Arnaud, 1997) have also shown that adding a layer of inert or non-acid-generating reactive material above the reactive tailings could limit tailings oxidation. The materials used were mostly sand, compost, and peat. Awoh, Mbonimpa and Bussière (2012) investigated the impact of placing such protective layer on the dissolved oxygen flux consumed by the tailings.

Although water covers have been investigated for years, few studies have addressed water covers placed over highly sulphide-rich tailings with very low neutralizing capacity. The purpose of the present study was to contribute to the understanding of the behaviour of such water covers. The objective was to investigate the geochemical evolution of such cover water when subjected to different controlled hydrodynamic conditions over a long period. The study was performed using laboratory column tests with stagnant water covers with and without infiltration, aerated water cover without tailings resuspension, continuously stirred water covers with low and high tailings resuspension, and continuously stirred water cover with protection layer of inert granular material placed over the tailings. Changes in the water chemistry of the cover and pore waters were monitored over a period ranging from 369 to 840 days. Results are presented and discussed.

4.2 Materials and methods

4.2.1 Tailings characteristics

Particle size was determined using a Malvern Mastersizer laser particle size analyzer. This showed that the tailings contained 85% of particles smaller than 80 μm and 5% of particles smaller than 2 μm. Details on the techniques of grain-size distribution measurements are given by Merkus (2009). The relative density of these tailings was determined with a Micromeritics Accupyc 1330 helium pycnometer indicated a result of 4.58. This value was close to that of solid grains of pure pyrite at 5.01 (Landry *et al.*, 1995). The mineralogical analysis performed with X-ray diffraction using the quantitative Rietveld method (relative precision of ±0.5%) with TOPAS software (Young, 1995), showed that these tailings were highly sulphide-rich, with 83% pyrite, 9% chlorite, 6% quartz, and 2% muscovite and traces of carbonate. This result was confirmed by carbon/sulfur analysis with an ELTRA CS2000 Carbon Sulphur determinator which showed 47% of sulfur and 0.13% of carbon.

Elemental abundance was estimated by complete digestion in HNO_3/Br_2/ HF/HCl followed by Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry (ICP-AES, relative precision

of ±5% ; Villeneuve, 2004). The result showed a strong dominance of Fe and S contents at 48.9% and 38.7 %, respectively and the presence of Zn (0.38%) and other trace elements such as Ni (0.001%), Cu (0.05%), Pb (0.07%), and Ca+Mg+Mn (0.53%). The presence of Zn was confirmed by SEM analysis, which showed three forms of sphalerite: free sphalerite, sphalerite attached to pyrite, and sphalerite as an inclusion in pyrite (see Figure 4.1). The first two forms of sphalerite were more available for oxidation than the sphalerite included within pyrite, which could release Zn. In addition to sphalerite, the optical light microscopy analysis also highlighted trace amounts of other minerals such as chalcopyrite ($CuFeS_2$), galena (PbS), graphite (C), and magnetite ($Fe^{+2}Fe_2^{+3}O_4$).

4.2.2 Laboratory column tests

4.2.2.1 Column test setup

Four water cover configurations were simulated using PVC columns with an inner diameter of about 13 cm and an internal height of about 128 cm. To avoid interaction with lighting, black PVC was used. The different components of the columns are shown using transparent Plexiglas (Figure 4.2). Six water sampling ports (ports 1 to 6) were placed along the column at heights of 110, 70, 40, 30, 20, and 10 cm from the bottom of the column, respectively. Ports 1 to 3 were designed to be located in the water cover, while ports 4 to 6 were designed to collect pore water from the tailings. An overview of the column setup is shown in Figure 4.3.

The pore water sampling system consisted of three white horizontal PVC tubes perforated and covered with a geotextile to prevent tailings from entering the tube (see Figure 4.2). The volume of the tube was about 40 mL. The ends of each sampling tube were connected to valves used for sampling, as described below. Initially, a syringe was inserted through plastic vials for sampling. Each vial was closed with a septum stopper on the air side and the extremity inserted into the tailings was covered with a geotextile to prevent solid particles from entering the vial. Sampling pore water using a syringe was unsuccessful

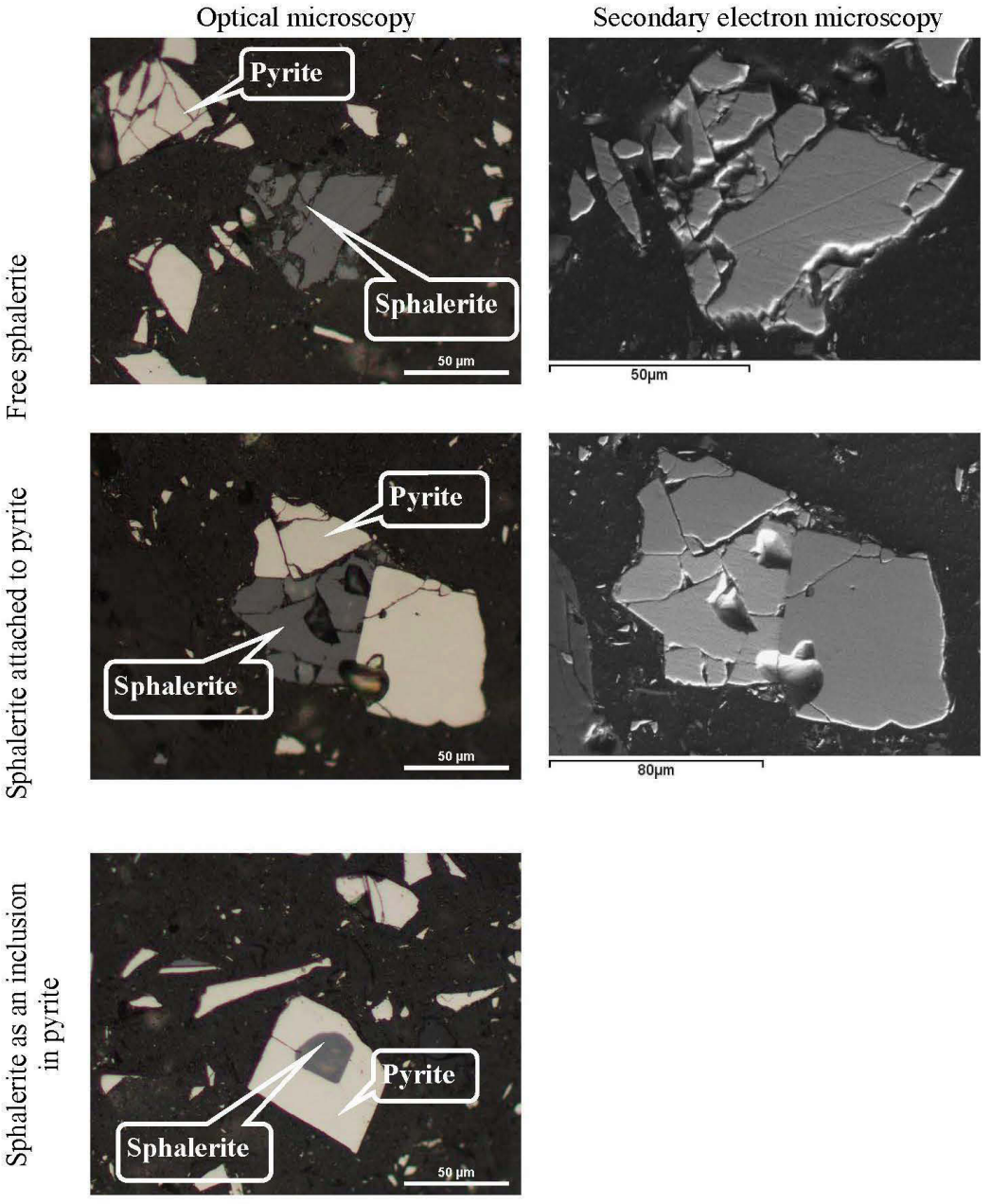


Figure 4.1 Different sphalerite-pyrite associations in the tailings.

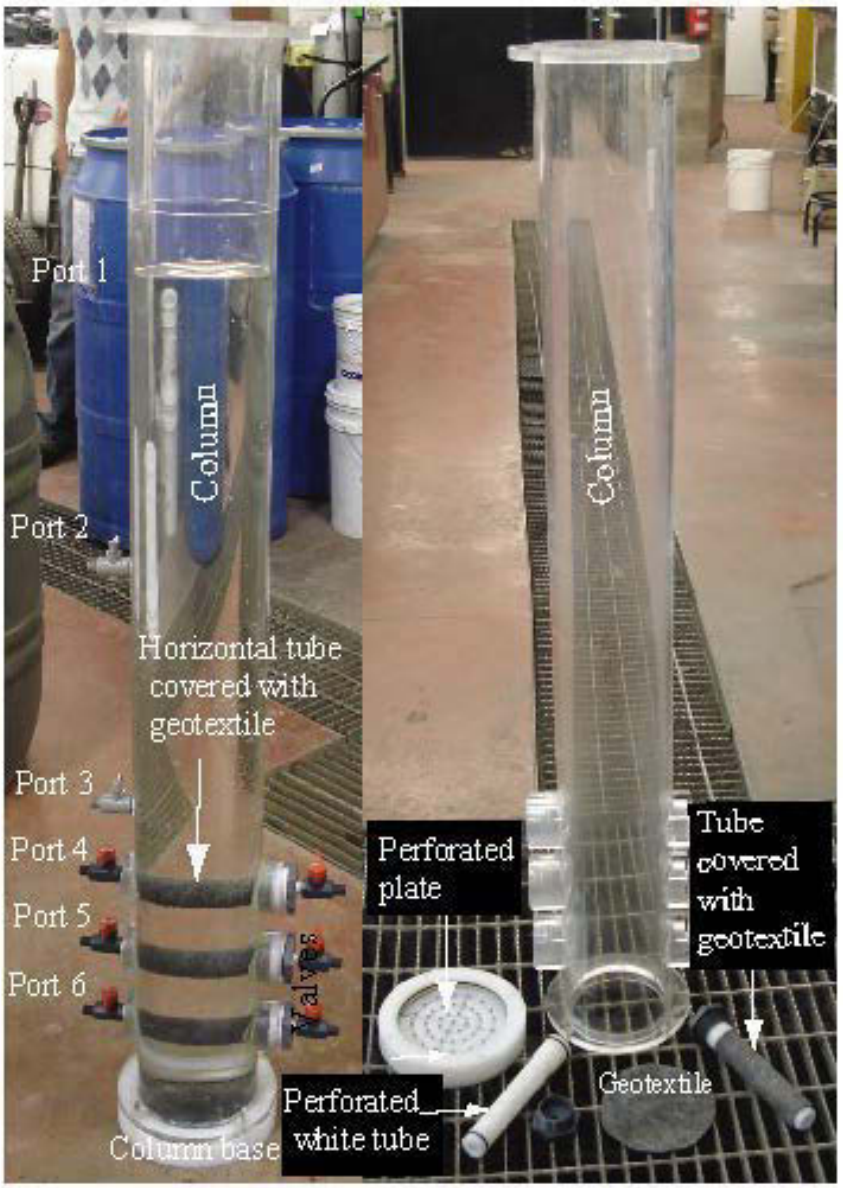


Figure 4.2 Column components.

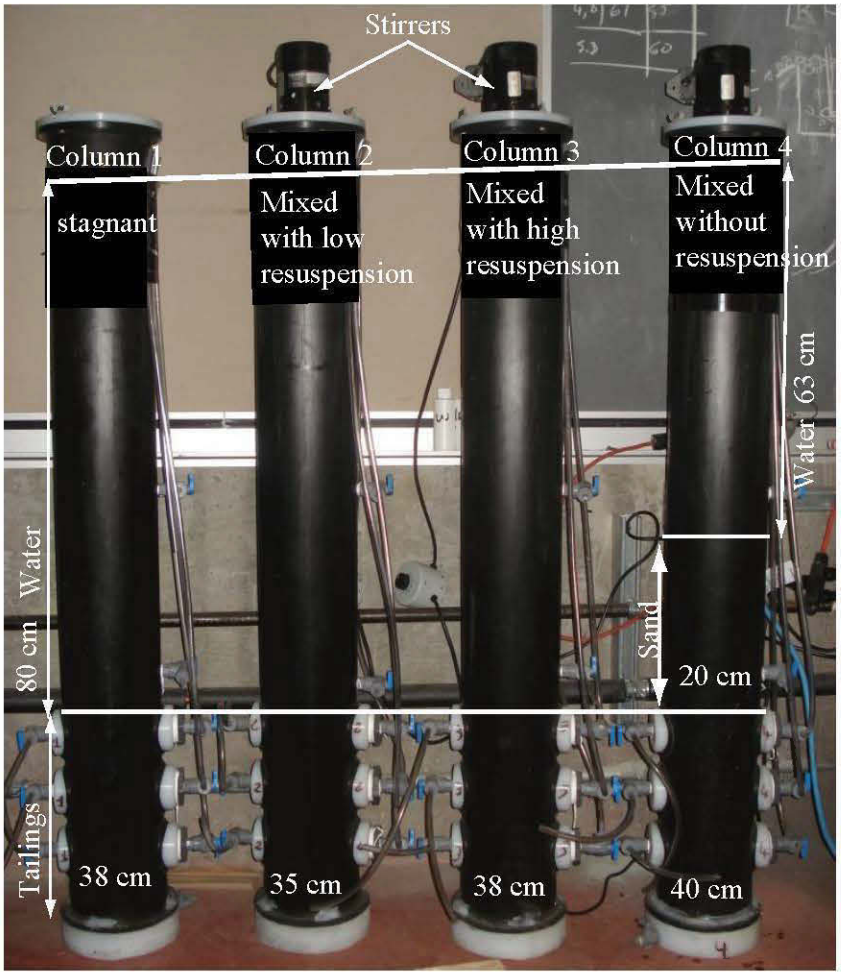


Figure 4.3 Experimental setup in the laboratory.

After sedimentation and consolidation, the tailings were very dense, so very little water was collected, even when applying a high suction.

A lid screwed to the top of each column was used to support an AC motor (model 103, Talboys Laboratory) to control the water cover stirrer, when applicable. Stirrers had three 2.5-cm-long wings. The stirrer extended to a depth of about 30 cm in columns 2 and 4 and about 40 cm in column 3. The lid was perforated to allow introducing different probes into the water cover.

Before filling the column, tailings were first homogenized with a mixer. The volume of pulp tailings required for a 30-cm-thick tailings layer was estimated and gradually poured into the column through a funnel. When the pulp reached the level of the first horizontal sampling tube (Port 6), the tube was filled with deionized water and deoxygenated water to prevent air pockets from forming in the tube. Pulp filling then continued until reaching the level of port 5. The above-described procedure was repeated until reaching the top sampling tube (Port 4). Once the whole tailings volume was poured into the column, the pulp was allowed to settle and consolidate for several days until equilibrium was reached. The thickness of the tailings in columns 1, 2, 3, and 4 was respectively 38 cm, 35 cm, 38 cm, and 40 cm (see Table 4.1). For column 4, a 10-cm sand layer was initially placed over the tailings. Despite precautions taken to avoid mixing of the sand and tailings, fine particles of tailings were later observed in the stirred water cover. An additional 10-cm sand layer was added to form a 20-cm thick layer of inert granular material.

The supernatant water above the tailings was replaced by deionized water (not deoxygenated) while minimizing tailings resuspension. The thickness of the water column over the tailings was about 80 cm for columns 1 to 3 and about 63 cm for column 4.

After allowing the column to rest for 4 days, the hydrodynamic conditions presented in Table 4.1 were then applied to each column. These conditions were applied from April 2009 to July 2011 (840 d) for column 3 and from October 2009 to July 2011 (650 d) for column 4 (delay due to problems placing the sand layer over the tailings). The water cover was continuously stirred in column 3, with high resuspension, and continuously agitated in column 4, without resuspension. For columns 1 and 2, these conditions were implemented in two phases. In the first monitoring phase lasting from April 2009 to July 2010 (471 d), the water cover was stagnant (no stirring) in column 1 and continuously stirred with low resuspension in column 2. Column 2 was stirred at 53 revolutions/minute (RPM), with low resuspension (130 to 180 mg/L of suspended solids SS), at about 87 RPM in column 3, with high resuspension (2910-3100 mg/L of SS), and at 53 RPM in column 4, without resuspension. The tailings in all

Rapport-Gratuit.com

columns were not flushed to eliminate pre-existing sulphates and dissolved metal in the pore water prior to monitoring.

It should be mentioned that the water cover in columns 2 and 3 were initially planned to be continuously mixed without and with low tailings resuspension. For that purpose, preliminary stirring tests were performed using transparent Plexiglas cylinders (Figure 4.2). During these tests, there was no resuspension at 53 RPM in a column with the same configuration as column 2 and the resuspension was very low at 87 RPM in a column with the same configuration as column 3. These stirring tests lasted for about one hour. These stirring conditions were then applied for the true tests. A later monitoring of the suspended tailings concentrations revealed however an unexpected effect of the stirring time that increased the concentrations to the values given above.

Table 4.1 Column configurations and applied hydrodynamic conditions

Column	Tailings depth (cm)	Water depth (cm)	Hydrodynamic conditions	
			Phase 1	Phase 2
1	38	80	Stagnant water	Bottom seepage
2	35	80	Continuously mixed water with low resuspension (130 to 180 mg/L of SS)	Continuously mixed water without resuspension+aeration
3	38	80	Continuously mixed water with high resuspension (2910 to 3100 mg/L of SS)	ND*
4	40 (+20 cm sand)	63	Continuously mixed water without resuspension	ND

*ND: Not Defined

In a second phase, which ran from August 2010 to July 2011 (369 d from the 471st to the 840th day of monitoring), the hydrodynamic conditions applied to columns 1 and 2 were modified (no changes made to columns 3 and 4). For column 1, the cover water was rapidly replaced with 80 cm of fresh deionized water. Downward infiltration was applied monthly to

column 1 by opening a valve at the base of the column for 24 hours. This valve was connected to a plastic U-tube used to prevent air inlet into the base of the column. Water was drained from the column at a flow rate of about 37.5 mL/h. This downward infiltration was used to study the impact of forced contact between the tailings and DO from the water cover. Without infiltration, DO penetration is limited to a few mm into the tailings, as mentioned in the introduction.

For column 2, the cover water was also rapidly replaced with deionized water. Water stirring was replaced by aeration without tailings resuspension using a vertical ⊥-tube inserted in the water column up to about 10 cm above the tailings. Compressed air was sent into the vertical tube at a rate just sufficient to create upward aeration of the cover water without resuspending the tailings. For this purpose, the ⊥-tube was provided with three crossed horizontal tubes perforated on the upper surface. The objective was to evaluate the influence of aeration without resuspension on the oxidation of mine tailings compared to oxidation in stirred water cover with low resuspension.

For convenience, columns 1 and 2 are designated hereinafter by 1-1 and 2-1 for the first monitoring phase and 1-2 and 2-2 for the second phase. The first water sampling in phase 2 was performed after 31 days (502nd day of monitoring).

4.2.2.2 Water sampling and analysis

Before each sampling of water from the water cover, the vertical DO concentration profile was measured downwards from the top of the water cover at 20-cm intervals using a fiber-optic oxygen sensor type PSt3 (0-100% oxygen) combined with an oxygen reading system (OXY10, PreSens GmbH, Germany). This probe provided a DO reading within 60 seconds. Cover water samples were then collected from each column using the three sampling ports 1 to 3 (starting from the top) and stored in 150-mL HDPE bottles. After geochemical analysis, part of each sample was returned to the water cover. A small amount of deionized water (about 20 mL) was also added to the column to compensate for the quantity used for the

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

elemental analysis. Hence, the water cover was maintained at a constant height above the tailings. The dilution effect was assumed negligible.

The pore water in the tailings was sampled using ports 4 to 6. While the amount of water (about 15 mL) needed for ICP-AES analysis was sampled from one side of the horizontal tube (about 40 mL), deionized and deoxygenated water was added to the opposite side. The column was slightly inclined to allow sampling and replacing the water in the pipe without disturbing the system (preventing oxygen inlet). It was assumed that different dissolved ions were exchanged between pore water and water in the horizontal tubes by molecular diffusion, and that equilibrium was established between two successive sampling campaigns. The time required to reach equilibrium was previously determined. Two tubes similar to those installed in the columns for pore water sampling were inserted into saturated tailings placed in a large bucket and filled with deionized and deoxygenated water. Samples of water were simultaneously collected from inside the two tubes and tailings over time and analyzed. The chemical analysis results showed that the water in the tubes was representative of the pore water after less than one month. Based on these results, the sampling frequency in the columns was set at one month.

Geochemical analyses (pH, redox potential Eh, and electric conductivity EC) were performed on the cover water samples. pH was obtained with an relative precision of ± 0.01 pH using an Orion Triode sensor coupled with a benchtop pH/ISE meter Orion model 920A. Eh was measured with a Pt/Ag/AgCl combined electrode (relative precision ± 0.2 mV) and subsequently corrected for a standard hydrogen electrode. Electrical conductivity (EC) was measured with an OAKTON Acorn Series CON 6 conductivity meter with two platinum electrodes (± 0.5% precision).

All cover water and pore water samples were filtered through a Fisher Scientific nylon filter with a 0.45 μm pore diameter. Samples were then acidified to 2% v/v HNO_3 for preservation. Samples were subsequently analyzed by ICP-AES. Sulphate content was calculated from the concentration of total sulphur (S) using the ratio of molecular weights and assuming all

sulphur is in sulphate form. Indeed, the most stable form of sulfur in solution in the oxidizing conditions typically found in the AMD is the sulphate form, and the concentrations of sulfur species (S^{2-}, SO_3^{2-}, etc.) are negligible (Villeneuve, 2004).

Concentrations of suspended solids (SS) in the stirred water covers for columns 2-1 and 3 were measured by filtering through a 0.45-μm capsule filter (Centre expertise en analyse environnementale du Québec (CEAEQ, 2004) three times at monitoring day 248, 361, and 471. Dry tailings from the sample collected from column 3 with high concentrations of SS after 471 days were subjected to laser particle size analysis to examine the size of particles affected by resuspension. XRD mineralogical and elementary (with ICP-AES) analyses were performed to investigate the impact of oxidation on these particles.

4.2.3 Post-testing analysis

Columns 1 and 2 were dismantled after a period of 809 days; column 3 was dismantled after 840 days and Column 4 after 650 days (post-testing analysis was not performed for column 4). Water–tailings interfaces were analyzed visually and tailings samples were collected. Mineralogy was determined by optical reflected light microscopy on polished sections using a Zeiss Axio Imager M2m microscope. Scanning electron microscopy (SEM) using backscattered electrons imaging (BSE) was performed on a Hitachi S-3500N microscope equipped with an X-ray energy dispersive spectrometer (Silicon drift detector X-Max 20 mm^2) and INCA software (450 Energy). The aim was to characterize secondary mineral precipitates.

4.3 Results

Due to the large amount of data collected, only the most representative and pertinent results are presented here. Vertical DO profiles in the water covers are first presented, followed by temporal variations in pH, sulphates, and dissolved Zn in water samples from port 3 located at 2 cm above the water–tailings interface for columns 1-1, 1-2, and 3, at 5 cm for columns 2-1 and 2-2, and at 70 cm above the sand–tailings interface for column 4. Port 3 in column 4

was located in the sand layer (20 cm), making gravity sampling difficult. pH is an indication of acidity, sulphate represent the direct product of pyrite oxidation and Zn was the main dissolved metal leachate with the highest concentration in all columns (except for Fe). Other dissolved metal concentrations as well as Eh and EC are given in terms of range variation. The change over time is shown in Appendix B. Comparison of sulphate and dissolved metals in cover and pore waters is also presented followed by vertical profiles of pH, sulphate, and Zn. Finally, results on the characterization of resuspended tailings in column 3 and on post-testing tailings are presented. More detailed results can be found in Appendix C and D.

4.3.1Vertical DO profiles in the water cover

Typical vertical DO profiles determined on an arbitrarily chosen date after 471 days of monitoring in columns 1-1, 2-1, 3, and 4 are given in Figure 4.4. The DO profile determined after 127 days of monitoring for columns 1-2 and 2-2 is also presented. In stirred columns 2-1, 3, and 4 and in the aerated column 2-2, DO concentrations were generally homogeneous from the surface to the bottom of the water cover. DO concentrations ranged from 8 to 9 mg/L. Water temperature during measuring ranged from 19.2 to 20.9 °C. Saturated DO concentrations in water at this temperature range varied from 9.3 to 8.9 mg/L (Benson et Krause, 1984). These results indicate that DO in the water cover in these columns was close to saturation. The DO in the aerated water cover for column 2-2 was lower than in the stirred water cover for columns 2-1, 3, and 4. Mixing the water favoured greater oxygen solubility than the water aeration applied to columns 2-1 and 2-2, respectively.

In columns 1-1 and 1-2, DO concentrations decreased from 7.6 mg/L-7.7 mg/L at the top of the water column to 6.6 mg/L - 6.8 mg/L at the water–tailings interface for temperatures from 19 to 20 °C. According to Benson and Krause (1984), DO concentration at saturation for these temperatures is 9.3 to 9.1 mg/L. As a result, DO concentrations in the stagnant columns 1-1 and 1-2 were lower than the saturation concentration. The natural transfer of oxygen at the water–air interface (without agitation or aeration) and the diffusion of DO through the water column could not saturate the water cover. Change in DO at the tailings–water interface can be seen in Appendix B.

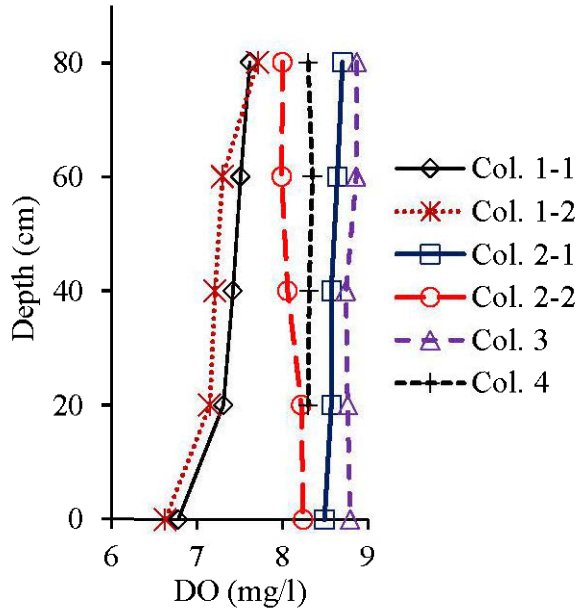


Figure 4.4 Vertical DO profiles in cover water after 471 days for columns 1-1, 2-1, 3, and 4 and after 127 days for columns 1-2 and 2-2.

4.3.2 Variations of pH

Figure 4.5 shows the temporal change in pH. For columns 1-1 and 4, pH remained approximately neutral (from 6 to 8) in the water cover. For column 1-2 with 24-hour monthly downward infiltration, pH in the water column decreased with time, ranging from 6 to 4. This drop in pH was attributable to the infiltration that induced a contact between the tailings and water with greater dissolved oxygen content. In the cover water in column 2-1, pH decreased from 7 to 3.8 during the first 471 days of monitoring (phase 1). The replacement of the water by deionized water at the beginning of phase 2 (column 2-2) increased pH to 6. pH decreased thereafter and stabilized at around 3.9 at the end of phase 2. This pH was close to that reached at the end of phase 1. As tailings resuspension in column 2 was stopped during phase 2, these results suggest that oxidation of unsuspended tailings and possible diffusion from the pore water was responsible for the observed decrease in pH. In column 3, which was continuously stirred for 840 days without changing the hydrodynamic conditions, pH

dropped from 7.2 to 1.6. This decrease in pH was due to oxidation of suspended and unsuspended tailings in contact with highly DO-saturated water.

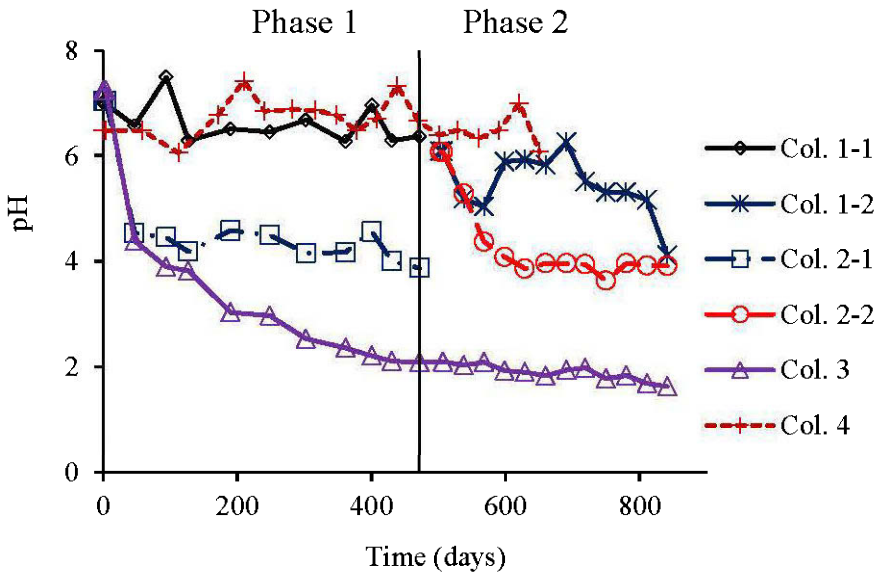


Figure 4.5 Temporal change in pH of the cover water at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4.

4.3.3 Sulphates and dissolved metals

The analysis showed that the deionized water (not deoxygenated) used to fill the columns (at time 0) contained very little sulphate (0.27 mg/L) or Zn (0.009 mg/L). The first water sampling was performed 4 days after filling the columns with deionized water. Sulphates indicate sulphide oxidation. After the 4 days, sulphate (from 7 to 69 mg/L) and Zn (from 0.015 to 3.9 mg/L) were present in water samples from all water covers. These ions were probably produced by molecular diffusion from existing ion concentrations in the pore water. The difference in ion concentrations at 4 days across the columns was due to the fact that they were filled with tailings pulp at different times (although the same homogenized pulp was used).

From Day 4 to the end of the monitoring, Eh, electric conductivity EC, and concentrations of sulphate and dissolved metal increased in all water covers to different degrees. Table 4.2 shows the ranges of variations. The detection limits of Al, Cu, Fe, Ni, Pb, Zn are 0.01 mg/L, 0.003 mg/L, 0.006 mg/L, 0.004 mg/L, 0.02 mg/l and 0.005 mg/L respectively.

Concentrations of sulphate and metals were higher in columns 2-1 and 3 compared to the other columns for two reasons: first, the cover waters in these columns were DO saturated, causing the tailings to oxidize and release metals. In addition, the covers in columns 2-1 and 3 were stirred, with low and high tailings resuspension, respectively, so that suspended particles in the DO saturated water were more easily oxidized.

Table 4.2 Range of variation in sulphate and dissolved metal content for given monitoring periods in the water covers

Column	1-1	1-2	2-1	2-2	3	4
Monitoring Period (d)	4-471	471-840	4- 471	471-840	4-840	4-650
EC (µS/cm)	47-130	47-304	47-1079	47-389	4 -16820	4-361
Eh (V)	0.08-0.40	0.08-0.87	0.08-0.67	0.08-0.90	0.08-0.94	0.08-0.8
Sulphate (mg/L)	24-84	66-113	7-567	18-155	11-22380	17-127
Fe (mg/L)	0.006-0.12	0.01-0.8	0.006-1.4	0.04-1.7	0-7780	0.006-0.2
Zn (mg/L)	0.07-0.49	0.009-1.6	0.21-11.6	0.94-4.8	0.22-599	0.01-0.33
Cu (mg/L)	0.003-0.035	0.004-0.025	0.37-1.14	0.004-0.037	0.003-69.3	< DL
Al (mg/L)	< DL	< DL	0.01-0.08	0.02-0.15	0.08-144.3	< DL
Ni (mg/L)	< DL	< DL	0.013-0.06	0.004-0.02	0.006-1.69	< DL
Pb (mg/L)	< DL	< DL	1.29-3.49	0.07-0.05	2.31-4.22	< DL

DL: Detection limit

The presence of Fe and Zn is due to the oxidation of sulphide minerals (i.e. pyrite and sphalerite) present in the tailings. The concentrations of dissolved Fe may be underestimated due to precipitation of iron oxides, as observed from SEM analyses at column dismantling and from geochemical modeling using VMinteq (Felmy, Griven and Jenne, 1984) (see results below). The Al is mainly due to the dissolution of silicates, such as muscovite ($KAl_2(AlSi_3O_{10})(OH)_2$) and chlorite ($(Mg,Fe)_3(Si,Al)_4O_{10}(OH)_2 \cdot (Mg,Fe)_3(OH)_6$) present in the tailings in respective proportions of about 2% and 9%. The presence of Cu is related to

the dissolution of chalcopyrite ($CuFeS_2$), which was detected by SEM in the tailings. The elemental analysis of the tailings shows 0.05% Cu content. Concentrations of Ni (0.001%) and Pb (0.068%) were also detected in the elemental analysis of the tailings, which explains their presence in the water cover.

Figures 4.6 and 4.7 show the temporal change in sulphate and Zn concentrations in the water covers. Zn is one of many toxic metals such as Ni, Co, As, and Sb that are soluble event at near-neutral pH (MEND, 2004; Plante, 2010). Change in Zn is presented because it is the most dissolved metal (except for dissolved Fe in column 3). In columns 1-1, 1-2, and 4, concentrations of sulphate and Zn are generally lower than in other columns. These concentrations increase significantly in column 3, particular after about 400 days, which can be explained based on the rate of sulphate loading in the water cover, as discussed below.

4.3.4 Comparison of sulphate and dissolved metals in cover and pore waters

The change in sulphate and Zn contents in the cover water (for samples from port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and port 2 for column 4) and in the pore water (sample from port 5 located 20 cm from the bottom of the column) was compared for the 4 columns.

Figure 4.8 compares the change in sulphates. In columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 4, sulphate concentrations are lower in the cover water than in the interstitial water. A secondary vertical axis was used in Figure 4.8c (for column 3) to make comparison easier. In columns 1-1, 1-2, 2-1, and 2-2, the oxidation of tailings close to the water–tailings interface did not produce enough sulphates, so that concentrations remained lower in the cover water than in the pore water. In column 4, the presence of the sand layer prevents DO from oxidizing the underlying tailings, and the sulphates present in the water cover may have diffused from the pore water. In column 3, with a DO-saturated water cover and strong tailings resuspension (2915-3100 mg/L), much higher sulphate concentrations were observed in the water cover than in the pore water. Downwards diffusion may have occurred.

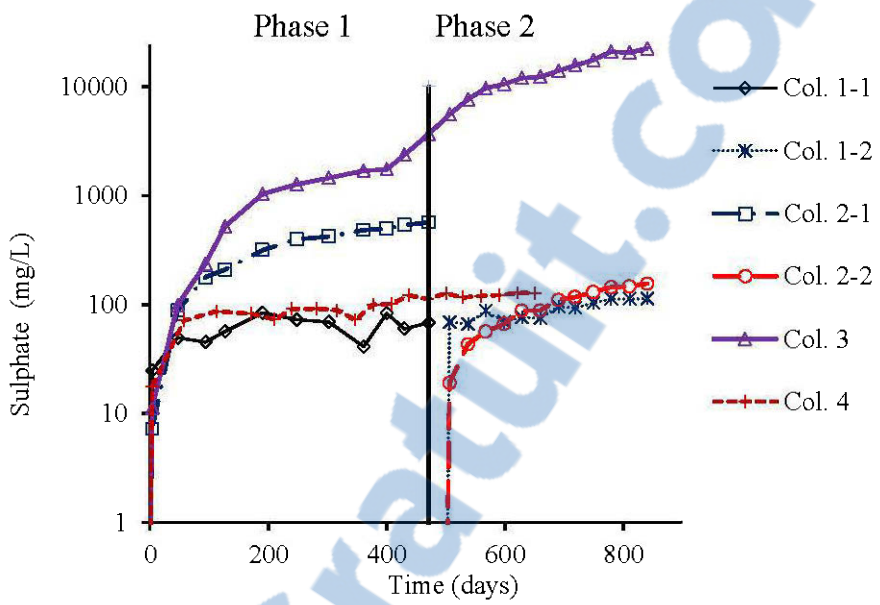


Figure 4.6 Temporal change in sulphate in the water covers at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 (logarithmic scale for the vertical axis).

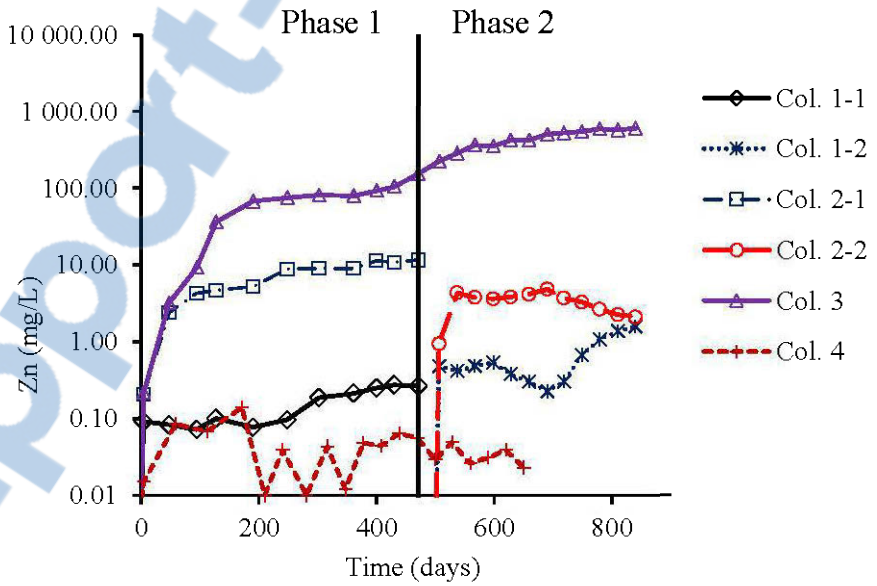


Figure 4.7 Temporal change in Zn in the water covers at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 (logarithmic scale for the vertical axis).

Rapport-Gratuit.com

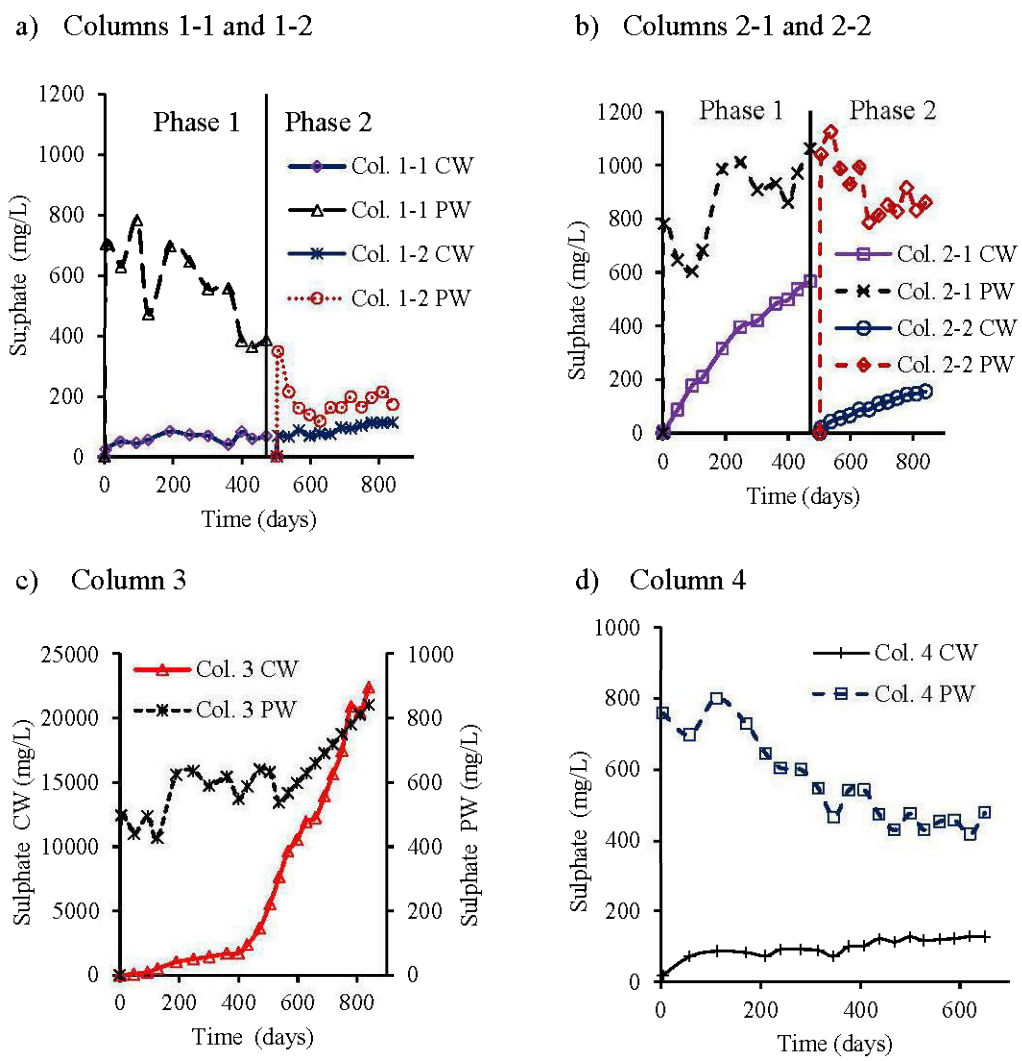


Figure 4.8 Comparison of temporal change in sulphate in cover water (CW) at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 and in pore water (PW) at port 5 (a secondary vertical axis is used in Figure 4.8c).

Figure 4.9 shows the change in Zn in the cover water and pore water (a secondary vertical axis is used in Figure 4.9c). For columns 1-1 and 4, Zn concentrations are generally lower in cover water than those for interstitial water for the same reasons as for sulphates. In columns 1-2, 2-1, 2-2, and 3, Zn concentrations in the cover waters are higher than in interstitial waters. In these scenarios, sphalerite oxidation was the main generator of Zn. In the case of

column 1-2, downward infiltration of cover water with greater DO content favoured the oxidation of the tailings close to the interface, which were continuously exposed to sufficient DO. However, Zn content did not increase in the pore water, probably because the quantity of DO available during the 24-h-per-month period was rapidly consumed.

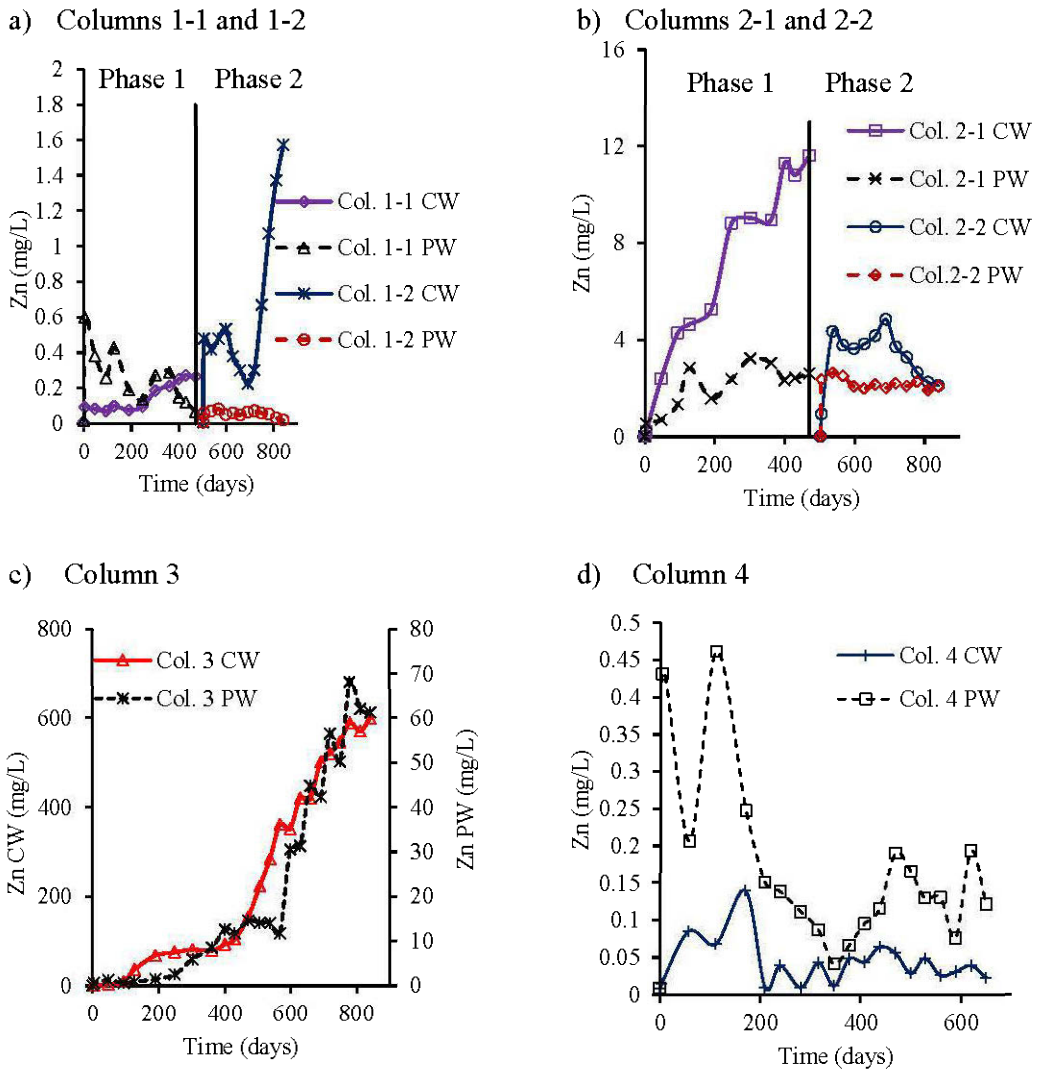


Figure 4.9 Comparison of temporal change in Zn concentration in cover water (CW) at port 3 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 and at port 2 for column 4 and in pore water (PW) at port 5 (a secondary vertical axis is used in Figure 4.9c).

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

In all columns, sulphate and Zn concentrations in the pore waters fluctuated. It is difficult to explain these changes. However, a general decreasing trend over time was noted for sulphate and Zn concentrations in the interstitial water in columns 1-1, 1-2, 2-2, and 4. Sulphate decreased from 705 to 348 mg/L in column 1-1 after 471 days, from 348 to 172 mg/L in column 1-2 after 338 days, from 1041 to 861 mg/L in column 2-2 after 338 days, and from 757 to 414 mg/L in column 4 after 650 days. On the other hand, Zn concentrations decreased from 0.6 to 0.1 mg/L in column 1-1, from 0.19 to 0.12 mg/L in column 1-2, from 2.4 to 2.07 mg/L in column 2-2, and from 0.4 to 0.12 mg/L in column 4.

In columns 2-1 and 3, sulphate and Zn concentrations in the pore water increased over time. Sulphates ranged from 780 to 1062 mg/L in column 2-1 and from 496 to 840 mg/L in column 3. Zn increased from 0.5 to 2.36 mg/L in column 2-1 and from 0.6 to 68 mg/L in column 3. Since sulphate and Zn concentrations were higher in the cover water than in the interstitial water, these elements may have been released by molecular diffusion to the pore water, where concentrations then increased over time.

4.3.5 Vertical pH, sulphate, and Zn profiles

Vertical pH, sulphate, and Zn profiles were used to highlight the vertical distribution of the cover and pore water chemistry. Profiles were determined at a given date in July 2010 (after 471 d of monitoring) for columns 1-1, 2-1, 3, and 4 and in November 2010 (after 127 d of monitoring) for columns 1-2 and 2-2. These profiles were typically representative of results obtained for other dates. Even if presented in the same figures, only profiles for the same date may be compared. For the vertical profiles, depth 0 corresponds to the water–tailings interface, except for column 4, where depth 0 is the sand–tailings interface. Positive and negative values correspond to depths above and below the interface, respectively.

Vertical profiles of pH in cover water (pH was not measured in the pore water, as explained in section 4.2.2.2) for columns 2-1, 2-2, 3, and 4, were almost constant throughout the water cover for a given time. The values were around 4 for columns 2-1 and 2-2, around 2 for column 3 and around 7 for column 4. Column 4, showed the highest pH and column 3 (very

mixed) the lowest pH (around 2). For columns 1-1 and 1-2, a very low pH gradient was found in the water cover, because the water was not mixed and the DO was consumed by tailings close to the water–tailings interface by oxidation. pH decreased very slightly from the top of the water cover to the water–tailings interface (from 6.7 to 6.4 for column 1-1 and from 6.2 to 5.8 for column 1-2).

Figure 4.10 shows the vertical profiles for sulphate and Zn, respectively. Sulphate concentrations remained almost constant throughout the water covers, ranging from 50 to 68 mg/L in column 1-1, from 58 to 69 mg/L in column 1-2, from 567 to 585 mg/L in column 2-1, at around 66 mg/L in column 2-2, at around 3500 mg/L in column 3, and at around 92 mg/L in column 4. Sulphate increased with increasing depth in pore waters within tailings in all columns, except for column 3. Dissolved metal concentrations were higher in pore water than in cover water, as is generally expected when pre-oxidized tailings are stored under a water cover (MEND, 2001; Peacey, Yanful and Payne, 2002). In this study, the tailings were not handled under anaerobic conditions, so that dissolved metals and sulphates may have formed during handling. Tailings were exposed to dissolved oxygen during storage, homogenization, and column filling. Consequently, sulphate and dissolved metals (Fe and Zn) were observed in pore waters immediately after the columns were set up.

Zn concentrations were uniform throughout the water covers : at around 0.3 mg/L for column 1-1, from 0.4 to 0.5 mg/L for column 1-2, and at around 12 mg/L for column 2-1, 3.6 mg/L for column 2-2, 153 mg/L for column 3, and 0.03 mg/L for column 4. These profiles are logically consistent with the applied hydrodynamic conditions. Unlike the sulphate profiles, Zn concentrations generally decreased with increasing depth into pore waters. These profiles correspond to the expected vertical profiles for dissolved metals when unoxidized tailings are stored beneath a water cover : concentrations of dissolved metals may be higher in the cover water than in the pore water within the tailings (MEND, 2001).

In column 3, concentrations in the cover water were higher than in the pore water, as expected when a water cover is placed over unoxidized tailings. This profile is probably due

to the tailings oxidation induced by the strong agitation of the water cover that caused tailings resuspension. Exposing the tailings to DO-saturated water accelerated oxidation and produced large quantities of sulphate and dissolved metals, exceeding those for the interstitial waters.

The profiles presented in Figure 4.10 are consistent with the pH. In columns 1-1, 1-2, and 4, where pH is around neutrality, sulphate and dissolved metal concentrations are generally lower than in columns 2-1, 2-2, and 3, which are in the range of acidic pH.

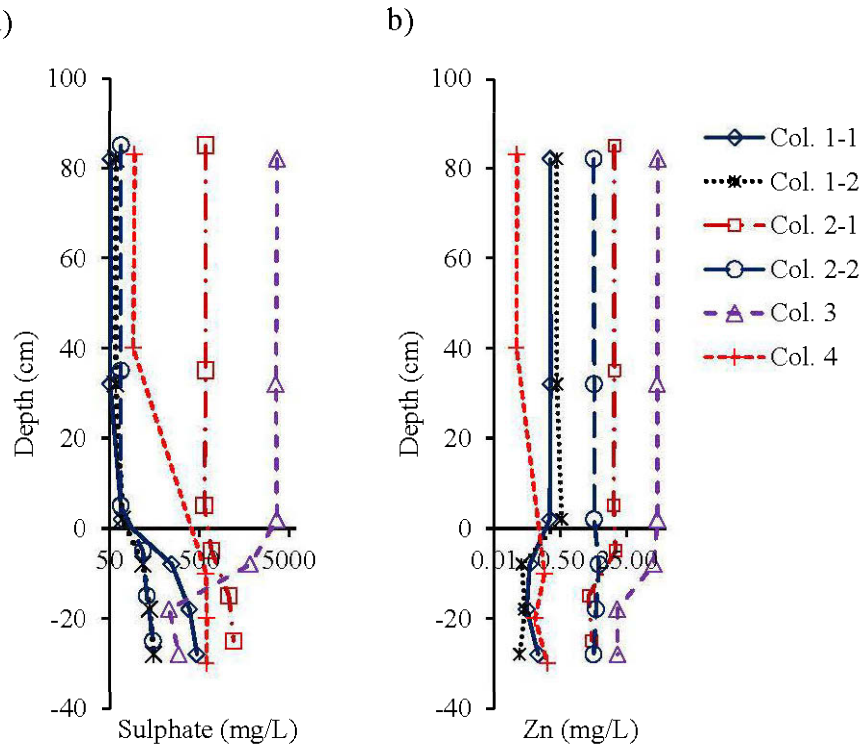


Figure 4.10 Vertical sulphate (a) and Zn (b) profiles in columns (after 471 d for columns 1-1, 2-1, 3, and 4; and after 598 d for columns 1-2 and 2-2, logarithmic scale for Zn horizontal axis).

4.3.6 Properties of suspended tailings in column 3

The strong tailings resuspension in column 3 (about 3000mg/L of suspended solids) allowed for sampling enough suspended solids (SS) for characterization. The parameters determined on the sample collected after 471 days of monitoring are described in section 4.2.1. Details

on the results are given in Appendix C. Laser particle size analysis showed that the SS were composed of 98% of particles smaller than 80 μm and 16% of particles smaller than 2 μm. The total tailings (before resuspension) contained 85% of particles smaller than 80 μm and 5 % of particles are smaller than 2 μm. The D_{10}, D_{30}, D_{50} and D_{60} are 0.9; 3.6; 6.2 and 8.0 for SS and 4.9; 18.5; 36.5 and 47.3 for the total tailings, respectively. These results suggest that finer tailings fractions were resuspended. These results were confirmed by additional investigation on the grain-size distribution of suspended particles as shown in Appendix E.

Mineralogical analysis of SS by XRD showed a decrease in pyrite content from 83% in the original tailings to 52.95% in the SS and an increase from 7 to 27% for chlorite and from 4 to 6% for muscovite. This indicates that some of the pyrite in tailings was actually oxidized. Table 4.3 compares the main elements obtained by chemical analysis using ICP-AES in SS and initial tailings. Fe decreased from 48.9% to 43.9% and S from 38.7% to 26.2%. As Fe and S decreased in the SS, the content of other dissolved metals (Al, Zn, Ni, and Pb) increased from that of the initial tailings particularly for Al. The increase of Al concentration may also be due to silicates containing Al (ex. Chlorite and muscovite) which are lighter than other mineral and were easily resuspended. Assuming that the majority of sulphur is derived from pyrite, the 26.2% sulphur corresponds to an approximately 49.1% pyrite content. This is in accordance with the XRD results.

Table 4.3 Elements (%) obtained by the chemical analysis of suspended solids in column 3 and of the initial tailings

Sample	Fe	S	Al	Zn	Cu	Ni	Pb
Suspended particles	43.9	26.2	3.2	0.22	0.07	0.020	0.08
Initial tailings	48.9	38.7	0.91	0.38	0.05	0.001	0.07

4.3.7 Post-testing mineralogy analysis of tailings

Visual observation when the columns were dismantled revealed the presence of orange-yellow precipitate of different intensities at the water–tailings interface in columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 3 (analysis not performed for column 4). These precipitates were more pronounced (almost reddish) in columns 2-1 and 3. SEM analysis of tailings samples collected at the water–tailings interface showed signs of different degree of oxidation. As

expected, tailings in columns 2-1, 2-2, and 3 were more oxidized than tailings in other columns. Pyrite showed very distinctive corrosion signs. There were also many iron oxide crusts and aggregates where mineral particles (pyrite, quartz, and silicates) were completely coated with secondary precipitations (see Figure 4.11). In columns 1-1 and 1-2, the mineral particles (pyrite, quartz, and silicates) embedded in aggregates were not coated with iron oxides, unlike in columns 2-1 and 3. Column 1-1 showed the lowest oxidation of all columns, as small quantities of agglomerates were observed. In fact, microscopic observations revealed that the tailings remained very similar to the initial tailings for that column (see Figure 4.1).

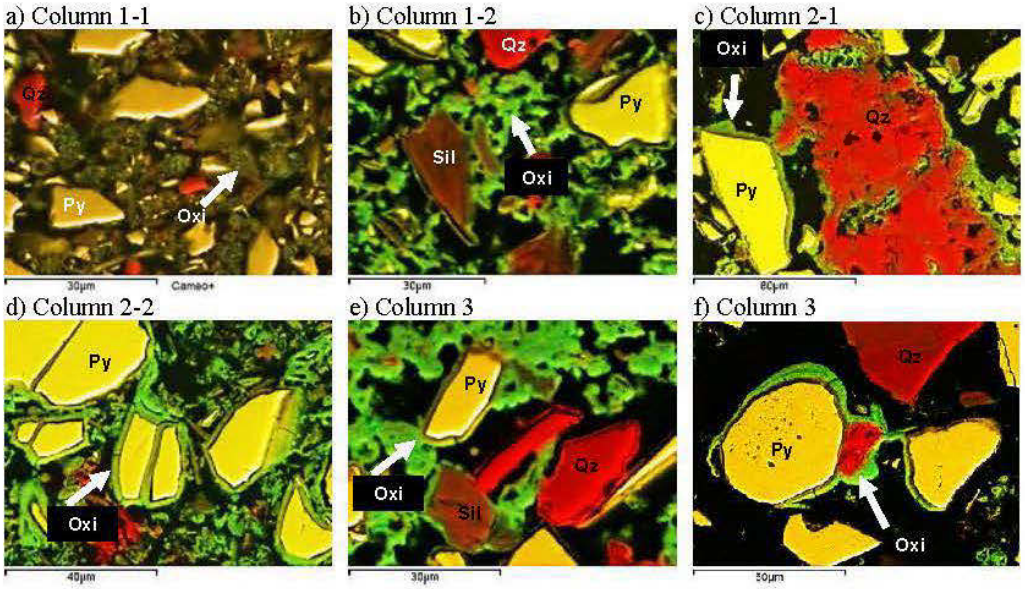


Figure 4.11 SEM BSE/X-mapping overlappimg images showing detailed aspects of pyrite oxidation (Qz : quartz, Sil : silicate, Oxi : oxide, Py : pyrite).

The chemical analysis of precipitation products of pyrite oxidation in the different columns using SEM indicated that the minerals were generally composed of iron oxides and secondary minerals. These secondary minerals were sulphur-rich, and generally contained iron sulphates. However, due to the stoichiometry of the mineral phases, they could not be identified: the different iron oxides and hydroxides could not be distinguished for oxides, hydroxides, and sulphates. Further results were showed in Appendix D.

4.4 Discussion

4.4.1 Rate of sulphate loading in the water cover

To compare the different scenarios tested, the average daily sulphate loading rate in the water covers was determined from the slope of the curve for the temporal change in average sulphate concentration. Average concentration was defined as the sulphate load per unit volume of the cover water. A linear variation in concentration was assumed between two neighboring ports in the water cover. For columns 2 and 3, with almost homogeneous sulphate concentration throughout the water cover depth, the average sulphate concentration was close to that measured at the different ports (1 to 3). In columns 1 and 4, where sulphate concentrations were higher in the pore water than in the cover water, upward diffusion and tailings oxidation may explain the variation in water cover concentration. In columns 2 and 3, where sulphate concentrations were higher in the cover water than in the pore water, downward diffusion and tailings oxidation may explain the net variation in water cover concentration. For this reason, the daily rate of sulphate loading (RSL) was used instead of the commonly used rate of sulphate production. RSL results are shown in Figure 4.12. Two rates are given for column 3 for the reasons given below.

Column 3, which was stirred with strong resuspension, presented the highest RSL, followed in order by column 2-1 stirred with low resuspension, column 2-2 aerated without resuspension, column 1-2 with 24-h monthly downward infiltration, column 4 with a sand layer above the tailings, and column 1-1 with a stagnant cover water. The RSL is about 4 times lower for column 1-1 (RSL=0.04 mg/L/j) than for column 1-2 (RSL=0.17 mg/L/j), indicating that intermittent downward infiltration contributes to lower the pH as it brings DO-rich water in contact with the tailings. A comparison of columns 2-1 (1.18 mg/L/j) and 2-2 (0.40 mg/L/j) shows that tailings resuspension helped increase sulphate production compared to aeration of the water cover without resuspension. The RSL in column 4 (0.12 mg/L/j), stirred with a layer that prevents sulphide tailings oxidation, was higher than in the stagnant

column 1-1. Stirring in column 4 led to homogeneous sulphate distribution throughout the water cover, and appears to have favoured diffusion from the tailings.

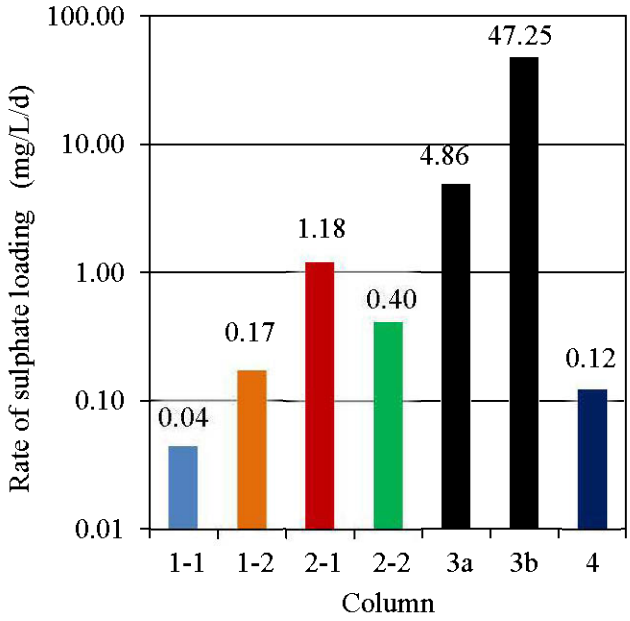


Figure 4.12 Rate of sulphate loading in the water cover.

The slope of the curve of average sulphate concentration in column 3 showed an inflection point after 400 days (see Figure 4.6 for measurements at port 3). From t=0 to t=400 d, the RSL was about 4.9 mg/L/d (column 3a in Figure 4.12). Thereafter, the RSL jumped to 47.25 mg/L/d (column 3b in Figure 4.12). There was also a rapid increase in dissolved metals, coinciding with an increase of sulphates after 400 days. This may be due the depletion of neutralizing minerals in the suspended tailings after 400 days (the neutralization rate decreased from 0.21 to 0.005; see section below) at one side. The increased RSL may also be due to the action of the indirect oxidation of pyrite and acidophilic and neutrophilic sulphooxidans bacteria. Indeed, after a monitoring period of about 400 days, the pH of the water cover in column 3 was less than 3 (≈ 2.2). At this pH, the ferric iron Fe^{3+} remains in solution and becomes an oxidizing agent that can oxidize pyrite (e.g., Zheng, Allen and Bautlsta, 1986; Jambor and Blowes, 1994; Evangelou, 1995; Holmes and Crundwell, 2000; Aubertin, Bussière and Bernier, 2002). In addition, qualitative tests have shown that

sulphooxidans bacteria (acidophil and neutrophil) were present in the tailings in the present study. Detailed results are presented in Appendix F. The qualitative assessment was performed using the method developed by Zagury et al. (1997) (see also Pépin, 2008). This method involves incubating the tailings in a solution with ideal conditions for the growth of each bacterial population. The samples were incubated on a rotary shaker for 3 to 4 weeks at 23 ± 2 ºC, and pH and redox potential (Eh) were monitored. Tailings sterilized using gamma radiation at a dose range from 32 to 33.6 kGy were used as a control sample. Comparing the behavior of unsterilized and sterilized samples allows a qualitative characterization of bacterial activity. For example, the presence of sulfooxidans neutrophil bacteria was clearly noted because the reduction in pH occurs more slowly in sterilized than unsterilized samples.

Under optimal conditions, these bacteria may influence sulphide oxidation (Silverman 1967; Holmes and Crundwell, 2000). For example, *Thiobacillus Thioparus* is a neutrophil bacterium that is active within an optimal pH range between 6 and 8 at a temperature of 10 to 37 °C, when it can oxidize sulphide, thiosulphate, and other reduced sulphur species (Blowes *et al*., 2003; Bussière *et al*., 2005). Furthermore, *Acidithiobacillus Thiooxidans* is an acidophilic bacterium that oxidizes sulphur and thiosulphates (Blowes *et al*., 2003; Bussière *et al*., 2005) under pH ranging from 1 to 6 at temperatures from 10 to 37 °C. These pH and temperature conditions were present in column 3. Consequently, these bacteria probably contributed to accelerate tailings oxidation in this column.

4.4.2 Oxidation-neutralization curves in the water cover

The concept of oxidation-neutralization curves used by Benzaazoua *et al*. (2004) to predict tailings acid generation from kinetic tests was extended to the water covers in the different columns. In this study, sulphate loads in the water covers were correlated with summed neutralizing minerals Ca, Mg, Mn, Al and Si. Results are presented in Figure 4.13 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 4 and Figure 4.14 for column 3. The choice of ions presented in the graphs was based on the minerals present in the original tailings. The minerals involved in sulphide oxidation were mainly sulphides, and the minerals involved in

Rapport-Gratuit.com

neutralization were mainly calcite, dolomite and silicate. In columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, and 4, the minerals (Ca+Mg+Mn+Al+Si) generally show very good linear correlation with sulphates (0.73-0.99 coefficient of determination R^2). The slopes of the curves are respectively 0.33; 0.37; 0.41; 0.41; and 0.42 for columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2 and 4, respectively. These results indicate a dissolution of neutralizing minerals as acidity is produced.

In column 3, the oxidation-neutralization curve shows two stages. Up to 400 days, the acidity produced by sulphide oxidation was neutralized. The slope was 0.23 with R^2 of 0.98 close to 1. Thereafter (t>400 d), sulphates rose very quickly whereas Ca+Mg+Mn+Al+Si increased slowly. The slope changed abruptly from 0.23 to 0.014. This result indicates that the produced acidity was less controlled by neutralizing minerals. There are several explanations for this. The first is the depletion of neutralizing minerals: the initial tailings contained 83% pyrite and a negligible source of neutralizing minerals (9% chlorite, 2% muscovite and trace of carbonate). The second explanation is the hydrodynamic condition applied to column 3, with strong tailings resuspension. As mentioned above, the direct oxidation of the SS and the tailings that were close to the water–tailings interface, combined with the indirect oxidation by Fe^{3+} and the action of bacteria, significantly increased the water's acidity.

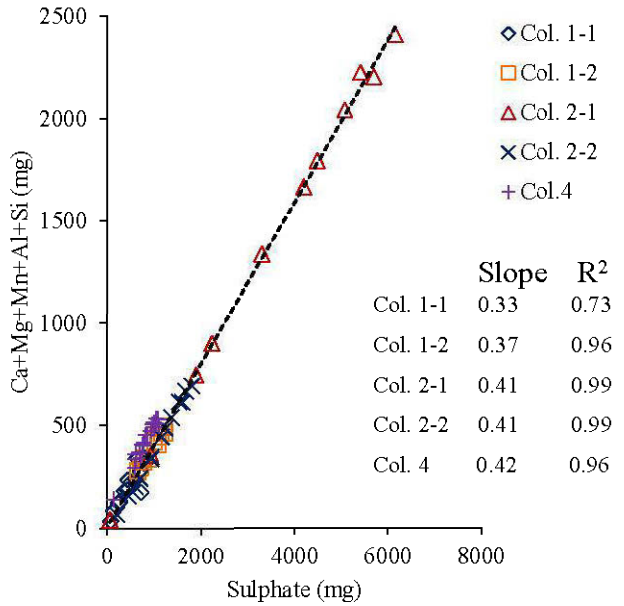


Figure 4.13 Oxidation-neutralization curves of water covers in columns 1-1, 1-2, 2-1, 2-2, 4.

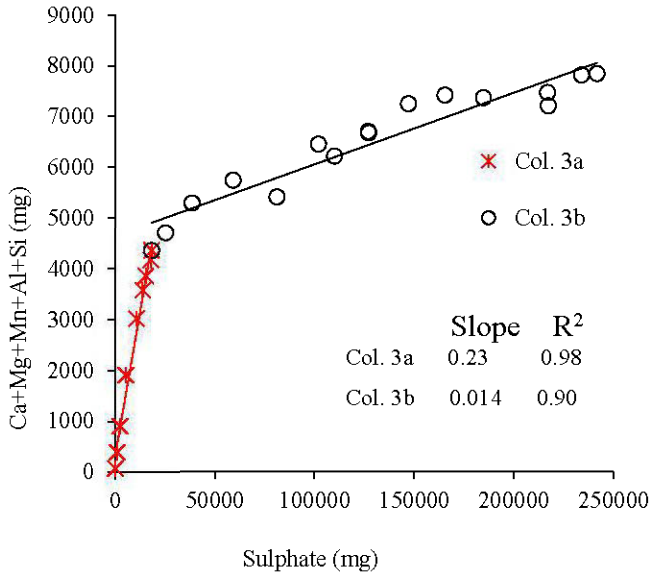


Figure 4.14 Oxidation-neutralization curves of water cover in column 3.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

4.4.3 Geochemical modeling results

Geochemical modeling with VMinteq (Felmy, Griven and Jenne, 1984) was used to calculate the change in saturation indexes for various minerals in the columns (except for column 4) at different monitoring periods. The purpose was to confirm the presence of minerals that would eventually control the concentrations of dissolved species in the cover water. Typical results are presented for column 2-1 in Figure 4.15, showing saturation indexes calculated at 217, 302, 400, and 471 days. The results confirm the precipitation of secondary minerals. Futher results are presented in Appendix G.

The saturated and supersaturated mineral phases identified at the 471th monitoring day for column 1-1 and 2-1 and at the 840th monitoring day for columns 1-2, 2-2, and 3 are shown in Table 4.4. In all samples, iron oxides, iron hydroxides, and sulphur compounds were the main phases found. Iron oxides and sulphur minerals were also identified by chemical analysis of samples using SEM (see section 3.6). Unfortunately, the SEM analysis could not identify the oxides, hydroxides, or sulphates to allow comparisons.

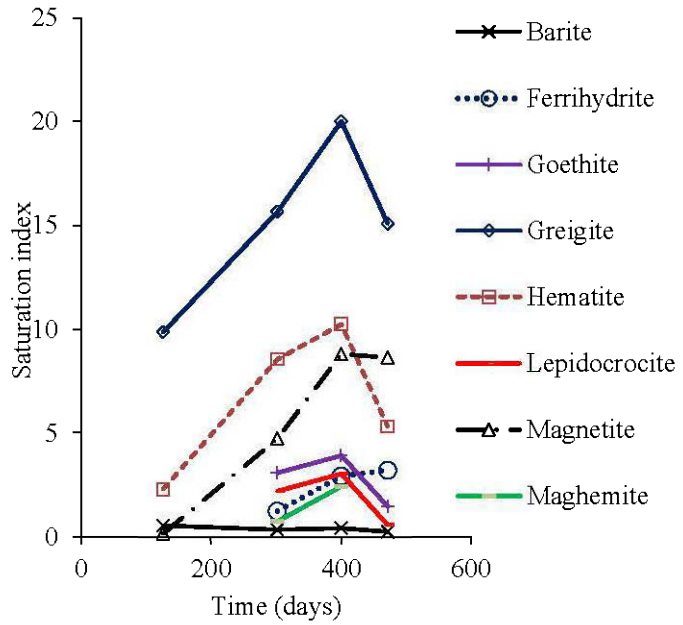


Figure 4.15 Saturation indexes for secondary minerals in column 2-1 at different sampling dates.

Table 4.4 Saturation indexes for different secondary minerals at the 471th monitoring day for column 1-1 and 2-1 and at the 840th monitoring day for columns 1-2, 2-2, and 3

Minerals	Saturation index				
	Column 1-1	Column 1-2	Column 2-1	Column 2-2	Column 3
Barite ($BaSO_4$)	0.55	0.59	0.234	0.41	0.14
Ferrihydrite ($(Fe^{(3+)})_2O_3 \bullet 0.5H_2O$)	4.59	1.56	1.289	2.63	1.57
Goethite (α-$Fe^{(3+)}O(OH)$)	3.96	3.35	1.45	3.77	-
Greigite ($Fe^{(2+)}Fe^{(3+)}{}_2S_4$)	18.64	11.13	15.04	9.94	19.78
Hematite (α-$Fe^{(3+)}{}_2O_3$)	10.33	9.08	5.3	9.94	8.88
Lepidocrocite ($Fe^{(3+)}O(OH)$)	3.08	2.65	0.57	2.89	2.36
Maghemite (γ-Fe_2O_3)	2.52	1.66	–	2.14	1.07
Magnetite (Fe_3O_4)	10.31	2.14	3.616	3.78	6.38

4.5 Conclusions

Although water covers have been investigated for years, few studies have addressed water covers placed over highly sulphide-rich tailings with very low neutralizing capacity. This study aimed to understand the geochemical behavior of such water covers over a long period. For that purpose, different water covers placed over highly sulphide-rich tailings with low concentrations of neutralizing minerals were modeled in column tests and various hydrodynamic conditions were applied. Water samples were collected from different ports located in the water cover and in the tailings. Geochemical analyses of the water samples were performed monthly. Suspended solids and post-testing tailings were also analyzed.

The main conclusions that can be drawn from this study are the following:

1. The water cover aerated and stirred with low and high tailings resuspension greatly enhanced the production and release of sulphate and metals.
2. In the water cover stirred with strong tailings resuspension, the neutralizing minerals were depleted after a 400-day monitoring period, leading to an increase in sulphate and dissolved metals due to the combined action of the indirect oxidation of pyrite by Fe^{3+} and the bacteria- catalyzed oxidation.
3. Aeration of the water cover lowered pH more than stirring the water cover with low resuspension.

4. Stagnant water cover without infiltration (column 1-1) was compared to stagnant water cover with intermittent downward infiltration (column 1-2). Infiltration promoted contact between the tailings and water with high DO concentration, leading to oxidation of mine tailings, lower pH, and the production of sulphate and dissolved metals.
5. Adding a layer of inert material into column 4 (in this case, a 20-cm sand layer) significantly prevented oxidation in highly sulphide-rich tailings, as previously found in the literature for tailings with lower sulphide content.
6. Dissolved metal and sulphate concentrations increased in conditions in the following order: stagnant water cover, stagnant water cover with bottom seepage, continuously mixed water cover with a layer of inert material, and continuously mixed water cover with low and high resuspension.
7. Results indicated that Zn was the main dissolved metal (after Fe), with the highest concentration in all columns under the tested conditions, although the tailings contained only 0.38% Zn in sphalerite-free form, attached to pyrite, and included within pyrite.
8. SEM analysis of tailings sampled at the water–tailings interface during dismantling and geochemical modeling with VMinteq (not performed for column 4) showed precipitation of secondary minerals composed of iron oxides in the water cover stirred with resuspension. Microscopic observations revealed that the tailings in column 1 remained very similar to the initial tailings.

Finally, field measured data on sediment suspended concentrations at several sites in Canada have shown that resuspension cannot be eliminated, even with a deep (up to 2 m) water cover For highly sulphide-rich tailings, placing a protection layer made of inert granular material would eliminate the tailings resuspension and improve the efficiency of the water cover.

4.6 Acknowledgements

The authors wish to thank the NSERC Polytechnique-UQAT Industrial Research Chair in Environment and Mine Waste Management, the NSERC for a Discovery Grant provided to the second author and the URSTM staff for their help in the laboratory. Special thanks go to Thomas Genty, who carried out the water sampling during the first author's maternity leave.

4.7 References

Adu-Wusu, C., Yanful, E.K., Mian, M.H. 2001. "Field evidence of resuspension in a mine tailings pond". *Canadian Geotechnical, Journal,* 38: 796−808.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L. 2002. *Environnement et gestion des rejets miniers.* CD-ROM, Les Presses Internationales Polytechnique, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.

Awoh, A.S., Mbonimpa, M., Bussière, B. 2012. "Determination of the reaction rate coefficient of sulphide mine tailings deposited under water". *Journal of Environmental management*, Submitted.

Benson, B.B., Krause, D.Jr. 1984. "Concentration and isotopic fractionation of dissolved oxygen in freshwater and seawater in equilibrium with the atmosphere". *American Society of Limnology and Oceanography,* 29: 620−632.

Benzaazoua, M., Bussiere, B., Dagenais, A-M., Archambault, M., 2004. "Kinetic test comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential". *Environmental Geology,* 46:1086−1101.

Berg, P., Risgaard-Pertersed, N., Rysgaard, S. 1998. "Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water". *Limnology and oceanography*, 43: 1500−1510.

Blowes, D.W., Ptacek, C.J., Jambor, J.L., Weisener, C.G. 2003. "The geochemistry of acid mine drainage". *Treatise on geochemistry,* 9:149−204.

Bussière, B., Aubertin , M., Zagury, G.J., Potvin, R., Benzaazoua, M. 2005. "Principaux défis et pistes de solution pour la restauration des aires d'entreposage des rejets miniers abandonnées". *Symposium 2005 sur l'environnement et les mines*, Rouyn-Noranda, Qc, Canada, Canadian Institute of mining, Metallurgy and Petroleum, CD-Rom.

Catalan, L.J.J., Yanful, E.K. 2002. "Sediment-trap measurements of suspended mine tailings in shallow water cover". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 19−30.

Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec (CEAEQ). 2004. Détermination des solides en suspension totaux et volatils dans les effluents : méthode gravimétrique. MA. 104−S.S. 1.1, Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs du Québec, 2008, 10p. http://www.ceaeq.gouv.qc.ca/methodes/pdf/MA104SS11.pdf

Dave, N.K., Krishnappan, B.G., Davies, M., Reid, I. 2003. "Erosion characteristics of underwater deposited mine tailings". *Mining and the Environment Conference*, May 25-28, Sudbury, Ontario, Canada, 11p.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Davé, N.K., Paktunc, A.D. 2003. "Surface Reactivity of high-sulfide copper mine tailings under shallow water cover conditions". *6th International Conference on Acid Mine Drainage*, 12-18 July, Cairns, QLD, pp. 241−251.

Davé, N.K., Lim, T.P., Horne, D., Boucher, Y., Stuparyk, R. 1997. "Water cover on reactive tailings and wasterock: Laboratory studies of oxidation and metal release characteristics." *4th International conference on acid mine drainage*, May 31-June 6, Vancouver, Canada, 779−794.

Doepker , R.D., Drake, P. L. 1991. "Laboratory study of submerged metal-mine tailings 1: Effect of solid-liquid contact time and aeration on contaminant concentrations". *Mine Water and the Environment* 10: 29−41.

Elberling, B., Damgaard, L.R. 2001. "Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulphide tailings". *Geochemica et Cosmochimica Acta*, 65: 1897−1905.

Evangelou, V.P. 1995. *Pyrite oxidation and its control*. CRC Press. Inc. Boca Raton, Florida.

Felmy, A.R., Griven, J.B., Jenne, E.A. 1984. *MINTEQ: a computer program for calculating aqueous geochemical equilibria*. National Technical Information Services, Springfield, Virginia.

Holmes , P.R., Crundwell, F.K. 2000. "The kinetics of the oxidation of pyrite by ferric ions and dissolved oxygen: An electrochemical study". *Geochimica and Cosmochimica Acta,* 64: 263−274.

Holmström, H., Öhlander, B. 1999. "Oxygen penetration and subsequent reactions in flooded sulphidic mine tailings: a study at Stekenjokk, northern Sweden". *Applied Geochemistry*. 14: 747−759.

Jambor, J.L., Blowes, D.W. 1994. *The environmental chemistry of sulphide mine-wastes*. Mineralogical Association of Canada Short Course Handbook, 22, 438p.

Landry, B., Pageau, J.G., Gauthier, M., Bernard, J., Beaudin. J., Duplessis, D. 1995. *Prospection minière*. Modulo Éditeur, Mont-Royal, Québec.

Li, M., Aubé, B., St-Arnaud, L. 1997. "Consideration in the use of shallow water covers for decommissioning reactive tailings". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, BC, 115−130.

Mbonimpa, M., Awoh, A. S., Beaud, V., Bussière, B., Leclerc, J. 2008. "Spatial water quality distribution in the water cover used to limit acid mine drainage generation at the Don Rouyn site (QC, Canada)". *61th Canadian Geotechnical Conference and the 9th Joint CGS/IAH-CNC Groundwater Conference*, 21-24 September, Edmonton, AB, Canada, 855−862.

MEND. 2004. "Review of water quality issues in neutral pH drainage: Examples and emerging priorities for the mining industry in Canada". *MEND report 10.1*, Ottawa, Canada, 58p.

MEND. 2001. "MEND Manual: prevention and control". *MEND report 5.4.2d,* CANMET, Ottawa, Canada, 154p.

Merkus, H.G. 2009. *Particle size measurements: Fundamentals, Practice, Quality*. Springer, The Netherlands.

Mian, M.F., Yanful, E.K., Martinuzzi, R. 2007. "Measuring the onset of mine tailings erosion". *Canada Geotechnical Journal*, 44: 473−489.

Mian, M.F., Yanful, E.K. 2007. "Erosion characteristics and resuspension of sub-aqueaous mine tailings". *Journal of Environmental Engineering and Science,* 6: 175−190.

Mian, M.H., Yanful, E.K. 2004. "Analysis of wind-driven resuspension of metal mine sludge in a tailings pond". *Journal of Environmental Engineering and Science*, 3:119−135.

Mian, M.F. 2004. "Erosion and resuspension of cohesive mine tailings". Ph.D thesis, London University of western Ontario, 434p.

Peacey, V., Yanful, E.K. 2003. "Metal mine tailings and sludge co-deposition in a tailings pond". *Water, Air, and Soil Pollution,* 145: 307−339.

Peacey, V., Yanful, E.K Payne, R. 2002. "Field study of geochemistry and solute fluxes in flooded uranium mine tailings". *Canadian Geotechnical Journal,* 39: 357−376.

Pepin, G. 2009."Evaluation du comportement géochimique de stériles potentiellement générateurs de drainage neutre contaminé à l'aide de cellules expérimentales *in situ*". Mémoire de maitrise, Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Montréal, Qc, Canada.

Plante, B. 2010. "Évaluation des principaux facteurs d'influence sur la prédiction du drainage neutre contaminéé". Thèse de doctorat, Département des sciences appliquées. UQAT, Qc, Canada.

Romano, C.G., Mayer, K.U., Jones, D.R., Ellerbroek, D.A., Blowes, D.W. 2003. "Effectiveness of various cover scenarios on the rate of sulfide oxidation of mine tailings". *Journal of Hydrology,* 271: 171−187.

Samad, M.A., Yanful, E.K. 2004. "Preliminary assessment of a monitoring and management model for sulfidic mine tailing ponds under shallow water covers". *57e Congrès Canadien de Géotechnique -5e Congrès conjoint SCG/IAH-CNN,* October 24−27, CD-rom, Session 4G.

Silverman , M.P. 1967. "Mechanism of bacterial pyrite oxidation". *Journal of Bacteriology,* 94:1 046−1051.

Vigneault, B., Campbell, P. G. C., Tessier, A., De Vitre, R. 2001. "Geochemical changes in sulfidic mine tailings stored under a shallow water cover". *Water Research*, 35: 1066−1076.

Villeneuve, M. 2004. "Évaluation du comportement géochimique à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétiques ". Mémoire de maîtrise, Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Montréal, Qc, Canada.

Yanful, E.K., Catalan, L.J.J. 2002. "Predicted and field measured resuspension of flooded mine tailings". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 341−351.

Yanful, E.K., Verma, A., Straatman, A.S. 2000. "Turbulence driven metal release from suspended pyrrhotite tailings". *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering,* 126: 1158−1165

Yanful, E.K., Verma, A. 1999. "Oxidation of flooded mine tailings due to resuspension". *Canadian Geotechnical Journal,* 36: 826−845.

Yanful, E.K. Simms, P.H. 1997. "Review of water cover sites and research projects". *MEND report 2.18.1*, 136p.

Young, R.A. 1995. *The Rietveld method.* Young, R. A. éd., Oxford University Press, 312 p.

Zagury, G.J., Colombano, S.M., Narasiah, K.S., Ballivy, G. 1997. "Stabilisation de résidus acides miniers par des résidus alcalins d'usines de pâtes et papiers". *Environmental technology*, 18: 959-973.

Zheng, C.A., Allen, C.C., Bautlsta, R.G. 1986. "Kinetic study of the oxidation of pyrite in aqueous ferric sulfate". *Industrial and Engineering Chemestry Process Design and Development*, 25(1): 308−317.

CHAPITRE V

FIELD STUDY OF THE CHEMICAL AND PHYSICAL STABILITY OF HIGHLY SULPHIDE-RICH TAILINGS STORED UNDER A SHALLOW WATER COVER

Cet article a été accepté pour publication à Mine Water and the Environment

Auteurs

Akué Sylvette Awoh[12], Mamert Mbonimpa[12], Bruno Bussière[12]

[1] Environment and Mine Research Institute , UQAT, Rouyn-Noranda, QC, Canada J9X 5E4;
[2]Industrial NSERC-Polytechnique-UQAT Chair, Environment and Mine Waste Management
[2]Corresponding author: Phone: 819-762-0971 # 4314,
Email: akue-sylvette.awoh@uqat.ca

ABSTRACT

Highly sulfide-rich (approximately 83% pyrite) and potentially acid-generating mine tailings were subaqueously deposited in the Don Rouyn old quarry pit from 1997 to 2000. The site covers an approximately 7 ha area located near Rouyn-Noranda, Quebec. Various *in situ* measurements and laboratory tests were performed during the summer and autumn of 2008, 2009, and 2010 to 1) characterize tailings samples; 2) monitor water quality in the final effluent, shallow water cover, and ground water around the pit; and 3) study tailings erosion and resuspension. *In situ* measurements included the vertical profile and spatial distribution of pH, temperature, dissolved oxygen, electric conductivity, and redox potential. Suspended tailings and wind speed and direction were monitored. Groundwater, cover water, and final effluent water samples were chemically analyzed in the laboratory and suspended sediment concentration (SSC) was determined. Physical, mineralogical, and chemical tailings properties were also determined. The collected data are presented and interpreted in this paper. Results obtained during monitoring show that the quality of the groundwater, cover, and effluent waters complied with Canadian and Quebec regulations. SSCs were also within regulation limits. No association was found between SSC and hydrodynamic conditions (wind speed, fetch, etc.). Although theoretical calculations indicated a critical wind speed of at least 10 m/s for tailings resuspension, suspended sediment was observed for wind speeds at <10 m/s.

Keywords: sulphide-rich tailings, acid mine drainage, water quality, resuspension, suspended sediment concentration, groundwater

RÉSUMÉ

Des résidus sulfureux et potentiellement générateurs du drainage minier acide ont été déposés dans l'ancienne carrière de Don Rouyn entre 1997 et 2000. Ce site couvre une superficie d'environ 7 ha, et est localisé à Rouyn-Noranda au Québec. Plusieurs mesures ont été

Rapport-Gratuit.com

effectuées *in situ* et au laboratoire durant l'été-automne 2008, 2009 et 2010 pour caractériser les résidus miniers, la qualité de l'eau à l'effluent final, dans la couverture aqueuse, et dans les eaux souterraines autour de la fosse. Des travaux ont aussi été menés pour étudier la remise en suspension des résidus dans la couverture aqueuse. Les mesures *in situ* comprenaient les mesures des profondeurs de la couverture aqueuse, le profil vertical et la distribution spatiale du pH, de la température, de l'oxygène dissous, de la conductivité électrique, du potentiel d'oxydoréduction, la mesure en continu de la matière en suspension (MES) et de la vitesse et la direction du vent. Les analyses au laboratoire ont porté sur l'analyse élémentaire sur des échantillons d'eau du recouvrement, de l'effluent final et des eaux souterraines et la mesure de (MES). Les propriétés physique, minéralogique et chimique des résidus ont également été déterminées. Les données collectées sont présentées et interprétées dans cet article. Les résultats montrent que dans les conditions actuelles du site, la qualité de l'eau de la couverture aqueuse, de l'influent final et des eaux souterraines, étaient conformes aux exigences de la réglementation sur l'eau au Québec et au Canada. Les MES étaient également dans les limites de la réglementation. Aucune association n'a été trouvée entre les MES et les calculs théoriques de remise en suspension des résidus sous l'eau (vitesse du vent, fetch, etc.). Bien que les calculs théoriques indiquent une vitesse critique du vent d'au moins 10 m/s pour la remise en suspension des résidus miniers, les MES ont été observée pour des vitesses de vent inférieures à 10 m/s.

Mots clés: Drainage minier acide, recouvrement en eau, résidus miniers, stabilité physique et chimique

5.1 Introduction

The main environmental challenge related to sulphide-rich tailings is the generation of acid mine drainage (AMD), which can contaminate water and cause serious environmental damage. AMD is generated naturally when sulphide minerals, such as those contained in sulphide-rich tailings and waste rocks, are exposed to air and water and hence oxidized (Aubertin, Bussière and Bernier, 2002). One method to prevent AMD production is to reduce the oxygen supply to the tailings; oxygen barriers are recognized as the most effective approach to control AMD in humid climates. The application of a shallow water cover, created by subaqueous deposition of the tailings, is one such technique (MEND, 2001). A shallow water cover limits the oxygen supply to the underlying tailings because the diffusion coefficient of oxygen is 10.000 times lower in water than in air. However, a shallow water cover is a complex and dynamic system subject to several factors, including oxygen transport, tailings erosion and resuspension, and water exchange with the surrounding environment (Li, Aubé and St-Arnaud, 1997). These may affect the effectiveness and the

water quality of the cover and the groundwater. When the dissolved oxygen concentration in shallow pond approaches saturation, increased resuspension can lead to oxidation of the resuspended tailings, which in turn results in the release of sulfates, acids, and heavy metals, as observed in both laboratory and field studies (Yanful, Verma and Straatman, 2000; Catalan and Yanful, 2002). Several researchers have developed design tools for shallow water covers based on the interaction between wind speed and shear stress that induces resuspension (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Catalan and Yanful, 2002; Yanful and Catalan, 2002; Peacey and Yanful, 2003; Yanful and Mian, 2003; Samad and Yanful, 2004; Mian and Yanful, 2004; Mian and Yanful, 2007; Mian, Yanful and Martinuzzi, 2007; Kachhwal, Yanful and Rennie, 2010b; Kachhwal, Yanful and Lanteigne, 2010).

The above-mentioned studies are based on concepts described in the Shore Protection Manual of the U.S Army Coastal Engineering Research Center (CERC, 1984) and the Coastal Engineering Manual (CEM) of the U.S. Army Coastal Engineering Research Center (CERC, 2002). These concepts were applied to shallow water covers with different dimensions: the 150-ha Louvicourt site located 25 km East of Val d'Or (Quebec, Canada) (Vigneault, Kwong and Warren, 2007), the 115-ha Shebandowan site located 100 km northwest of Thunder Bay (Ontario, Canada) (Kachhwal, Yanful and Rennie 2010b; Kachhwal, Yanful and Lanteigne, 2010), the 192-ha Quirke Waste Management Area in Ontario (Canada) (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001), the 215-ha Heath Steele site located 60 km northwest of Newcastle (New Brunswick, Canada) (Mian and Yanful, 2004), and the 110-ha Stekenjokk site in Sweden (Holmström and Öhlander, 1999). As very few studies have examined small sites, the question arises: are the concepts proposed by CERC (1984, 2002) still applicable?

From a design perspective, the water depth is generally optimized to prevent tailings resuspension, which may affect the overall water quality. Field measured data on sediment suspended concentrations (SSCs) at several sites in Canada have shown that resuspension cannot be eliminated, even with a deep (up to 2 m) water cover (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Catalan and Yanful, 2002). It is however important that the sediment and other

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

metal concentrations remain within regulatory limits. The water quality would depend on the sulphide content of the tailings. The pyrite content was about 30% to 50% at the Louvicourt sites (Li, Aubé and St-Arnaud, 1997) and about 35% at the Stekenjokk site (Holmström and Öhlander, 1999). Few data are available on flooded highly sulphide-rich tailings.

The water cover at the Don Rouyn site meets the above-mentioned conditions: a relatively small site with highly sulphide-rich tailings. The site is a former open pit that has been completely enclosed by rock walls with irregular contours. This is a particular feature, as most shallow water covers are formed by engineered dykes.

The purpose of this study was to assess the effectiveness of the shallow water cover at the Don Rouyn site in terms of limiting AMD generation. Specifically, this study focuses on the chemical and physical stability of highly sulphide-rich tailings in the shallow water cover and the groundwater quality around the site. To do so, field monitoring was performed from June to October of 2008, 2009, and 2010. The purpose was to conduct a physicochemical characterization of the cover water and the groundwater around the site and to measure wind speed and suspended sediment concentrations (SSCs). Physical, mineralogical, and chemical analyses of the tailings and chemical analyses of cover and ground water samples were also conducted in the laboratory. Results are presented and discussed.

5.2 History and description of the study site

The Don Rouyn site is located 4 km west of Rouyn-Noranda (QC, Canada) and north of Route 117, where a porphyry copper deposit was intermittently open-pit mined from 1959 to 1980 (GEOCON, 1997a). Once the mineral reserves were depleted, the pit was flooded, covering an area of 7.7 ha within a 20.68-ha drainage basin. From 1997 to 2000, the Don Rouyn pit was used to store tailings from the Gallen Mine under the pit water. The Gallen Mine was a volcanogenic massive sulfide ore deposit, with 4.95% Zn, 0.18% Cu, 42.36 g/t Ag, and 1.185 g/t Au. It was operated in phases from 1955 to 2000 (Beaud, 2005). A volume of 700.000 m^3 of Gallen tailings was deposited under water at a pH between 10.5 and 11.5

pH (GEOCON, 1997b). Currently, the water level in the pit is maintained at 308.5 m by a weir built in a channel to discharge the water into the environment.

Figure 5.1 shows a photo of the shallow water cover. Design water depth (h) was h=1 m (GEOCON, 1997a). The depth of the water cover between the weir crest level and the tailings surface was measured in July, 2005. Figure 5.2 shows the water depth contours. The maximum, average, median, and minimum depths of the water cover above tailings surface are 2.81 m, 1.23 m, 1.16 and 0.81 m, respectively (Beaud, 2005; Mbonimpa *et al.*, 2008).

Due to the small area of the shallow water cover at the Don Rouyn site, the fetch is also small, which can reduce the effect of hydrodynamic mechanisms. This shallow water cover at the Don Rouyn site also differs from those at other sites in the sulphide content of the tailings under the cover water. Tailings sampled two years before subaqueous tailings disposal ended showed a high pyrite content of about 76% (Catalan, 1998). Recent analyses conducted on four samples taken near the water–tailings interface in summer 2005 showed a pyrite content from 86% to 96%, for an average of 91% (Mbonimpa *et al.*, 2008).

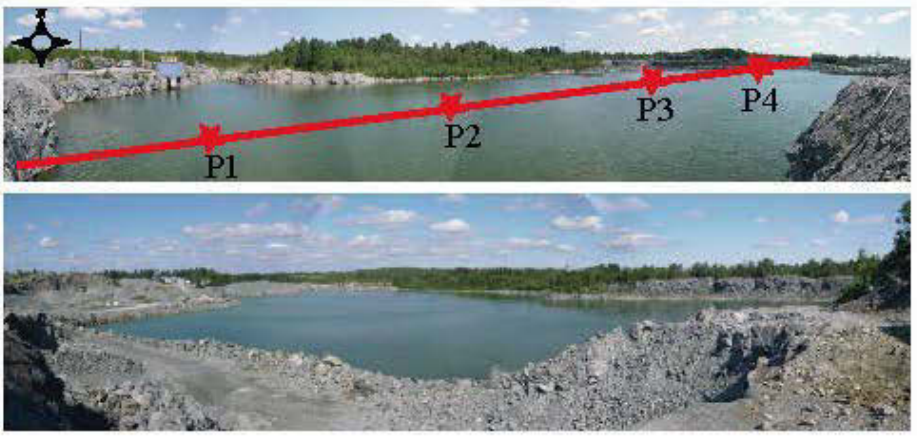


Figure 5.1 Photo of the Don Rouyn site and locations of stations P1 to P4, where water samples were collected from the shallow water cover.

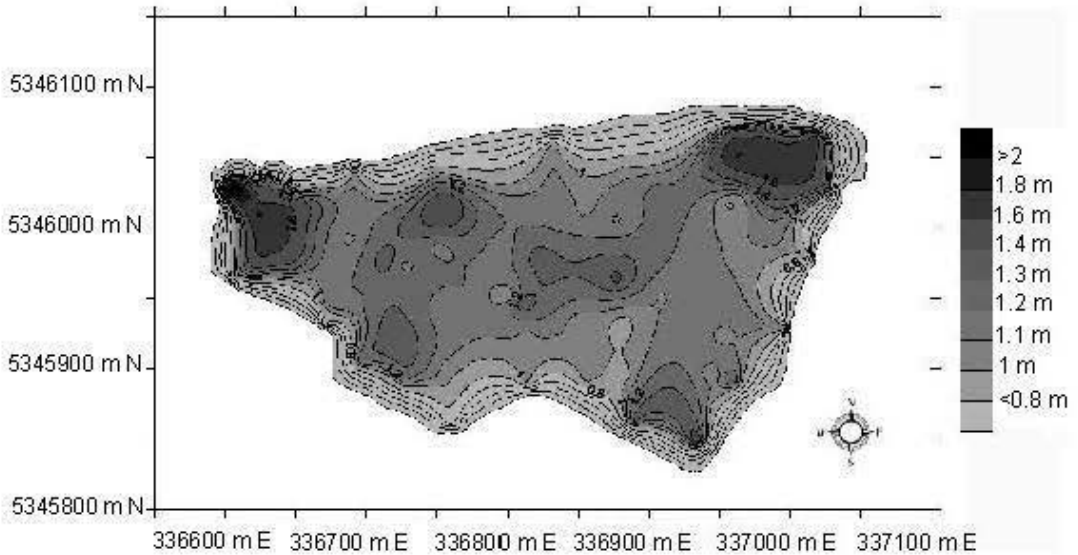


Figure 5.2 Surface contours of water depth h between the weir crest level and the tailings surface determined in July 2005 in NAD 83, MTN Zone 10 coordinates. m N: meter north and m E: meter east.

The Xstrata Copper Horne Smelter, which was responsible for site management, occasionally added lime milk to buffer the water and control a small seasonal increase in Zn concentration in the effluent until 2005.

Six monitoring wells were installed around the Don Rouyn pit in 1997. At the time of this study, five wells, identified as F1, F2, F3, F5, and F6, were operational (Figure 5.3). Well F4 was destroyed due to aggregate operations around the site. Two piezometers each were installed in wells F1, F2, F3, and F6. In this case, the filter tip was placed in the near-surface fractured bedrock, identified as S (e.g., F1-S). The filter tip of the second piezometer was installed deeper into the bedrock, identified as D (e.g., F1-D) (GEOCON, 1997a). In borehole F5, only one deep monitoring well was placed in the bedrock. Wells F3 and F5 cross a fill made of silt, sand gravel, and crushed stone until reaching bedrock. Wells F1, F2, and F6 were driven through black organic soil, clay, till, and sand deposits until reaching bedrock. Each piezometer consists of a PVC 25 mm in diameter (GEOCON, 1997a). A Waterra pumping system, consisting of an HDPE tube and a ball valve, was installed in each piezometer.

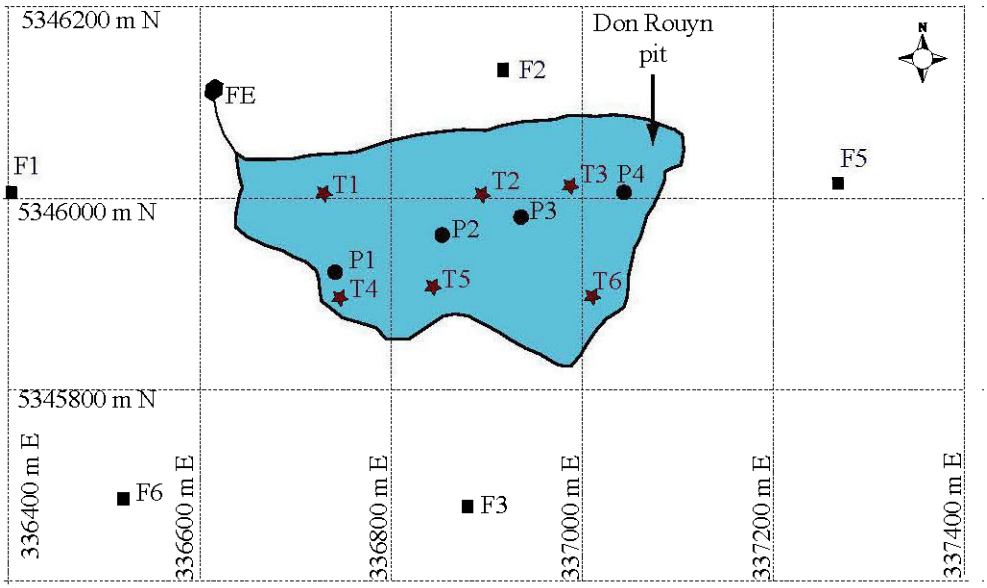


Figure 5.3 Location of boreholes (F1 to F6), tailings sampling stations (T1 to T6), final effluent (FE) stations (P1 to P4) for cover water sampling, and station Su for continuous measurement of suspended sediment concentration (in NAD 83, MTN Zone 10 coordinates). m N: meter north and m E: meter east.

5.3 Materials and methods

5.3.1 Tailings sampling and characterization

Tailings from beneath the shallow water cover at the Don Rouyn site were sampled at six stations T1 to T6, as shown in Figure 5.3. At each station, a tailings sample was taken from a boat using a bottom sediment sampling dredge. Samples were collected up to a depth of about 20 cm in the tailings. Each sample was poured into a separate bucket and covered with water from water cover to prevent oxidation.

In the laboratory, the six samples were homogenized under water in a large barrel to obtain a single homogeneous mixture of representative tailings from the Don Rouyn site. Two tailings samples were removed from the mixture for physical mineralogical and chemical characterization. Particle size was obtained using a Malvern Mastersizer laser particle size

analyzer that provides a volume size distribution for diameters from 0.05 to 900 µm. The lower limit reported by the device was 0.0582 µm. Details on the techniques of grain-size distribution measurements are given by Merkus (2009). The relative density of the tailings was determined using a Micromeritics Accupyc 1330 helium pycnometer (±0.03%).

The elemental analysis of tailings solids was evaluated with complete digestion in $HNO_3/Br_2/HF/HCl$ followed by inductively coupled plasma and atomic emission spectroscopy (ICP-AES, Perkin-Elmer, relative precision of 5%; Villeneuve 2004). Materials used to verified accuracy were certified by the Canadian Certified Reference Materials Project (CCRMP).

The X-ray diffraction (XRD) data for the mineralogical characterisation of the solids was determined using the quantitative Rietveld method (relative precision of 0.5%) with TOPAS software (Young, 1995).

Total sulphur content was determined also on these samples using an ELTRA CS 2000 carbon sulphur determinator. The accuracy varies from ±0.5-1% of carbon and sulfur present. Tailings were also examined by a scanning electron microscope (SEM). The polished sections were first prepared and observed under an optical microscope (model Nikon optiphot2 Pol). Afterwards, the SEM images obtained were analyzed with the Hitachi S-3500N spectrometer EDS (Energy Dispersive X-ray). The detection limit can be considered as being of the order of one per cent (Çubukçu *et al*, 2006).

5.3.2 Water sampling and analysis

Water samples of the final effluent (FE) of the shallow water cover were taken from the weir in a 1 liter HDPE bottle (Figure 5.3). The water was acidified prior to laboratory analysis. The temperature of the water flowing over the weir was previously measured *in situ*.

In the shallow water cover, four sampling stations (P1 to P4) were selected on the east-west axis (Figures 5.1 and 5.3) where the depth of the shallow water cover is <2 m. At each station, a temperature and dissolved oxygen profile was determined using an Ecosense®

polarographic electrode DO200, provided by YSI Environmental. Manual calibration was performed in the field according to the local atmospheric pressure immediately before measuring. One water sample was collected directly near the surface of the shallow water cover by dipping a 1 liter HDPE bottle into the cover. Another sample was collected as close as possible to the tailings–water interface using a 2.2 liter clear acrylic Alpha sampler. This sample was used for physicochemical and chemical analyses and to determine the suspended sediment concentration (SSC) in the laboratory.

For groundwater sampling, water was pumped from each piezometer using the low-flow (minimal drawdown) method at 0.1 to 0.5 L/min (American Society for Testing and Materials (ASTM) D6771-02, 2002) until the physicochemical properties (T, pH, electrical conductivity) became stable (Ministère du Développement Durable, Environnement et Parcs (MDDEP, 2011). One liter of water was then collected in an HDPE bottle.

The pH was obtained with a relative precision of ± 0.01 pH unit using a benchtop pH/ISE meter, Orion model 920A, equipped with an Orion Triode electrode for pH with automatic temperature compensation. The Eh was measured with a Pt/Ag/AgCl-combined electrode (relative precision of ± 0.2 mV), then corrected for a normal hydrogen electrode. The electrical conductivity EC was measured with OAKTON Acorn Series CON 6 conductivity meter with two platinum electrodes (precision of ± 0.5%).

All water samples were filtered through a Fisher Scientific nylon filter with a 0.45 μm pore diameter. Samples were then acidified to 2% v/v HNO_3 to prevent metal oxidation. Samples were then analyzed by ICP-AES (a relative precision of 5% evaluated by Villeneuve 2004). Sulfate content was also calculated from the concentration of total sulfur (S) using the ratio of molecular weights. In this case, it is assumed that sulfate is produced from sulfur.

In addition to the physicochemical and chemical analyses, water samples from two sampling campaigns in 2010 were sent to an outside laboratory (MultiLab, Rouyn-Noranda) for the

analysis of bicarbonate, carbonate, chloride, potassium and sodium. The data were used to determine the water hydrochemical facies.

5.3.3 Wind speed and direction measurement

A microanemometer (part of an HOBO Micro Station) equipped with a data recorder was installed at the Don Rouyn site to measure hourly wind speed and direction. Speed and wind direction were measured at a frequency of 2 s, and the hourly average speed and direction was then determined and recorded. Hourly gust speed, i.e. maximum wind speed observed during the 1h measurement period, was also recorded.

Before the anemometer was installed at the Don Rouyn site, it was previously installed on the same lot at the weather station at Rouyn (call No.: WUY) for a period of 8 days as a reliability check, i.e., to verify whether the two stations measure the same wind speed and direction. WUY data were extracted from the National Climate Archives of Environment Canada (Environnement Canada, 2008). The WUY weather station, owned by the Xstrata Copper Horne Smelter, is located 2.5 km from the Don Rouyn site. The anemometer is installed at a height of 10 m above the ground and the microanemometer was installed at a height of 2.5 m. Results (not presented) show that the two anemometers indicated the same wind direction, but the wind speeds obtained with the microanmometer were lower than those obtained at the WUY station, partly due to the difference in height. The simplest elevation correction of the wind speed U_z, measured at an elevation z (m) (here z=2.5 m), was applied to obtain the corresponding measured wind speed U_{10} at the standard 10 m reference level, using the following equation (Johnson 1999; CERC 2002):

$$[5\text{-}1]\ U_{10} = U_Z\left(\frac{10}{z}\right)^{\frac{1}{7}}$$

Figure 5.4 compares the measured and corrected wind speed U_{10} from the two anemometers. The correspondence is acceptable but not perfect, for several reasons. The application of a wind speed correction factor is actually more complex than the procedure used here, because

this factor depends not only on the height difference, but also on thermal stability effects due to the temperature difference between air and soil, the friction velocity, the surface roughness, etc. (e.g., CERC, 1984, 2002; Johnson, 1999). Based on the observed results, it is concluded that the microanemometer is a reliable tool for measuring wind speed.

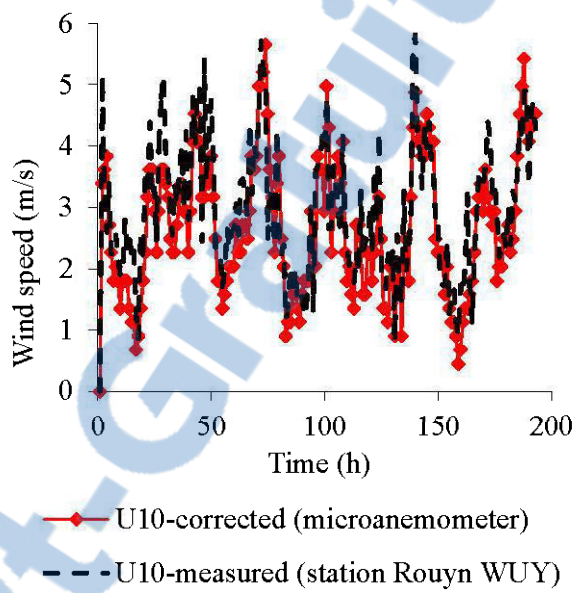


Figure 5.4 Comparison of wind speeds measured at 10 m from the ground surface at the WUY station at Rouyn and height-corrected wind speeds obtained by the microanemometer at 2.5m from the ground.

After this reliability verification, the microanemometer was installed on the roof of a cabin located on the northwest side of the Don Rouyn shallow water cover (Figure 5.5) at a height of about 10 m above the cover. The results obtained in 2008 (not presented) indicated that winds blew at all wind speed intensities (including zero) in all directions, except for directions 40° to 150°N, where the wind speed was always greater than zero. Wind directions between 200° N (southwest) and 355° N (northwest) were more frequent. These wind directions fall into the same range of the prevailing wind directions determined by Beaud (2005) using WUY data. Thus, knowing the direction of the prevailing winds, the fetch of the shallow water cover at the Don Rouyn site is estimated at about 392 m in the northwest. This

Rapport-Gratuit.com

fetch is used below to calculate the total bottom shear stress required to determine whether resuspension of tailings has occurred at the Don Rouyn site.

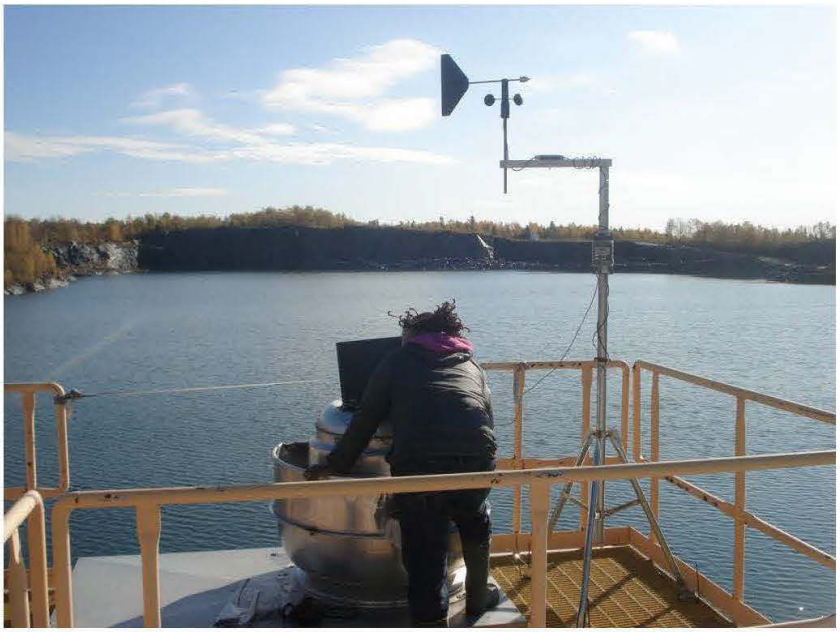


Figure 5.5 Photo of the microanemometer installed at the Don Rouyn site.

5.3.4 Measurement of suspended solid sediment concentration (SSC)

5.3.4.1 SSC using filtration

SSC (mg/L) was determined in different water samples collected from the shallow water cover near the water–tailings interface following ASTM D3977-97 (2007) or CEAEQ (2004). A known volume of a previously stirred water sample was vacuum filtered through 0.45 μm filter paper. The mass of dry solid grains contained in the volume was obtained from the difference between the mass of the dry filter pad before and after filtration.

5.3.4.2 Continuous SSC measurement

SSC was also continuously measured using a SuSix® probe (MJK Automation A/S). This optical sensor allows measuring both turbidity and SSC. The SuSix® probe measures SSCs between 1 mg/L to 400,000 mg/L at a temperature of 0 to 60° C at 5% accuracy with a 1s

response time. The probe includes a six-channel optics system using pulsed, infrared light with modified absorption measurement. It is made from acid-proof, full-gloss steel coated with chrome dioxide to minimize surface adhesion. The optical windows of the sensor are made of scratch-resistant sapphire glass, reducing the need for cleaning. The SuSix® probe is equipped with a submersible cable (10 m long in this case) connected to a converter. The system is powered by a 10 - 30 V DC battery. Before using the SuSix® probe for field measurements, it was calibrated in the laboratory using the tailings from the site Don Rouyn. The probe description and calibration procedure are presented in Appendix H.

The SuSix® probe was installed at a station located near the north border of the east-west shallow water cover at Don Rouyn (with coordinates 5346080 m North and 337000 m East; see Figure 5.3). This location was selected to prevent possible disturbance from the aggregates operation on the west side of site. At this point, the water depth was approximately 1 m, which facilitated installing the probe from a boat (Figure 5.6). This station was located less than 10 m from the bank, allowing the converter and power supply to be set up on the bank. The probe was attached to a support anchored in the tailings and deployed perpendicular to the tailings surface so that the optical windows were about 10 cm from the tailings–water interface (Figure 5.6). The probe was then connected to the battery-powered converter system, which was in turn powered by solar panels (Figure 5.6). SSC were measured and recorded at 5 min intervals. Data were retrieved monthly, and the probe was cleaned regularly to prevent dirt from obscuring the optical window.

5.4 Results and interpretation

5.4.1 Tailings characterization

The particle size characteristics and density of solid grains of the two samples analyzed are presented in Table 5.1. D_x is the diameter corresponding to x percent finer on the grain-size distribution. A significant similarity is observed between the two tailings samples, with very similar sized diameters D_{10}, D_{50}, D_{60}, and D_{90}.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

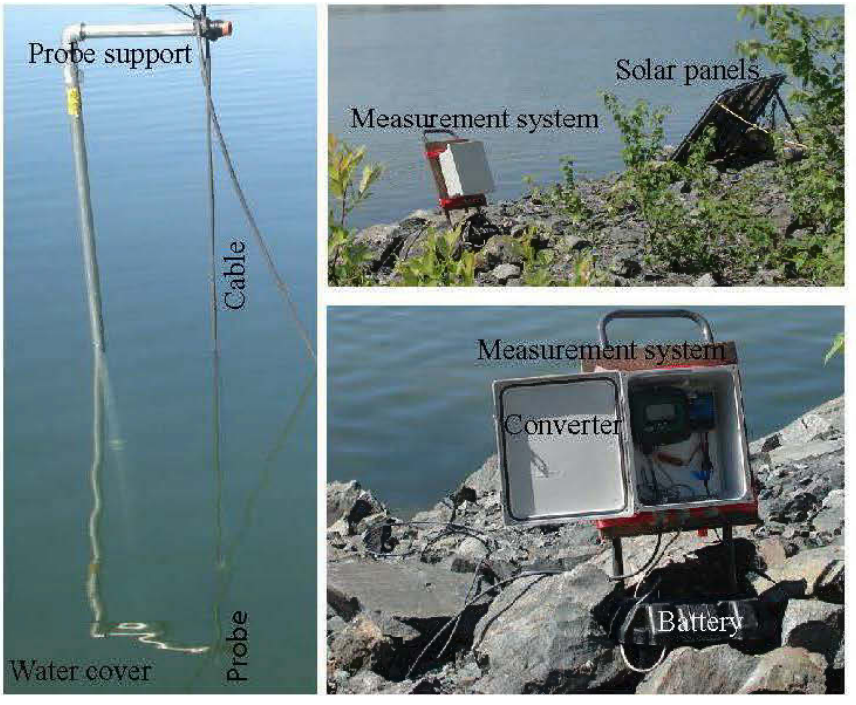


Figure 5.6 SuSix® probe installation at the Don Rouyn site.

Table 5.1 Grain-size characteristics and relative density of solid grains

	Sample		
	1	2	Average
Finer than 80 μm (%)	82	87	85
Finer than 2 μm (%)	5	5	5
D_{10} [μm]	4.98	4.90	4.94
D_{50} [μm]	38.68	34.22	36.45
D_{60} [μm]	50.53	44.10	47.32
D_{90} [μm]	118.44	100.19	109.32
C_u	10.16	8.99	9.57
C_c	1.40	1.53	1.47
D_r	4.57	4.59	4.58

The coefficients of uniformity C_U (= D_{60}/D_{10}) for the two samples are in the range from 9 to 10. The coefficients of curvature C_C [= $(D_{30})^2/(D_{60}\times D_{10}$] approach 1. These characteristics are similar to those for other tailings from hard rock mines (Bussière, 2007). The relative densities of solid grains are almost identical for the two tested samples (4.57 and 4.59). These

results are close to the relative density of solid grains of pure pyrite, which is 5.01 (Landry *et al.*, 1995), indicating high pyrite content in the tailings.

The main mineralogical components obtained by XRD show pyrite content C_P varies from 82% to 84% for both samples. This high pyrite content was also observed visually in the dry tailings samples. These results confirm those obtained by Beaud (2005) (see also Mbonimpa *et al.*, 2008), who measured a C_P value of 92%. The high pyrite content is in good agreement with the above-presented high relative density of solid grains. Total carbon and sulfur were 0.13% and 47% respectively, suggesting that these tailings are highly rich in sulfur and poor in carbonate. Other minerals present in significant proportions were quartz (6.4%), chlorite (8.9%), and muscovite (1.9%). None of these minerals is known for its neutralizing capacity (Lawrence and Wang, 1997), which means that these tailings are highly acid generating.

The results of the ICP-AES analysis of the two tailings samples for four major elements (Fe, S, Al, and Zn) clearly indicate a predominance of Fe and S, with average contents of 48.9% and 38.7%, respectively. The analysis also shows the presence of Al (0.91%), Zn (0.38%), and trace amounts of some other elements Pb (0.068%), Cu (0.049%) and Ni (0.001%) at less than 1% average content each.

Unlike the XRD analysis, the ICP-AES analysis showed the presence of Zn. SEM analysis confirmed that the main mineral component of the tailings was pyrite and that three forms of sphalerite (ZnS) were also present, which constituted the source of Zn detected with ICP-AES. Detailed results on tailings characterization are presented in Appendix I

5.4.2 Quality of the final effluent and cover waters

5.4.2.1Temperature (T) and dissolved oxygen (DO) profiles in the shallow water cover

For each station P1 to P4, DO and T profiles were monitored monthly in the shallow water cover at 20 cm intervals from July to October 2008. No significant variation in T or DO with depth was observed at any station at a given measurement date; corroborating the findings of

Beaud (2005) (see also Mbonimpa *et al.*, 2008). This observation has also been made at other shallow water cover sites (e.g., Rescan, 1996; Holmström and Öhlander, 1999; Vigneault *et al.*, 2001). Given the relatively uniform values of T and DO for all stations at a given monitoring time, mean values are presented in Table 5.2. Results show that, from July to October 2008, average DO concentration increases with decreasing temperature (Table 5.2). This is due to oxygen's solubility in water that increases with decreasing temperature (Benson and Krause, 1984; Hillel, 1998). Temperature and DO monitoring was limited to 2008 due to the relative similarity of the results on the four stations in 2008.

Table 5.2 also shows the DO concentrations at saturation (DO_{sat}), calculated using Benson and Krause's (1984) equation, for each average water temperature at each measurement date. The measured DO were generally close to saturation DO_{sat}. In other words, the shallow water cover at the Don Rouyn site is well mixed.

Table 5.2 Average concentrations of DO (mg/L) and T (°C) from July to October 2008

Station N°	Date	10 July	10 Aug.	11 Sept.	28 Oct.
	T	16.6	18.8	14.0	5.1
P1	DO	7.9	9.6	10.2	12.5
	DO_{sat}	9.8	9.3	10.3	12.7
	T	17.6	18.7	14.0	5.0
P2	DO	8.1	9.2	10.2	12.5
	DO_{sat}	9.6	9.3	10.3	12.8
	T	18.4	18.7	14.0	4.9
P3	DO	7.9	8.9	10.3	12.8
	DO_{sat}	9.4	9.2	10.3	12.8
	T	19.7	18.4	13.8	4.7
P4	DO	7.9	8.7	10.4	12.9
	DO_{sat}	9.1	9.4	10.3	12.9

5.4.2.2 Physicochemical and chemical results

In the shallow water cover, no significant variation in physicochemical parameters was measured near the air–water (a–w) interface or near the water–tailings (w–t) interface for a given measurement date and for the four stations P1 to P4. Consequently, the mean parameters for the four stations for each monitoring date were presented.

Measurements of pH at the final effluent ranged from 7.4 to 8 and from 6.7 to 8.4 in the shallow water cover (Figure 5.7). All pH values were within the same range, and very close to neutral conditions. In addition, they were within the pH limits defined by Canada's Metal Mining Effluent Regulations, which required a pH between 6 and 9.5 (Department of Justice Canada, 2011).

Eh ranged from 189 to 370 mV for the final effluent and from 140 to 400 mV for the shallow water cover (Figure 5.8). Although these were positive, indicating an oxidizing environment, they were generally below the Eh threshold (400 mV), indicating that kinetic testing would show AMD generation (MEND, 1991), and they were below the Eh observed in typical AMD (Aubertin, Bussière and Bernier, 2002).

On the other hand, electrical conductivity (EC) generally varied from 300 to 500 µS/cm in the final effluent and in the cover (Figure 5.9). This was relatively low compared with the EC found at other shallow water cover sites (e.g., mean EC of 3350 µS/cm at the Equity Silver site, Rescan, 1996; Mean EC of 106.5 µS/cm at Stekenjokk site, northen Sweden , Holmström and Öhlander, 1999).

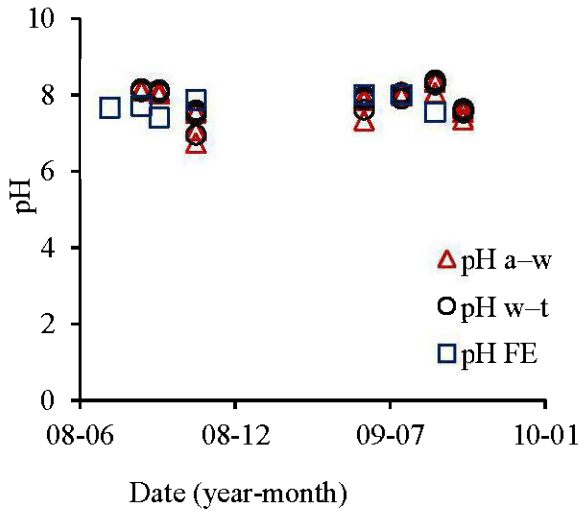


Figure 5.7 Evolution of pH in the effluent and the shallow water cover.

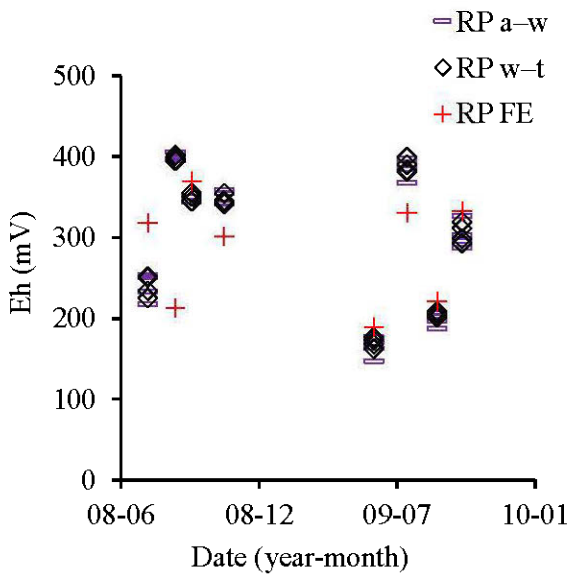


Figure 5.8 Evolution of Eh in the effluent and the shallow water cover.

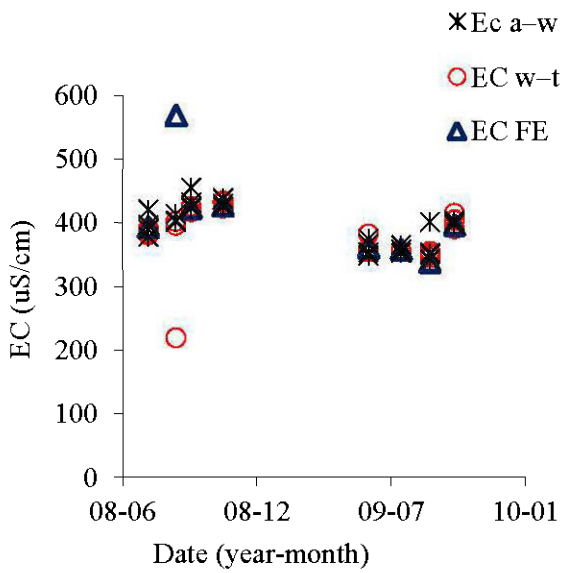


Figure 5.9 Evolution of EC in the effluent and the shallow water cover.

The ICP-AES results for the eight final effluent and 32 cover water samples were presented in Table 5.3 in terms of minimum and maximum for seven major components: As, Cu, Fe,

Ni, Pb, Zn, and SO_4^{2-}. Sulfate concentrations were generally uniform, at values between 91 and 121 mg/L for the final effluent and between 91 and 128 mg/L for the cover water. These concentrations were lower than those observed in the shallow water cover at Equity Silver, British Columbia (1800 to 1900 mg/L; Rescan, 1996), but slightly higher than those observed in field experimental cells at the Louvicourt site (40 to 60 mg/L; Vigneault, Kwong and Warren, 2007).

Concentrations of As, Cu, Ni, and Pb in the final effluent and concentrations of As, Pb, and Ni in the shallow water cover were generally below the detection limit (Table 5.3). Concentrations of Fe and Zn in the final effluent were respectively from 0.006 to 0.027 mg/L and from 0.029 to 0.117mg/L. In the shallow water cover, Zn concentrations (0.031 to 0.12 mg/L) were comparable to those of the effluent, whereas Cu (0.003 to 0.011 mg/L) and Fe (0.006 to 0.057 mg/L) concentrations were higher than in the effluent. In all cases, the maximum Zn concentration (0.120 mg/L) observed in 2008 was 11 times higher than the maximum concentration of Cu (0.011 mg/L). This was in accordance with the ICP-AES results on the tailings.

The metal concentrations measured at the Don Rouyn site were below the local environmental criteria (3 mg/L for Fe, 0.3 mg/L for Cu and 0.5 mg/L for Zn; MDDEP, 2005). The Zn concentration was also below the criteria stipulated in Canada's Metal Mining Effluent Regulations (Department of Justice Canada, 2011). The Fe and Zn concentrations were also lower than Canada's recommended levels for the quality of drinking water from raw water (surface water and groundwater), which specified maximum concentrations of 0.3 mg/L for Fe and 5 mg/L for Zn (Santé Canada, 2008).

Table 5.3 Minimal and maximal geochemical parameters in the shallow water cover and final effluent and maximum concentrations specified in Quebec's *Directive 019* and Canada's Metal Mining Effluent Regulations

Parameter	Detection limit (DL)	Final effluent (mg/L)	Shallow water cover (mg/L)	Quebec's *Directive 019* (mg/L)	Federal Metal Mining Effluent Regulations (mg/L)
As	0.01	<DL	< DL	0.2	1
Cu	0.003	<DL	0.003-0.011	0.3	0.6
Fe	0.006	0.006-0.027	0.006-0.057	3	ND
Ni	0.004	<DL	<DL	0.5	1
Pb	0.02	<DL	< DL	0.2	0.4
Zn	0.005	0.029-0.117	0.031-0.120	0.5	1
SO_4^{2-}	ND	91-121	91-128	ND*	ND

*ND: Not defined

5.4.3 Characteristics of the groundwater around the Don Rouyn site

5.4.3.1 Well water levels

The water levels measured at different dates in each of the piezometers are given in Figure 5.10. Elevations range from 308.6 m to 320.7 m. Considering that the maximum water level of the shallow water cover is imposed by a weir at 308.5 m, the results indicate that the water level in the shallow water cover is lower than the water levels in each of the piezometers. This suggests that the hydraulic gradient drives the water flow from the ground water to the Don Rouyn pit, which captures groundwater. A generally high difference in level was found between the weir crest and wells F2, F3, and F5 (>3.5 m). A water level increase of this amount is unlikely in the pit. The water levels in piezometers F1 and F6 are close to the weir crest level. As these two wells are located near the discharge area for water from the Don Rouyn site, and because this water is not contaminated, water flow from the pit to the groundwater is unlikely.

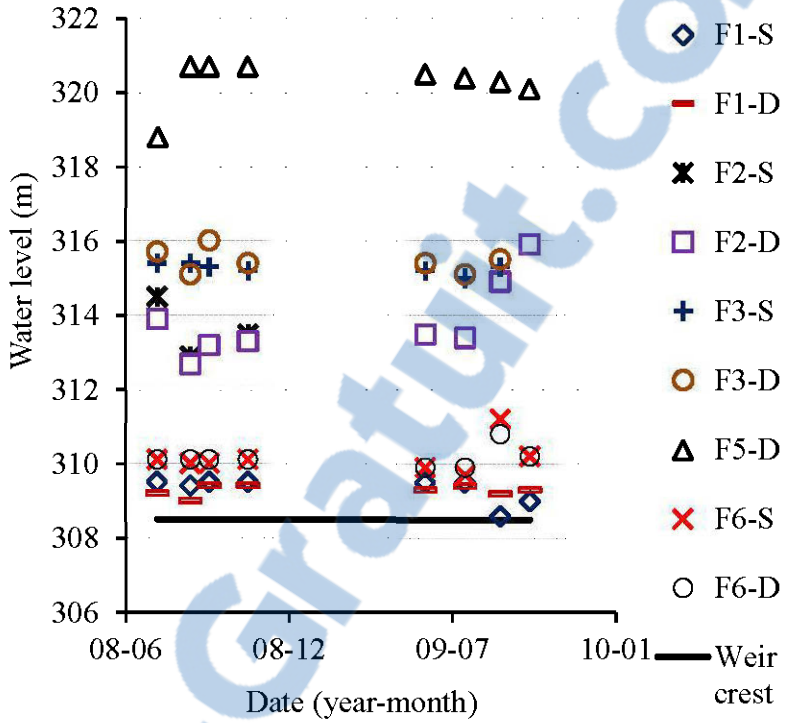


Figure 5.10 Variation in water level in the piezometers around the Don Rouyn site during summer and fall 2008 and 2009.

5.4.3.2 Physicochemical and geochemical properties

2008 to 2009 measurements of pH in the groundwater were between 6 and 8. These pH were in the same range as those measured in these piezometers by GEOCON in 1997a ($7.2 \leq pH \leq 8$) and the Xstrata Copper Horne Smelter in June 2008 ($6.4 \leq pH \leq 7.7$). These pH approached neutral pH, and were similar to the pH measured in the shallow water cover and the final effluent. Eh in the piezometers ranged from 80 to 384 mV, and were generally lower than in the shallow water cover. EC measured in the groundwater ranged from 264 to 785 µS/cm for all piezometers, except for F3, ranging from 1364 to 2780 µS/cm. GEOCON (1997a, b) and Beaud (2005) also found particularly high EC in this borehole. This high conductivity was confirmed by the high concentrations of Ca, Mg, Si, and SO_4^{-2} measured in water samples collected from this well (see details below).

Rapport-Gratuit.com

With the exception of F3, sulfates were between 7 and 190 mg/L, and below the recommended standards for groundwater used for drinking water, for which the prescribed threshold is 250 mg/L (Appelo et Postma, 1994).

Most metal concentrations were below the ICP-AES detection limits. Two metals (Ba and Zn) were present in measurable quantity in groundwater samples. The concentrations obtained were below the criteria for groundwater quality (MDDEP, 2008; Santé Canada, 2008).

As mentioned above, piezometers F3-S and F3-D showed particular characteristics, with highly mineralized groundwater. Sulfate concentrations ranged from 309 to 663 mg/L. Concentrations of Ca, Mg, Si, and Mn varied from 199 to 320 mg/L, 29 to 50 mg/L, 4 to 10 mg/L, and 27 to 48 mg/L, respectively. These were high concentrations compared to the other piezometers (which were below detection limits). It can be assumed that the high amount of sulphate ions, Ca, Mg, Si, and Mn in the groundwater from well F3 is due to the presence of carbonate (calcite, dolomite), clay (montmorillonite), in the fill through which F3 was drilled. Because these ions were easily dissolved, rainwater infiltrating through the fill could have resulted in their release into the groundwater (Banton and Bangoy, 1999). Furthermore, F3 was the only piezometer located in the fractured and oxidized rock.

5.4.4 Water geochemical facies

Geochemical hydrofacies at Don Rouyn were determined using the Piper diagram. Piper diagram consists of two triangles representing the cationic and anionic facies and a diamond synthesizing the global facies (Banton and Bangoy, 1999). The geochemical facies of the Don Rouyn water (effluent EF and wells) are presented in Figure 5.11.

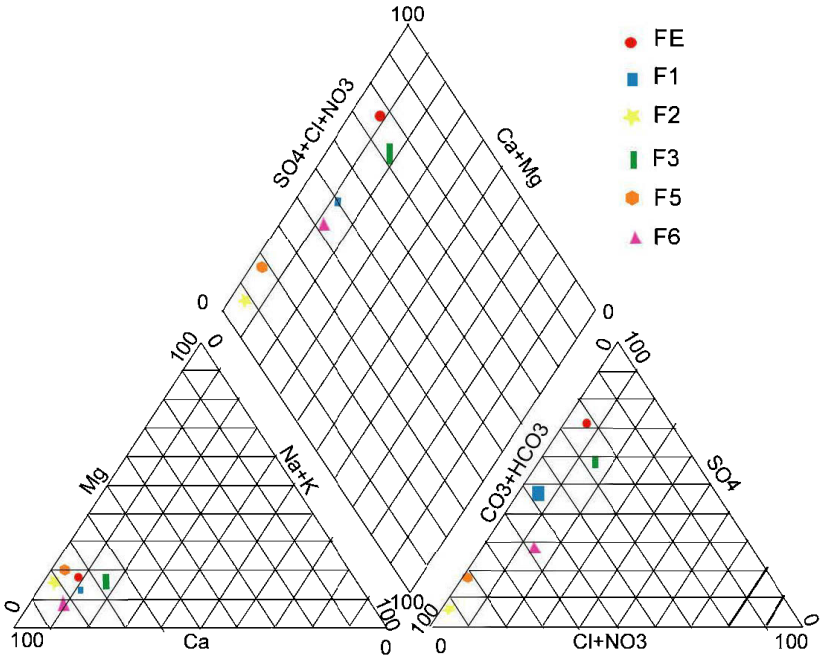


Figure 5.11 Water geochemical hydrofacies using the Piper diagram for wells F1 to F6 and for the final effluent (FE).

The bicarbonate facies was found in most groundwater. It distinguished sulfate calcium bicarbonate water, calcium bicarbonate water, and calcium and magnesium bicarbonate water with the exception of groundwater in borehole F3, which contains more calcium, magnesium, and sulfate water. This could be explained by the abnormally high concentrations of sulfate and other components in these wells, as discussed above. In contrast, the final effluent of the shallow water cover showed calcium sulfate water. These results indicated that the groundwater's composition differs from that of the cover water. This contributed to confirm that the groundwater is not influenced by the cover water, corroborating the above observation based on a water level comparison, which suggested that the cover water does not leak into the groundwater.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

5.4.5 Suspended sediment concentration (SSC)

5.4.5.1 SSC measurement by filtration

SSCs determined by filtration, as described in section 3.4.1, for all water samples collected near the tailings–water interface at the four stations P1 to P4 varied from 1.1 to 15 mg/L. The variation in SSC across stations could be explained by the difference in cover water depths at the sampling dates (which varied between 1.1 and 1.7 m). The wind speed U_{10} measured at the time of water sampling at the Don Rouyn site varied from 1 to 6 m/s. SSCs were compared with U_{10}; the result showed that there was no evidence of a link between U_{10} and SSC. It should be noted that the final effluent flows through a narrow channel excavated in the rock. This channel is only slightly influenced by the wind. SSCs of the final effluent were lower than those obtained for the shallow water cover (about 5 mg/L in 2008). Even in the shallow water cover, SSCs were less than the maximum allowable concentration in an instantaneous sample (30 mg/L), as recommended by the Canadian Metal Mining Effluent Regulations (Department of Justice, Canada, 2011). These SSCs measured in the shallow water cover were also below the maximum acceptable SSC (30 mg/L) recommended by Quebec's *Directive 019* on the mining industry (Gouvernement du Québec, 2012b).

5.4.2.2 Continuous SSC measurements

SSCs were continuously measured from June to September 2010 using the SuSix® optical probe installed 10 cm above the water–tailings interface, as described in Section 3.5.2. SSCs were measured continuously at 5-min intervals to calculate the hourly arithmetic mean. Figure 5.12 presents the temporal evolution of continuously measured SSCs. For the measurement period, the average hourly SSCs ranged from 0.91 mg/L to 18.5 mg/L, comparable to those measured by filtration. The absence of SSCs from July 11 to August 5, 2010 was due to a clogged SSC probe, which consequently recorded abnormally high SSCs. The probe was cleaned for further measurements. SSCs peaks were also seen at certain times.

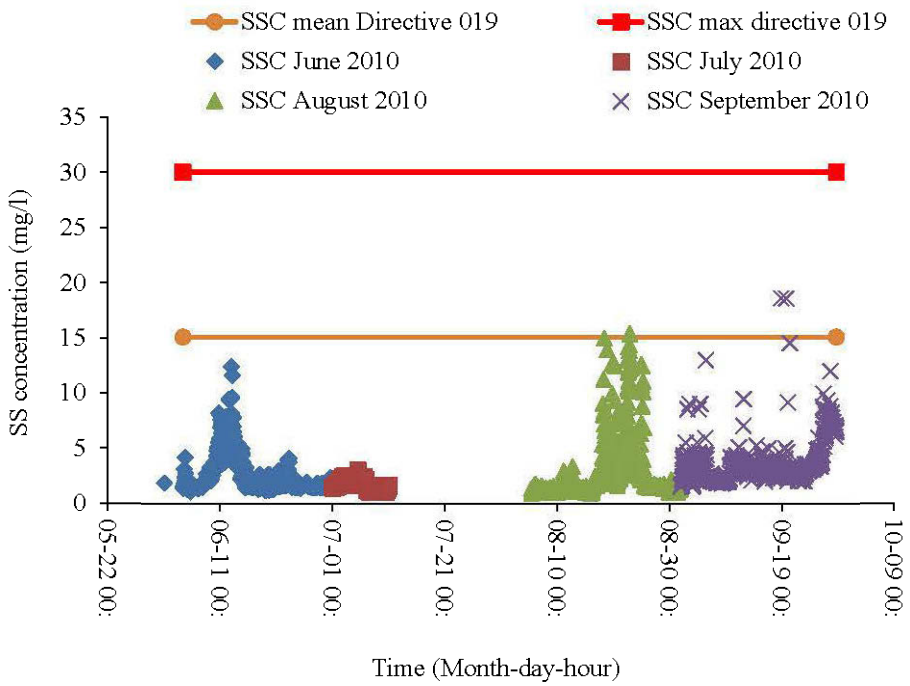


Figure 5.12 SSC evolution during summer 2010.

Unfortunately, the microanemometer located on the bank nearest the SSC station to monitor wind speed near the water surface at a height of 2.5 m showed very low speed $U_{2.5}$ the majority of the time. Even when $U_{2.5}$ was corrected to estimate the wind speed U_{10} at an elevation of 10 m (see eq. 5-1), the U_{10} were still too low to explain the evolution of SSC. Attempts were made to compare hourly SSC concentrations with hourly wind speed U_{10} taken from the National Climate Archives of Environment Canada for the WUY station at Rouyn (Environnement Canada, 2010). Results were presented in Figure 5.13. Surprisingly, the expected correlation between wind speed and SSC was not observed: high SSCs were observed at low wind speeds, and SSC tended to decrease with increasing wind speed. This result was consistent with the results on SSC measurement by filtration. SSC was also compared with wind direction measured in the same period (results not presented). The results showed that both low and high SSCs were present for all wind directions. An analysis of these results suggested that the resuspension of tailings particles at the Don Rouyn site was

probably controlled by factors other than hourly direction and wind speed. This aspect will be addressed further in the discussion section.

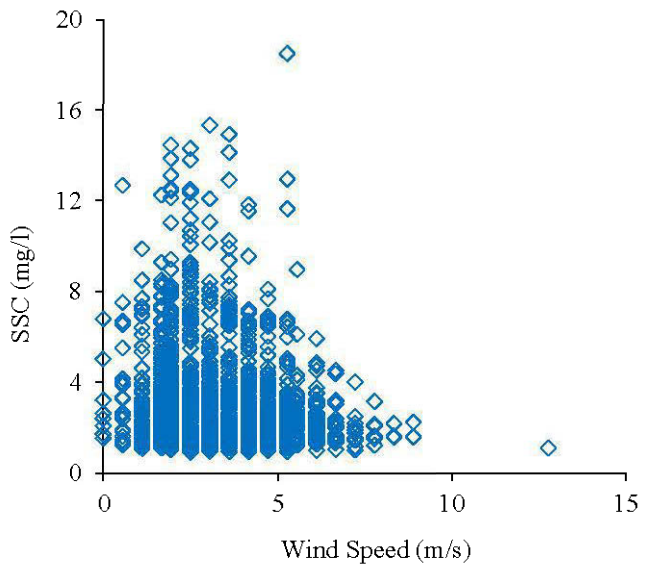


Figure 5.13 Correlation between continuously measured SSC and wind speed.

5.5 Discussion

Several results were presented above to assess the performance of the shallow water cover at the Don Rouyn site. SSCs were measured even at low wind speed. It was hence useful to examine the yield wind speed above which resuspension was induced, using the above-presented hydrodynamic equations.

5.5.1Hydrodynamic conditions for tailings resuspension

Tailings were resuspended in a shallow water cover when the total shear stress (τ_{tot}) exerted on the tailings exceeds the critical shear stress (τ_{cr}). The total shear stress (τ_{tot}) includes the stress induced by waves (τ_w) and the stress caused by the return current near the bed (τ_{ret}) (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Yanful and Mian, 2003; Samad and Yanful, 2005).

[5-2] $\tau_{tot} = \tau_W + \tau_{ret}$

The bottom shear stress τ_w [Pa] can be estimated as follows (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Yanful and Catalan, 2002; Yanful and Mian, 2003; Samad and Yanful, 2005):

[5-3] $\tau_W = \frac{1}{2}\rho_W f_W U_W^2$

where ρ_w is the density of water (1000 kg/m^3), f_w is the wave friction factor which is a function of Reynolds number (equation 2-15 and 2-16) and the relative roughness of the boundary. U_w is the bottom velocity for the wind-induced waves (m/s) defined by equation 2-14 in chapter 2. U_w is a function of the wave characteristics T_s (s), L_s (m), and H_s (m), which are the significant wave period, length, and amplitude, respectively. T_s and H_s can be estimated for deep-water waves (h/L> 0.5) (equations 2-17 and 2-18) or shallow-water waves (h/L <0.5) (equations 2-19 and 2-20) depending on the wind speed U_{10} (measured at 10 m above the surface of the water recovery) and the fetch F (m). L_s was calculated using equation 2-21or 2-22.

The shear stress due to return currents τ_{ret} (Pa) at the water–tailings interface is given by the following equation (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001; Lawrence, Ward and MacKinnon, 1991; yanful and Catalan, 2002; Mian and Yanful, 2004):

[2-23] $\tau_{ret} = 0.1 C_D \rho_a U_a^2$

where $C_D = 0.001(0.75 + 0.067U_a)$ (-), and ρ_a is the density of air (1.24 kg/m^3 at 10 °C). $U_a = 0.71 U_{10}^{1.23}$.

The critical shear stress (τ_{cr}) can be estimated as follows (Chien and Wan, 1998; Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001;):

$$[5\text{-}5]\ \tau_{cr} = \frac{1}{77.5}\left[\ 3.2\ (\gamma_s - \gamma_w)\,D_{50} + \left(\frac{\gamma_b}{\gamma_{bo}}\right)^{10}\ \frac{2.9\times10^{-4}}{D_{50}}\right]$$

where γ_s and γ_w are the unit weights of the tailingsand water, respectively (N/m3). γ_b and γ_{bo} are the unit weights of the tailings at the interface (N/m^3) and the consolidated tailings (N/m^3), respectively. These two unit weights are usually assumed to be equal when the tailings are stored under water for a long time, as is the case here. D_{50} is the mean diameter of the tailings.

Taking into account all the parameters, the critical shear stress τ_{cr} for the tailings submerged at Don Rouyn was estimated at 0.16 N/m^2. Other equations presented in the literature (e.g. Millet *et al.*, 2010) yield a very similar critical shear stress.

The total shear stress was calculated for the Don Rouyn site with a fetch of 392 m for shallow water cover depths h of 0.81 m, 1 m, and 1.16 m and wind speeds U_{10} from 1 to 20 m/s (Figure 5.14). The depths h of 0.81 m and 1.16 correspond to the minimum and median depths of the shallow water cover at Don Rouyn. The depth h=1 m is the targeted design depth of the Don Rouyn shallow water cover (GEOCON, 1997a). The calculations were first performed for the deep-water wave conditions (h/L>0.5) prevailing when U_{10}<11 m/s for h=0.81 m, U_{10}<14 m/s for h=1.0 m, and U_{10}<17 m/s for h=1.16 m. Figure 5.14 also shows the critical shear stress calculated using eq. 5-5. The shear stress calculations for shallow-water waves (h/L<0.5) were not performed because the total shear stress becomes greater than the critical shear stress for the deep-water wave conditions. For the Don Rouyn shallow water cover, the results presented in Figure 5.14 indicate that tailings resuspension ($\tau_{tot} \geq \tau_{cr}$) starts when $U_{10} \geq 10$ m/s for h=0.81 m, when $U_{10} \geq 11$ m/s for h=1m, and when $U_{10} \geq 12$ m/s for h=1.16 m. The highest wind speeds observed at the WUY station for each of the last 10 years varied from 10.83 m/s to 14.44 m/s. Although resuspension would occur under such

conditions, these conditions rarely occur. U_{10} was always lower than 10 m/s during the periods of SSC measurements, except for a single outlier data point (see Fig 5.13).

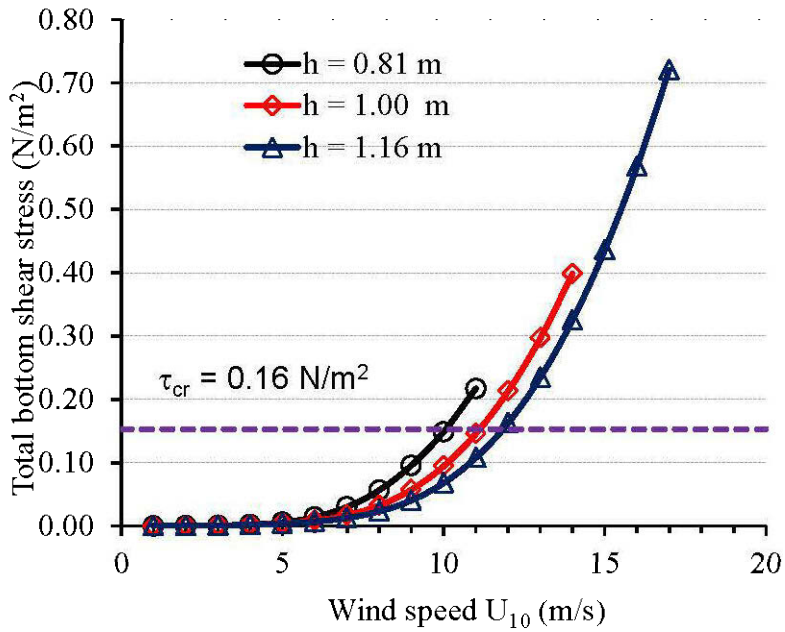


Figure 5.14 Variation in total bottom shear stress with respect to wind speed.

However, the field measurements indicated that tailings resuspension occurred at wind speeds lower than 10 m/s (see Figure 5.13). No particular event was also found to explain the SSC peaks observed in Figure 5.13. There was no causal relationship between the evolution of SSC and gust speed observed at site. This can be explained by the fact that the measured SSCs represent a combined resuspension-transport-deposition process, which makes difficult to isolate the influence of wind speed on resuspension only. Numerical models should be used to solve the differential equations of the balance between the upward and downward transport of particles (e.g., Vlag, 1992; Millet *et al.*, 2010). It can be assumed that the SS observed came from a thin layer of very fine particles deposited at the tailings surface that likely had the potential to remain in suspension for some time.

5.5.2 Comparison of Don Rouyn SSC with other sites

Compared to other shallow water cover sites, SSCs in the Don Rouyn site are low. For example, in Cell 14 of the Quirke shallow water cover site near Elliot Lake (Ontario, Canada) with a fetch of 1.5 km, SSCs varied from 100 to 1000 mg/L for wind speeds ranging from 0 to 15 m/s (Adu-Wusu, Yanful and Mian, 2001). From October 1992 to October 1999, Peacey, Yanful and Payne, 2002 measured SSC between 98 à 101 mg/L in the same Cell 14 of the Quirke site. At the Heath Steele site, Peacey and Yanful (2003) measured SSC of 37.5 mg/L in October 1998 and 152 mg/L in May 1999.

Kachhwal, Yanful and Rennie (2010b) continuously measured SSC for only 18 hours using two optical backscatter (OBS) sensors at the Shebandowan site located 100 km northwest of Thunder Bay, Ontario, Canada and obtained SSCs ranging from 5 to 25 mg/L with the first OBS sensor located 10 cm above the tailings and from 2 to 8 mg/L with the second probe located 25 cm above the tailings. The wind speed ranged from 4 to 9 m/s during the 18-hour study (compared to from 1 to 5 m/s over the 4 months at the Don Rouyn site). The Shebandowan site is larger (total area 115 ha) than the Don Rouyn (only 7 ha), which can produce a much higher fetch, depending on the wind direction. The configuration of the Shebandowan site, which is surrounded by engineered dykes, differs from that of the Don Rouyn pit, which is surrounded by sometimes very high rock walls. The depth of the shallow water cover varies from 0.6 to 3 m at the Shebandowan site, and from 0.81m to 2.8 m at the Don Rouyn site. The average tailings diameter (D_{50}) ranges from 6.5 μm to 9 μm at the Shebandowan site, and around 36 μm at the Don Rouyn site. When all these characteristics are compared, it may be concluded that the Shebandowan tailings may be more prone to resuspension than the Don Rouyn tailings for the same wind speed.

5.6 Conclusion

This study assessed the efficiency of the shallow water cover at the Don Rouyn site by evaluating the chemical and physical stability of the submerged tailings. Field monitoring and laboratory tests were performed. Results of water quality analyses suggest that, at the time of

the study, there was no contamination in either the final effluent or the cover water. All parameters met the requirements of Canada's Metal Mining Effluent Regulations and Quebec's *Directive 019* for the mining industry; Zn concentration was higher than other metals.

The groundwater generally met the criteria for groundwater contamination and the Canadian guidelines for water quality. Water levels in the piezometers placed in the surroundings of the water cover were higher than the level of the weir crest that controlled the water level in the pond. Furthermore, the dominant hydrochemical facies of the groundwater and cover water differed. Therefore, under the current site conditions, the cover water should not affect the surrounding groundwater.

Measurement by filtration and using a SuSix® optical probe obtained the suspended sediment concentrations for all hourly wind speeds and directions, and theoretical calculations indicated that resuspension may occur for wind speeds exceeding 10 to 12 m/s. The theoretical calculation concepts appear to disagree with the measurement at the Don Rouyn site. The unexpected SSC observations even at low hourly wind speed are difficult to explain. The measured SSCs remain below regulatory limits, and fortunately do not affect the quality of the cover water (pH and metal concentrations are within regulatory limits).

5.7 Acknowledgements

The authors received financial support from NSERC and from the participants in the Industrial NSERC Polytechnique-UQAT Chair on Environment and Mine Wastes Management (www.polymtl.ca/enviro-geremi). The research was also partially supported by an NSERC Discovery Grant. The authors also wish to thank the Xstrata Copper Horne Smelter, and particularly Jacques Leclerc, Alain Lebel, and René Lavallière for their collaboration. The URSTM staff is also thanked for help with the laboratory and field works.

Rapport-Gratuit.com

5.8 References

Adu-Wusu, C., Yanful, E.K., Mian, M.H. 2001. "Field evidence of resuspension in a mine tailings pond". *Canadian Geotechnical, Journal,* 38: 796−808.

Appelo, C.A.J., et Postma, D. 1994. *Geochemistry groundwater and pollution.* Rotterdam, Brookfield: A.A. Balkema.

American Society for Testing and Materials (ASTM) D3977-97. 2007. Standard test methods for determining sediment concentration in water samples. American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, United States.

American Society for Testing and Materials (ASTM) D6771-02. 2002. Standard practice for low-flow purging and sampling for wells and devices used for groundwater quality investigations. American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, United States.

Aubertin, M., Bussière, B., Bernier, L. 2002. *Environnement et gestion des rejets miniers.* CD-ROM, Les Presses Internationales Polytechnique, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.

Banton, O., et Bangoy, L.M. 1999. *Hydrogéologie, multiscience environnementale des eaux souterraines*. PUQ/AUPELF. Sainte-Foy, Québec.

Beaud, V. 2005. "Étude de l'efficacité du recouvrement en eau pour limiter la génération de drainage minier acide, site Don Rouyn, Rouyn-Noranda". *Rapport de stage*, Université du Québec en Abitibi Témiscamingue, Québec, Canada, 63p.

Benson, B.B., Krause, D.Jr. 1984. "Concentration and isotopic fractionation of dissolved oxygen in freshwater and seawater in equilibrium with the atmosphere". *American Society of Limnology and Oceanography,* 29: 620−632.

Bussière, B. 2007. "Hydro-geotechnical properties of hard rock tailings from metal mines and emerging geo-environmental disposal approaches". *Canadian Geotechnical Journal,* 44 :1019−1052.

Catalan, L.J.J., Yanful, E.K. 2002. "Sediment-trap measurements of suspended mine tailings in shallow water cover". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 19−30.

Catalan, L.J.J. 1998. "Prédiction à long terme de la qualité de l'eau dans l'ancienne carrière Don Rouyn". Rouyn-Noranda, Québec, Fonderie Horne, 77p.

Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec (CEAEQ). 2004. Détermination des solides en suspension totaux et volatils dans les effluents : méthode gravimétrique. MA. 104-S.S. 1.1, Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs du Québec, 2008, 10 p. http://www.ceaeq.gouv.qc.ca/methodes/pdf/MA104SS11.pdf

Chien, N., Wan, Z. 1998. *Mechanics of sediment transport.* Virginia: Reston, VA: ASCE Press.

Coastal Engineering Research Center (CERC). 1984. *Shore protection manual*. Army Corps of Engineers, Coastal Engineering Research Center, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C. USA.

Coastal Engineering Research Center (CERC). 2002. *Coastal engineering manual*. U.S. Army Corps of Engineers, Coastal Engineering Research Center, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C. USA.

Çubukçu, H. E., Ersoy, O., Aydar, E., Çakir, U. 2006. WDS versus silicon drift detector DS

– A case report for the comparison of quantitative chemical analyses of natural silicate minerals, Micron, doi:10.1016/j.micron.2006.11.004.

Department of Justice, Canada. 2011. Metal Mining Effluent Regulations (SOR/2002−222). http://laws-lois.justice.gc.ca/PDF/SOR-2002-222.pdf

Environment Canada. 2010. National Climate Data and Information Archive. http://climate.weatheroffice.gc.ca/

Environment Canada. 2008. National Climate Data and Information Archive. http://climate.weatheroffice.gc.ca/

GEOCON. 1997a. "Projet de déposition de résidus miniers, ancienne carrière Don Rouyn : Étude hydrogéologique". *Rapport préparé pour Métallurgie Noranda inc., Fonderie Horne,* Rouyn-Noranda, Québec, Canada, dossier M-6148 (600996).

GEOCON. 1997b. "Plan de restauration, ancienne carrière". *Rapport préparé pour Métallurgie Noranda inc., Fonderie Horne,* Rouyn-Noranda, Québec, Canada, dossier Fonderie Horne, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, dossier M−6270 (601148).

Gouvernement du Québec. 2012b. Directive 019 sur l'industrie minière. http://www.mddep.gouv.qc.ca/milieu_ind/directive019/directive019.pdf

Hillel, D. 1998. *Environmental Soil Physics*. Academic Press. San Diego.

Holmström, H., Öhlander, B. 1999. "Oxygen penetration and subsequent reactions in flooded sulphidic mine tailings: a study at Stekenjokk, northern Sweden". *Applied Geochemistry*, 14: 747−759.

Johnson, H.K. 1999. "Simple expressions for correcting wind speed data for elevation". *Coastal Engineering,* 36:263−269.

Kachhwal, L.K., Yanful, E.K., Rennie, C.D. 2010b. "Field measurement of re-suspension in a tailings pond by acoustic and optical backscatter instruments". *63rd Canadian Geotechnical Conference & 6th Canadian Permafrost Conference,* September 12-16, Calgary, AB, Canada.

Kachhwal, L.K., Yanful, E.K., Lanteigne, L. 2010. "Water cover technology for reactive tailings management: A case study of field measurement and model predictions". *Water, Air, and Soil Pollution,* 214: 357−382.

Landry, B., Pageau, J.G., Gauthier, M., Bernard, J., Beaudin. J., Duplessis, D. 1995. *Prospection minière*. Modulo Éditeur, Mont-Royal, Québec.

Lawrence, G.A., Ward, G.A., MacKinnon, P.R.B. 1991. "Wind wave-induced suspension of mine tailings in disposal ponds. A case study". *Canadian Journal of Civil Engineering*, 18: 1047−1053.

Lawrence, R.W., Wang, Y. 1997. "Determination of neutralization potential in the prediction of acid rock drainage". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, BC, p 449−464

Li, M., Aubé, B., St-Arnaud, L. 1997. "Consideration in the use of shallow water covers for decommissioning reactive tailings". *4th International Conference on Acid Mine Drainage*, May 31-June 6, Vancouver, BC, 115−130

Mbonimpa, M., Awoh, A. S., Beaud, V., Bussière, B., Leclerc, J. 2008. "Spatial water quality distribution in the water cover used to limit acid mine drainage generation at the Don Rouyn site (QC, Canada)". *61th Canadian Geotechnical Conference and the 9th*

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Joint CGS/IAH-CNC Groundwater Conference, 21−24 September, Edmonton, AB, Canada, 855−862.

MDDEP. 2011. Guide d'échantillonnage à des fins d'analyses environnementales : Cahier 3 échantillonnages des eaux souterraines. Ministère du Développement Durable, Environnement et des parcs. http://www.ceaeq.gouv.qc.ca/documents/publications/echantillonnage

MDDEP. 2008. Critères de qualité de l'eau de surface au Québec. Ministère du Développement Durable, Environnement et Parcs http://www.mddep.gouv.qc.ca/eau/criteres_eau

MEND. 2001. "MEND Manual: prevention and control". *MEND report 5.4.2d,* CANMET, Ottawa, Canada, 154 p.

MEND. 1991. "Acid rock drainage prediction manual: A manual of chemical evaluation procedures for the prediction of acid generation from mine wastes". *MEND report, 1.16. 1b*, 83p.

Merkus, H.G. 2009. *Particle size measurements: Fundamentals, Practice, Quality*. Springer, The Netherlands.

Mian, M.F., Yanful, E.K., Martinuzzi, R. 2007. "Measuring the onset of mine tailings erosion". *Canadian Geotechnical Journal*, 44: 473−489.

Mian, M.F., Yanful, E.K. 2007. "Erosion characteristics and resuspension of sub-aqueaous mine tailings". *Journal of Environmental Engineering and Science,* 6: 175−190.

Mian, M.H., Yanful, E.K. 2004. "Analysis of wind-driven resuspension of metal mine sludge in a tailings pond". *Journal of Environmental Engineering and Science*, 3:119−135.

Millet, B., Robert, C., Grillas, P., Coughlan, C., Banas, D. 2010. "Numerical modelling of vertical suspended solids concentrations and irradiance in a turbid shallow system". H*ydrobiologia,* 638:161−179

Peacey, V., Yanful, E.K. 2003. "Metal mine tailings and sludge co-deposition in a tailings pond". *Water, Air, and Soil Pollution*, 145: 307−339.

Peacey, V., Yanful, E.K Payne, R. 2002. "Field study of geochemistry and solute fluxes in flooded uranium mine tailings". *Canadian Geotechnical. Journal,* 39: 357−376.

Rescan. 1996. "Geochemical assessment of Equity Silver tailings pond". *MEND Project 2.11.5c*, Vancouver, Canada, 123p.

Samad, M.A., Yanful, E.K. 2005. "A design approach for selecting the optimum water cover depth for subaqueous disposal of sulfide mine tailings". *Canadian Geotechnical Journal,* 42: 207−228

Samad, M.A., Yanful, E.K. 2004. "Preliminary assessment of a monitoring and management model for sulfidic mine tailing ponds under shallow water covers". *57e Congrès Canadien de Géotechnique -5e Congrès conjoint SCG/IAH-CNN,* October 24−27, CD-rom, Session 4G.

Santé Canada. 2008. Recommandations canadiennes pour la qualité des eaux au Canada (RCQEa), Gouvernement du Canada. www.santecanada,gc.ca/eauqualite

Vigneault, B., Kwong, Y.T.J., Warren, L. 2007. "Assessing the long term performance of a shallow water cover to limit oxidation of reactive tailings at Louvicourt Mine". *MEND report 2.12.2*, 63p.

Vigneault, B., Campbell, P. G. C., Tessier, A., De Vitre, R. 2001. "Geochemical changes in sulfidic mine tailings stored under a shallow water cover". *Water Research*, 35: 1066−1076.

Villeneuve, M. 2004. "Évaluation du comportement géochimique à long terme de rejets miniers à faible potentiel de génération d'acide à l'aide d'essais cinétiques ". Mémoire de maîtrise, Département des génies civil, géologique et des mines. École Polytechnique de Montréal, Montréal, Q, Canada.

Vlag, D. 1992. "A model for predicting waves and suspended silt concentration in a shallow lake". *Hydrobiologia,* 235/236: 119−131.

Yanful, E.K., Mian, M.H. 2003. "The nature and implications of resuspension in subaqueous sulfide tailings". *6th International Conference on Acid Mine Drainage*, 12-18 July, Cairns, QLG, CD-rom, 1177−1183.

Yanful, E.K., Catalan, L.J.J. 2002. "Predicted and field measured resuspension of flooded mine tailings". *Journal of Environmental Engineering*, 128: 341−351.

Yanful, E.K., Verma, A., Straatman, A.S. 2000. "Turbulence driven metal release from suspended pyrrhotite tailings". *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering,* 126: 1157−1165.

Young, R.A. 1995. *The Rietveld method.* Young, R. A. éd., Oxford University Press, 312p.

CHAPITRE VI

CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

6.1 Sommaire

Dans les climats humides, la déposition de résidus miniers sulfureux sous un recouvrement en eau représente une alternative fiable pour limiter le DMA. De nombreux travaux présentés dans la littérature ont démontré l'efficacité de cette technique. Certains travaux ont porté sur le processus de transport d'oxygène dissous (OD) à l'interface eau–résidus. Dans la plupart de ces études, le flux d'oxygène dissous à l'interface eau–résidus est déterminé à l'aide de la première loi de Fick, où le gradient de concentration d'OD est établi à partir des profils verticaux de concentration d'oxygène dissous en fonction de la profondeur et le coefficient de diffusion (D_w) est estimé. Toutefois, lorsque ces profils ne sont pas connus (en particulier pendant les phases préliminaires d'un projet), il est difficile d'estimer le flux d'oxygène dans les résidus miniers submergés. Dans ce cas, les modèles théoriques ou numériques peuvent être des outils très intéressants pour estimer les flux d'OD (pour les conditions initiales et limites connues). Par conséquent, il devient nécessaire de connaître le coefficient du taux de réaction (K_r) des résidus.

D'autres travaux de laboratoire et *in situ* se sont intéressés à l'efficacité du recouvrement en eau pour contrôler le DMA en termes de comportement géochimique, en tenant compte de tous les facteurs d'influence : diffusion de l'oxygène, érosion et remise en suspension de particules et relargage des métaux. Très peu de travaux se sont intéressés aux sites de petite superficie. De plus, dans ces études, peu de cas ont porté sur des résidus hautement sulfureux (teneur en pyrite >80% par exemple) avec des quantités négligeables de minéraux neutralisants. Une étude couvrant ces deux aspects peu étudiés était aussi requise.

Le projet de recherche exposé dans le cadre de cette thèse a permis d'approfondir notre compréhension de la technique de recouvrement sur les problématiques présentées ci-dessus et jusqu'ici peu étudiées. La première partie de cette étude nous a permis de développer une approche expérimentale faisant recours à une interprétation numérique, afin d'estimer plus précisément la réactivité des résidus miniers sous l'eau et le flux de OD consommé par les résidus. Elle a aussi permis de vérifier l'influence d'une couche de matériau granulaire sur le flux diffusif à l'interface eau–résidus. Ensuite, la seconde partie a mis en évidence l'impact de diverses conditions hydrodynamiques sur l'évolution géochimique de recouvrements en eau placés au-dessus de résidus hautement sulfureux simulés au laboratoire en colonnes. Enfin, la troisième partie de l'étude a permis d'évaluer l'efficacité d'un cas réel de recouvrement en eau de petite superficie (7,7 ha) placée au-dessus de résidus fortement sulfureux en termes de stabilité chimique et physique.

Dans ce qui suit, les conclusions et recommandations spécifiques à chaque chapitre de développement de la thèse de doctorat sont présentées en détail.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

6.2 Chapitre 3

Dans ce chapitre, une procédure de mesure et d'interprétation d'un essai en cellule a permis de déterminer le coefficient du taux de réaction K_r de résidus miniers sulfureux submergés sous l'eau. Pour cela, une couche de résidus d'environ 6 cm d'épaisseur a été placée dans une cellule en plexiglas et recouverte par une couverture d'eau d'environ 2 m d'épaisseur. La cellule a été exposée à l'air, jusqu'à atteindre l'équilibre. Ensuite, des profils verticaux d'OD ont été mesurés verticalement à différents points, à intervalles de 1 mm, en utilisant une microélectrode. Ces profils ont été établis pour les résidus TA1, avec une teneur en pyrite très élevée (83%), et TA2, avec une faible teneur en pyrite (2,8%). Pour les résidus TA1, les profils ont été effectués sur deux périodes. Le coefficient K_r a été défini pour chaque matériau, en comparant le profil d'OD mesuré au profil calculé à l'aide du logiciel POLLUTEv6. Le coefficient de diffusion effective D_w a été estimé avec les équations 3-6 et 3-9. La présence d'une couche limite de diffusion (DBL) a été prise en compte dans les

simulations numériques, en utilisant la concentration en oxygène C_0 mesurée à l'interface eau–résidus comme la condition frontière supérieure au lieu de la concentration C_w mesurée dans la couverture d'eau au-dessus de la DBL.

Cette étude a démontré que la pénétration de l'OD était limitée à environ 4 mm dans les résidus TA1 et à environ 9 mm dans TA2. Au cours de la période de chaque série de mesures, une très légère variation des profils d'OD a été observée au fil du temps, ce qui indiquait que l'état d'équilibre était atteint au moment des mesures. Pour ces conditions stationnaires, les valeurs de K_r obtenues à la fin du processus itératif d'interprétation numérique à l'aide du code POLLUTEv6 étaient respectivement de 80,2 j^{-1} et 5,61 j^{-1} pour les résidus TA1 et TA2. Les flux d'OD calculés pour les conditions d'essai variaient de 608 à 758 $mg/m^2/j$ pour les résidus TA1, et de 177 à 221 $mg/m^2/j$ pour les résidus TA2. Ces deux résultats démontrent clairement que la consommation d'OD et le coefficient K_r dépendent de la teneur en sulfure du matériau : plus le matériau est sulfureux, plus l'oxygène dissous est vite consommé, et plus K_r et le flux diffusif à l'interface eau–résidu sont aussi élevés. Le coefficient K_r obtenu pour les résidus TA1 a été comparé au coefficient obtenu à partir de l'essai en flacon agité. Les résultats ont indiqué que ce dernier test surestimait K_r d'environ 20% dans le cas de TA1.

Une fois le coefficient K_r connu, l'impact d'une couche protectrice de matériau inerte placée sur les résidus TA1 a également été étudié numériquement (avec POLLUTEv6). Trois épaisseurs de couches de matériau granulaire (5, 10, et 20 cm) furent testées. La concentration en oxygène C_w de 8,5 mg/L a été appliquée à la surface de la couche de matériau inerte. Pour cette modélisation, l'effet de la DBL a été ignoré (ce qui représente le pire des scénarios). Cette étude a révélé que la mise en place de couches de matériau inerte d'épaisseurs respectives de 5, 10 et 20 cm sur les résidus conduisait respectivement à des flux d'oxygène dans les résidus de 5,2, 1,5 et 0,8 $mg/m^2/j$. En d'autres termes, l'interposition d'une couche de matériau inerte conduisait à réduire le flux d'OD vers les résidus. En effet, pour une couche de matériau inerte d'épaisseur 5 cm, le flux a diminué de 608 $mg/m^2/j$ à 5,2 $mg/m^2/j$, soit de 99%.

Cette étude a permis de déterminer de façon assez précise le coefficient du taux de réaction (K_r) de résidus miniers sulfureux submergés. Pour pousser plus loin ce type d'étude, quelques recommandations pourraient être envisagées, afin d'améliorer les résultats pour des travaux ultérieurs.

- Il serait intéressant de réaliser des mesures du coefficient K_r sur plusieurs types de résidus (avec différentes teneurs en minéraux sulfureux), afin de développer un modèle de prédiction de K_r.
- Les profils d'OD devraient être effectués à intervalles plus serrés (<1 mm), principalement dans la couche DBL et dans les résidus, afin non seulement de s'assurer de l'épaisseur précise de la DBL et de la profondeur de pénétration d_p d'OD, mais aussi de pouvoir affiner la modélisation au moment de la comparaison des courbes calculée et mesurée.
- Il serait également intéressant de développer un code numérique capable de simuler le processus complet de transport d'oxygène de l'air jusque dans les résidus sous un recouvrement en eau, en tenant compte du transfert à l'interface air–eau, de la couche DBL et de la température (qui influence la solubilité de l'oxygène dans l'eau et la concentration C_w et C_0; voir Figure 3.3). Ce code permettrait alors de déterminer plus précisément la consommation d'OD à l'interface eau–résidus à long terme (en tenant compte des fluctuations de température). Pour être complet, ce code devrait aussi tenir compte de la remise en suspension des résidus.

6.3 Chapitre 4

Ce chapitre a porté sur l'étude au laboratoire de la qualité géochimique de systèmes de recouvrements en eau composés de résidus miniers hautement sulfureux et de couvertures d'eau soumises à différentes conditions hydrodynamiques. Des essais en colonnes de laboratoire ont été utilisés à cet effet. Les résidus ont été placés au fond des colonnes et recouverts avec de l'eau déionisée. Les conditions hydrodynamiques appliquées se composaient de couvertures d'eau stagnante (colonne 1-1), stagnante avec une infiltration intermittente à la base (colonne 1-2), agitée en continu avec une remise en suspension des

résidus de 130 à 180 mg/L (colonne 2-1), aérée sans remise en suspension des résidus (colonne 2-2), agitée en permanence avec une remise en suspension des résidus autour de 3 000 mg/L (colonne 3) et enfin, une couverture d'eau agitée en continu avec une couche de sable (20 cm) placée au-dessus des résidus (colonne 4). Pour chacune des colonnes, des échantillons d'eau de la couverture et d'eau interstitielle ont été analysés mensuellement pour déterminer les changements dans les paramètres géochimiques au cours d'une période de surveillance allant de 369 à 840 jours. Les concentrations de matière en suspension et des analyses de l'interface eau–résidus à la fin des essais ont également été réalisées.

Les analyses ont montré que même sous un recouvrement en eau, il y avait oxydation des résidus miniers hautement sulfureux à l'interface eau–résidus, dans presque toutes les colonnes, à différents degrés. Les pH sont restés autour de la neutralité dans les couvertures d'eau des colonnes 1-1 et 4, alors que dans les colonnes 1-2, 2-1, 2-2 et 3, les pH ont diminué dans le temps, surtout de façon plus accentuée dans les colonnes 2-1, 2-2 et 3. Les concentrations de métaux et de sulfates étaient plus faibles dans les couvertures d'eau des colonnes 1-1, 1-2 et 4 par rapport aux colonnes 2-1, 2-2 et 3.

Dans la colonne 2-1, l'infiltration vers le bas favorisait le contact de l'OD avec les résidus miniers, conduisant ainsi à leur oxydation, à la baisse du pH, et à la production de sulfate et de métaux dissous par rapport à la couverture d'eau stagnante sans infiltration (colonne 1-1). L'aération de la couverture d'eau dans la colonne 2-2 s'est avérée moins productrice de sulfates et de métaux en comparaison à la colonne 2-1 agitée avec remise en suspension.

Les résultats de cette étude a également permis de déceler la présence de Zn comme le principal métal dissous, avec la concentration la plus élevée (en excluant le Fe) dans toutes les colonnes dans les conditions testées, alors que les résidus utilisés ne contenaient que 0,38% Zn présent dans la sphalérite sous forme libre, attachée ou incluse dans la pyrite.
Ces travaux ont aussi permis de constater que, pour des couvertures d'eau stagnante, aérée et agitée avec une faible remise en suspension de résidus (130-180 de MES), les concentrations de métaux dissous et de sulfate étaient plus élevées dans l'eau interstitielle que dans la

couverture d'eau. Ce qui représente le comportement typique de résidus frais déposés sous l'eau. Par contre, avec une couverture d'eau agitée avec une forte resuspension des résidus miniers (≈3 000 mg/L de MES; colonne 3), le cas contraire est observé. Aussi, pour les couvertures d'eau stagnante, aérée et agitée avec une faible remise en suspension, les sulfates produits étaient assez bien neutralisés. Dans le cas de la couverture agitée avec une forte remise en suspension, les minéraux neutralisants étaient épuisés après une période de suivi de 400 jours, conduisant ainsi à une augmentation des sulfates et des métaux dissous en raison de l'action combinée de l'oxydation indirecte de la pyrite par le Fe^{3+} et, éventuellement, la présence de bactéries catalysant l'oxydation de la pyrite. Dans cette colonne, il a également été montré que les particules remises en suspension étaient composées de particules plus fines que les résidus de départ (ex. : 16 % de particules en suspension de taille inférieure à 2 µm contre seulement 5% dans les résidus initiaux).

Finalement, ces travaux ont démontré que l'ajout d'une couche de matériau inerte (colonne 4) prévenait de façon significative l'oxydation des résidus miniers, ce qui a également été confirmé par la modélisation numérique au chapitre 3.

L'analyse au microscope électronique des résidus échantillonnés à l'interface eau–résidus, à la fin de la période de suivi des colonnes (après 840 jours), a montré la précipitation de minéraux secondaires composés d'oxydes de fer en plus grande quantité dans la colonne agitée avec remise en suspension. Les observations microscopiques ont aussi révélé que les résidus dans la colonne 1-1 avec couverture d'eau stagnante étaient restés très similaires aux résidus initiaux. Les modélisations géochimiques avec VMinteq ont également confirmé ces résultats.

Pour des travaux futurs dans ce type de projet, les recommandations suivantes sont proposées :

- Une modélisation géochimique de la qualité des couvertures d'eau serait intéressante pour une évaluation de la performance des couvertures d'eau à long terme.

Rapport-Gratuit.com

- Étant donné que lors d'une remise en suspension des résidus miniers sous l'eau, les particules les plus fines sont celles qui sont les plus facilement remises en suspension, une adaptation des équations de la contrainte de cisaillement critique (éq. 2-26) ou de l'estimation de la hauteur minimale du recouvrement en eau (éqs 2-27 et 2-28) pourrait être envisagée, afin de mieux déterminer ces paramètres qui, actuellement, font recours au diamètre moyen D_{50} des résidus initiaux.
- Il serait opportun de déterminer la chimie des différentes fractions de résidus submergés (granulo-chimie), pour pouvoir statuer de l'apport des particules en suspension sur le comportement géochimique de recouvrements en eau.
- Une étude approfondie de l'influence des processus biologiques (bactéries, etc.) sur l'oxydation de résidus submergés permettrait de mieux expliquer le comportement géochimique des recouvrements en eau.

6.4 Chapitre 5

Ce chapitre s'est intéressé à la stabilité chimique et physique de résidus hautement sulfureux sous un recouvrement en eau du site Don Rouyn et à la qualité des eaux souterraines autour de ce site. La méthodologie utilisée a consisté à effectuer différentes mesures *in situ* et des tests de laboratoire durant l'été et l'automne de 2008, 2009 et 2010. Plus précisément, les échantillons de résidus déposés sous l'eau ont été caractérisés; la qualité chimique des eaux de la couverture en eau, de l'effluent final et des eaux souterraines autour de la fosse a été suivie. La relation entre la remise en suspension des résidus miniers sous l'eau et les vitesses et directions des vents a aussi été examinée.

Les investigations *in situ* et au laboratoire ont montré que des eaux du recouvrement en eau et de l'effluent final au site Don Rouyn respectaient les critères exigés par la *Directive 019* sur l'industrie minière au Québec et les règlements sur les effluents des mines de métaux du Canada. En effet, le pH ainsi que les métaux sont, soit sous leurs limites de détection, soit inférieurs aux limites imposées par les réglementations canadienne et québécoise. Notons également que le Zn a été presque le seul élément à avoir des concentrations assez élevées

dans les échantillons d'eau analysés (mais heureusement en deçà des valeurs limites réglementaires). Ce constat a également été fait dans les résultats des essais en colonne au chapitre 4.

Quant aux eaux souterraines autour du recouvrement en eau du site Don Rouyn, les analyses géochimiques ont démontré que celles-ci remplissaient généralement les critères de contamination des eaux souterraines au Québec et les lignes directrices canadiennes pour la qualité de l'eau. De plus, les niveaux d'eau dans les piézomètres placés dans les environs du site étaient plus élevés que le niveau au seuil déversant, qui contrôle le niveau d'eau du recouvrement en eau. En outre, les faciès hydro-chimiques déterminés à partir du diagramme de Piper confirment que les facies des eaux souterraines sont différents de ceux des eaux de la couverture aqueuse. Les eaux souterraines sont en général bicarbonatées, alors que les eaux du recouvrement en eau sont des eaux sulfatées. Ces résultats ont en définitive indiqué que, dans les conditions actuelles du site, les eaux souterraines environnantes ne devraient pas être affectées par l'eau de la couverture aqueuse; le recouvrement en eau agissait au contraire comme un piège hydraulique qui capte les eaux souterraines.

Un des objectifs de cette étude était de déterminer la présence de matière en suspension (MES) dans la couverture d'eau et également d'en définir les causes, en vérifiant la relation entre les MES et les vitesses de vent. Les résultats de mesure de MES par filtration et par mesure continue à l'aide d'une sonde ont démontré qu'il y a avait les particules en suspension au recouvrement en eau du site Don Rouyn. Toutefois, les concentrations mesurées étaient généralement en dessous des limites réglementaires. Ces MES n'affectent heureusement pas la qualité chimique des eaux du recouvrement en eau. Aucune corrélation n'a été observée ente les MES et les vitesses des vents, car les MES étaient présentes à toutes les vitesses des vents.

Les calculs théoriques ont aussi été effectués, afin de déterminer les conditions de remise en suspension des résidus au site Don Rouyn. Rappelons qu'il y a érosion et remise en suspension des particules lorsque la contrainte de cisaillement totale (dépend de la vitesse des

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

vents, du fetch et de l'épaisseur du recouvrement en eau) est supérieure à la contrainte de cisaillement critique (dépend des propriétés physiques des résidus). Les deux paramètres ont donc été déterminés pour ce site pour les hauteurs minimale (0,81 m), moyenne (1,16 m) et de design (1,0 m) du recouvrement en eau. Les résultats indiquaient que, pour des épaisseurs d'eau du recouvrement respectives de 0,81, 1 et 1,16 m, il y a avait remise en suspension des particules à partir des vitesses de vents respectives de 10 m/s, 11 m/s et 12 m/s. Cependant, les mesures *in situ* de MES ont permis de constater la présence des MES à toutes les intensités de vents particulièrement aux vitesses de vent compris entre 1 et 10 m/s. Cette étude a de ce fait permis de remarquer que les calculs théoriques de détermination des conditions de remise en suspension ne semblaient pas être en accord avec les résultats des mesures expérimentales pour ce site particulier.

Pour des travaux ultérieurs de cette étude ou pour des études semblables, nous recommandons les points suivants :

- Pour pousser plus loin la corrélation entre les MES et les vitesses des vents, il serait intéressant d'installer plusieurs sondes de mesure en continu des MES à différents endroits de la couverture aqueuse et, également, d'installer une station météorologique directement au-dessus de la couverture aqueuse. Ceci permettrait d'obtenir des valeurs réelles de vitesses de vent qui s'appliquent sur la couverture aqueuse et, ainsi, de confirmer la relation entre les MES et les vitesses des vents.
- Un essai de traçage pourrait être envisagé, afin de confirmer définitivement la connexion hydraulique entre les eaux souterraines et les eaux du recouvrement en eau.
- Une étude de la faune existante dans le recouvrement en eau de Don Rouyn pourrait être mise à contribution pour vérifier la présence d'organismes vivants, qui pourraient éventuellement remettre en suspension les résidus sous l'eau lors de leur déplacement.
- L'étude de l'interface eau–résidus n'a pas été abordée dans cette étude. Une analyse de cette interface pourrait être effectuée, afin d'examiner la présence probable d'un biofilm et, ainsi, d'évaluer son rôle dans l'efficacité du recouvrement en eau au site

Don Rouyn, comme cela a pu être fait à la mine Louvicourt (Vigneault, Kwong et Warren, 2007).

6.5 Dernières remarques

L'originalité de cette étude est d'abord justifiée par le développement d'une nouvelle méthode de laboratoire permettant de déterminer le coefficient du taux de réaction K_r de résidus miniers sulfureux submergés à partir du profil vertical d'oxygène dissous mesuré dans des résidus miniers recouverts par une couche d'eau. À la connaissance de l'auteur, aucune étude du genre n'avait été réalisée jusqu'ici. L'interprétation des mesures était la phase la plus complexe qui, finalement, a dictée la méthodologie définitive après avoir essayé plusieurs approches. Ce fut aussi l'occasion de définir les paramètres des lois de Fick de façon plus explicite. La flexibilité que confère la connaissance de K_r a été démontrée en réalisant des simulations numériques, pour évaluer dans quelle mesure une couche de matériau inerte placée sur les résidus peut considérablement réduire le flux, particulièrement pour des résidus hautement sulfureux. Un tel exercice est impossible sans la valeur de K_r.

L'originalité de cette étude provient aussi non seulement du type de résidus miniers utilisés, mais aussi des particularités du site d'étude choisi. En effet, les résidus miniers utilisés pour simuler en colonnes l'impact de différentes conditions hydrodynamiques sur le comportement de recouvrement en eau étaient fortement sulfureux (> 80 % de pyrite), alors que la majorité des études existantes ont porté sur les matériaux moins sulfureux que ceux étudiés. Enfin, le site d'étude choisi se distingue des autres sites de déposition subaquatique connus dans la littérature à cause de sa topographie (une fosse), de sa petite superficie (seulement 7,7 ha) et de la teneur en minéraux sulfureux des résidus submergés (> 80 de pyrite). Cette étude a permis de comprendre que les calculs théoriques jusqu'alors utilisés pour définir les conditions de remise en suspension des résidus miniers sous l'eau peuvent ne s'adaptent pas à tous les sites de recouvrement en eau, particulièrement dans le cas du site Don Rouyn. Autrement dit, l'érosion et la remise en suspension des résidus sous l'eau peuvent être contrôlées par d'autres facteurs autres que l'effet des vents.

Cette étude a démontré que certains aspects de la technique de recouvrement en eau nécessitent d'être encore investigués. En effet, elle a montré que les particules les plus aisément remises en suspension sont les particules les plus fines, alors que certains paramètres qui contrôlent ce processus sont exprimés en fonction du diamètre moyen D_{50} des particules de tous les résidus. Par cette observation, cette étude fait une ouverture sur la possibilité d'amélioration des outils prédictifs de la remise en suspension, en adaptant par exemple l'équation qui définit la contrainte de cisaillement critique. Cette étude a également permis de recommander l'ajout d'une couche de matériau inerte au-dessus des résidus hautement sulfureux, pour limiter l'oxydation des résidus miniers et améliorer l'efficacité du recouvrement en eau.

Par les faits susmentionnés, cette étude a apporté une contribution scientifique dans le domaine de la déposition subaquatique de résidus miniers et particulièrement ceux hautement sulfureux. La compilation des différentes contributions apportées par cette étude et des recommandations proposées pourrait permettre de proposer une méthode de design des couvertures aqueuses et d'évaluer leur performance à long terme.

6.6 Références

Les références citées dans cette partie ont été déjà présentées dans les différents chapitres dont les conclusions et recommandations sont présentées ci-dessus.

APPENDIX A

DÉVELOPPEMENT DE LA SECONDE LOI DE FICK

Cet appendice présente la dérivation de l'équation 3-2 du chapitre 3. Les unités des paramètres adoptés ici sont les mêmes que celles utilisées à travers la thèse.

Si la concentration d'oxygène dissous C dans l'eau interstitielle des résidus submergés est exprimée en mg/L, la masse d'oxygène dissous (OD) qui diffuse par unité de surface et par unité de temps est donnée par la première loi de Fick (en 1-D):

A-1 $$F = -nD_W \frac{dC}{dz} \qquad (2.6)$$

Où F est en (mg/m^2/d), n est la porosité (-) , D_w est le coefficient de diffusion de OD à travers la phase liquide des résidus (en cm^2/d) et z et la profondeur (en cm).

La 2e loi de Fick présenté au chapitre 3 se développe à partir d'un volume élémentaire de résidus saturés (voir Figure A.1) dont les côtés mesurent respectivement dx, dy et dz pour un volume total de (dx) (dy) (dz). Tel que représenté sur le volume élémentaire, la diffusion se fait dans la direction *z* avec un flux F tel que défini dans l'équation A-1.

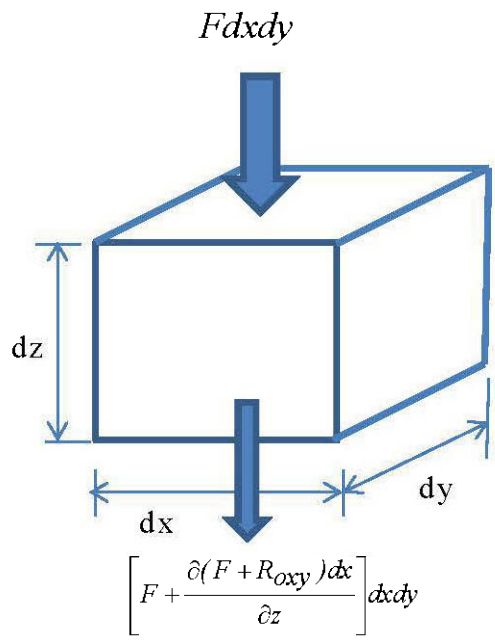


Figure A.1 Volume élémentaire de résidus saturés en eau.

La masse d'OD qui entre à travers la section dxdy par unité de temps est donnée par

[A-2] $M_{in} = Fdxdy$.

La masse d'OD qui sort par unité de temps à la distance Δz est donnée par :

[A-3] $M_{out} = \left[F + \frac{\partial(F + R_{oxy})dx}{\partial z}\right]dxdy$

où R_{oxy} représente la masse d'OD consommée par l'oxydation de la pyrite par unité de surface et par unité de temps.

L'accumulation (ou perte) de masse d'OD dM dans le volume élémentaire par unité de temps s'exprime comme suit comme suit:

[A-4] $$dM = -\frac{\partial(F + R_{oxy})dz}{\partial z}dxdy$$

D'autre part, le volume d'eau contenu dans le volume élémentaire de résidus est ndxdydz. La masse d'oxygène dissous contenu dans ce volume d'eau est nCdxdydz. La variation de la masse d'OD contenue dans ce volume élémentaire par unité de temps peut être donnée par :

[A-5] $$dM^* = \frac{\partial(nCdxdydz)}{\partial t}$$

La loi de la conservation de masse exige que les termes définis dans l'équation A-4 et A-5 soient égaux. On a ainsi :

[A-6] $$\frac{\partial(nCdxdydz)}{\partial t} = -\frac{\partial(F + R_{oxy})dz}{\partial z}dxdy$$

En substituant F par l'équation A-1, on obtient :

[A-7] $$\frac{\partial(nC)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}(nD_W \frac{\partial C}{\partial z}) - \frac{\partial R_{oxy}}{\partial z}$$

L'équation A-7 correspond à l'équation 3-2 du chap. 3.

APPENDIX B

RÉSULTATS COMPLÉMENTAIRES DES ESSAIS EN COLONNE

Les figures B.1 à B.5 montrent les variations temporelles de Eh, CE, Cu, Fe et Ni dissous dans les échantillons d'eau du port 3, située à 2 cm au-dessus l'interface eau–résidus pour les colonnes 1-1, 1-2 et 3, et à 5 cm pour les colonnes 2-1 et 2-2, et à 70 cm au-dessus de l'interface de sable–résidus de la colonne 4.

La figure B.6 montre, quant à elle, l'évolution temporelle de l'oxygène dissous (OD) dans les échantillons d'eau à 2 cm au-dessus de l'interface eau–résidus pour toutes les colonnes.

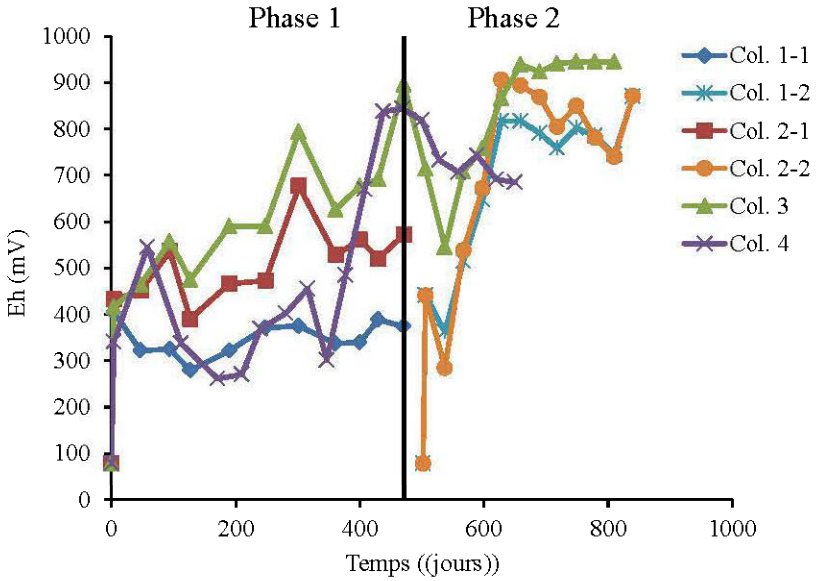


Figure B.1 Évolution temporelle du potentiel d'oxydoréduction (Eh) dans les couvertures d'eau des colonnes 1 à 4.

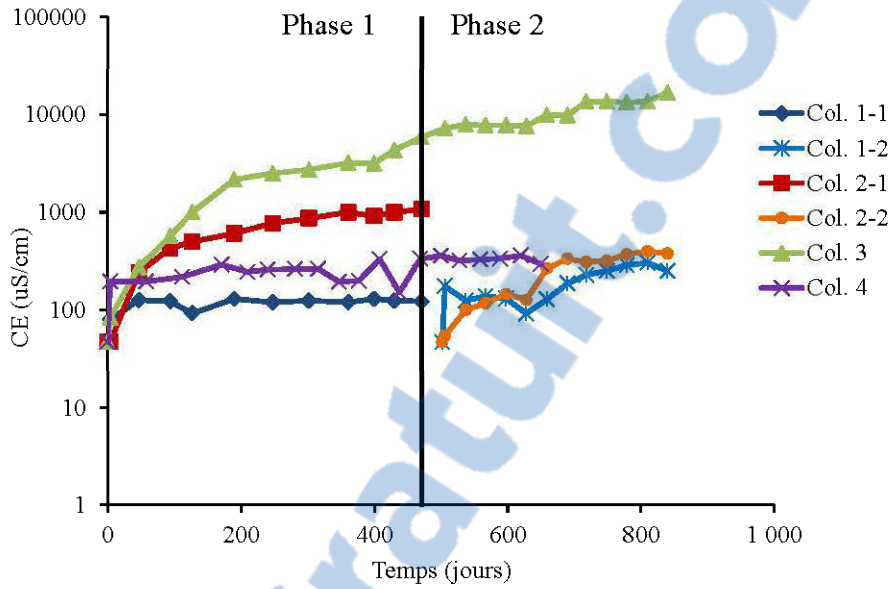


Figure B.2 Évolution temporelle de la conductivité hydraulique (CE) dans les couvertures d'eau des colonnes 1 à 4.

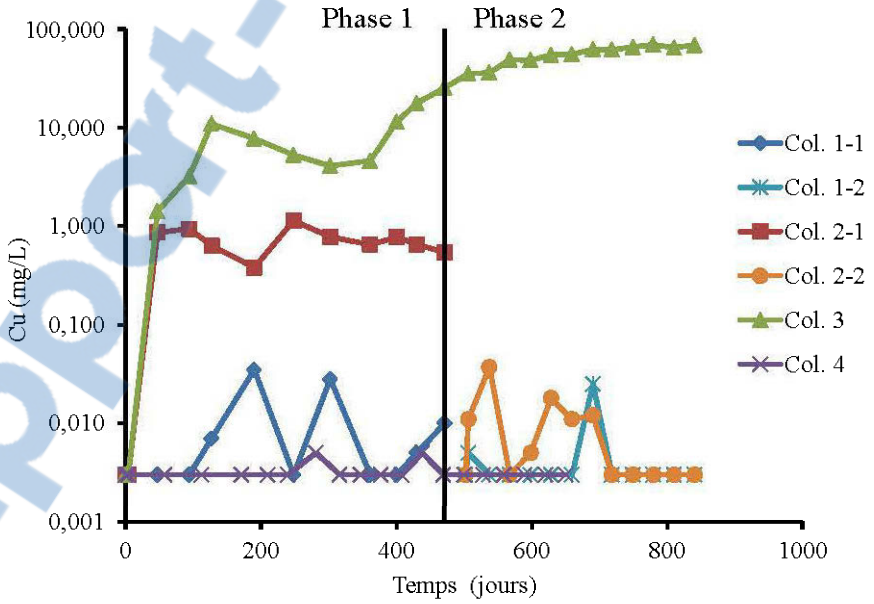


Figure B.3 Évolution temporelle de Cu dans les couvertures d'eau des colonnes 1 à 4.

Rapport-Gratuit.com

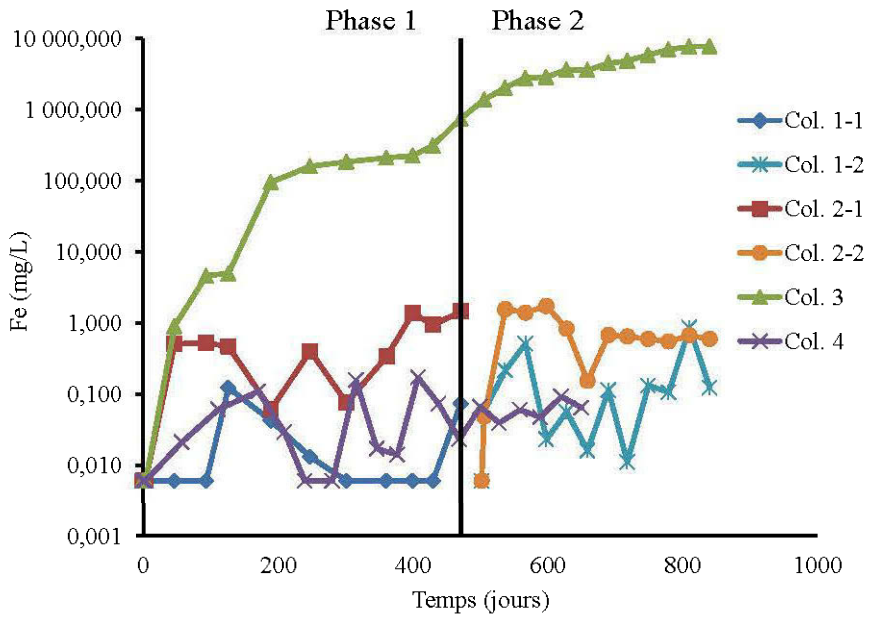


Figure B.4 Évolution temporelle du Fe dans les couvertures d'eau des colonnes 1 à 4.

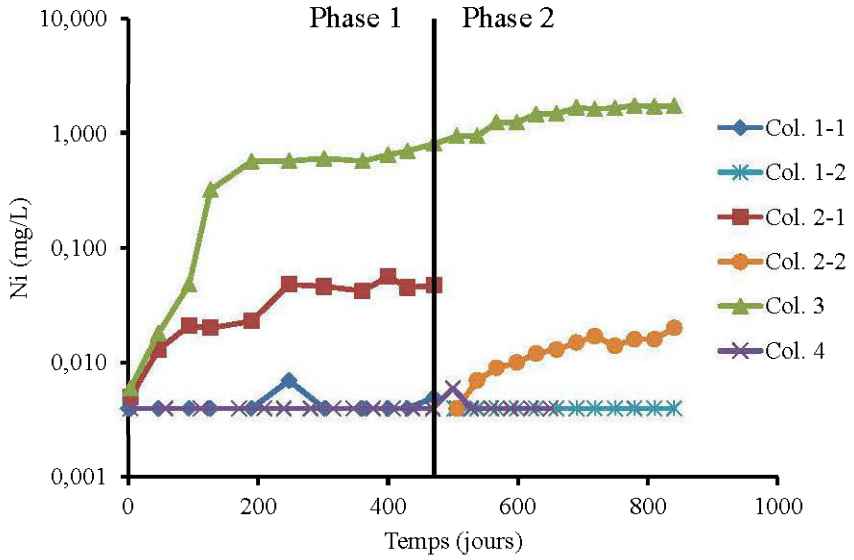


Figure B.5 Évolution temporelle du Ni dans les couvertures d'eau des colonnes 1 à 4.

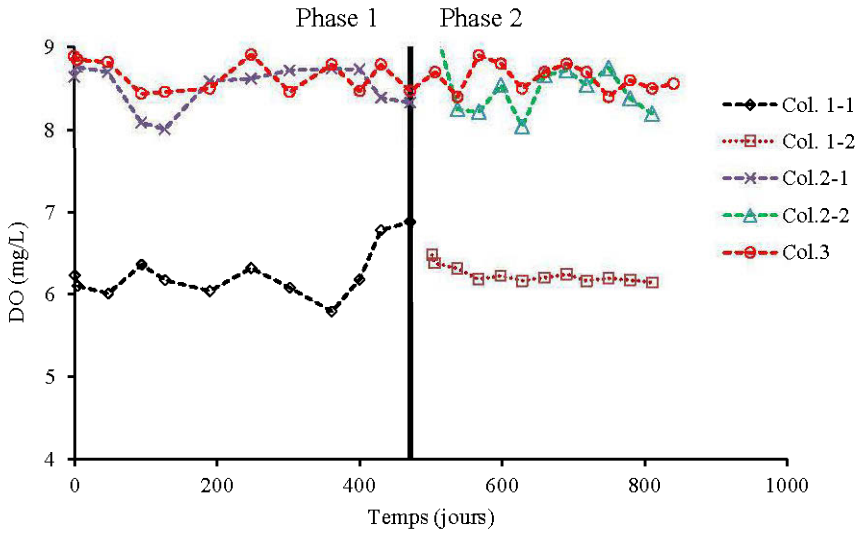


Figure B.6 Évolution temporelle d'OD dans la couverture d'eau des colonnes 1-1 et 1-2.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

APPENDIX C

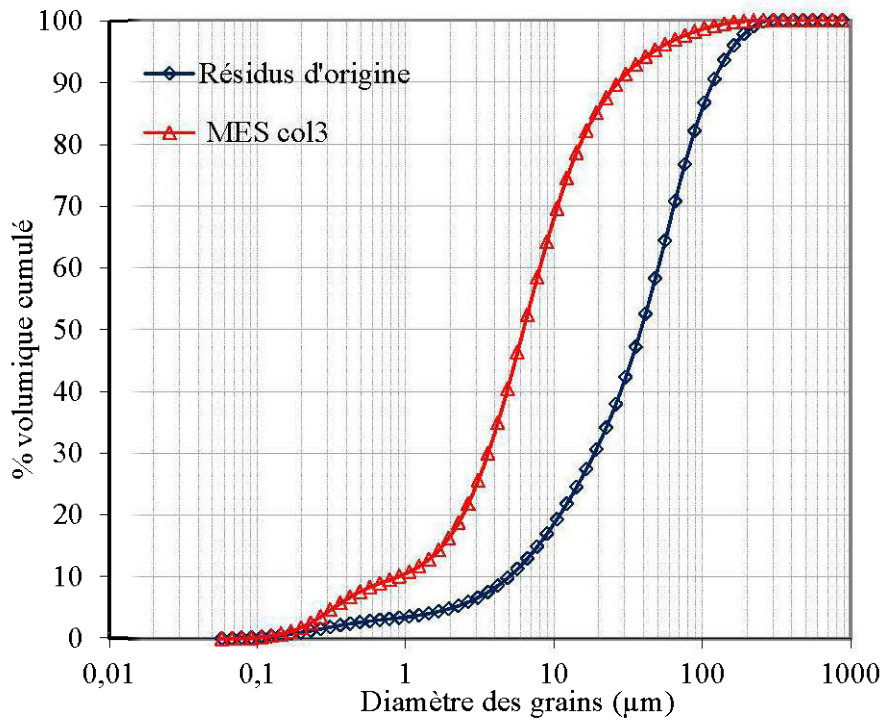
CARACTÉRISATION DES MATIÈRES EN SUSPENSIONS DE LA COLONNE 3

La couverture d'eau de la colonne 3 a été soumise à une agitation de 87 RPM, ce qui a eu pour conséquence de remettre en suspension des résidus miniers déposés sous l'eau. Après 471 jours de suivi, un volume d'eau (150 mL) a été prélevé, la concentration des matières en suspension (MES) a été déterminée suivant la norme ASTM D3977 - 97 (2007) ou CEAEQ (2004). La masse sèche de MES a été soumise à une caractérisation physique, minéralogique et chimique.

La granulométrie est obtenue avec un granulomètre laser Malvern Mastersizer qui fournit une distribution granulométrique volumique pour des diamètres compris entre 0,05 et 900 µm. Les procédures de cette technique sont présentées dans Merkus (2009). Pour l'analyse élémentaire des échantillons solides, une digestion est réalisée au préalable par l'ajout d'acide nitrique concentré, de brome liquide, d'acide fluorhydrique concentré et d'acide chlorhydrique, le tout chauffé. Par la suite, la solution est évaporée et les sels sont dissouts dans de l'acide chlorhydrique à 10%. La solution ainsi obtenue est enfin analysée par ICP-AES (Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry avec une précision relative de 5%; Villeneuve 2004) pour les 22 éléments suivants : Aluminium (Al), arsenic (As), Baryum (Ba), Bismuth (Bi), Calcium (Ca), Cadmium (Cd), Cobalt (Co), Chrome (Cr), Cuivre (Cu), Fer total (Fe total), Magnésium (Mg), Manganèse (Mn), Molybdène (Mo), Sodium (Na), Nickel (Ni), Plomb (Pb), Soufre total (S), Antimoine (Sb), Sélénium (Se), Silicium (Si), Titane (Ti) et Zinc (Zn).

Les analyses de diffraction aux rayons X (DRX) ont aussi été réalisées avec un appareil Bruker AXS D8 Advance en mode θ/2θ pour les angles de diffraction de 5° à 70° avec une relative précision of 0,5%). L'identification des phases minérales est obtenue à l'aide du logiciel EVA et la quantification de celles-ci est obtenue par le logiciel TOPAS, tous deux de la compagnie Bruker AXS.

Les résultats de l'analyse granulométrique, minérale sont présentés dans les figures C.1 et C.2 ceux de l'analyse élémentaire au tableau C.1



Distribution granulométrique des MES de la colonne 3 après 471 jours de suivi.

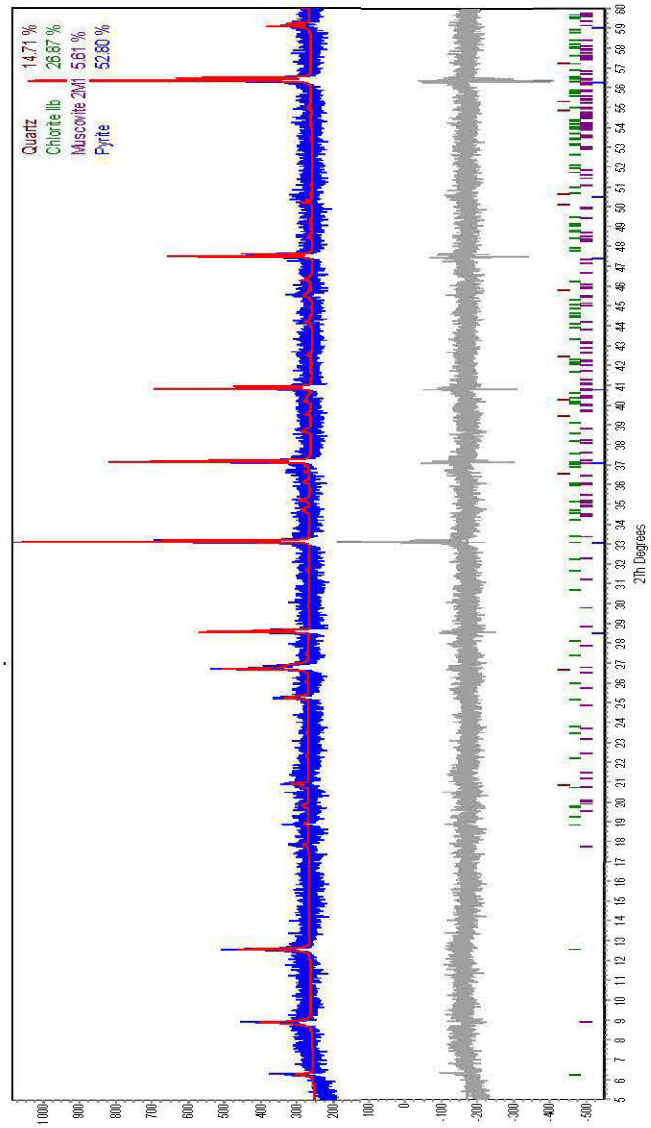


Figure C.2 Résultats de diffraction aux rayons X des MES de la colonne 3 après 471 jours.

Tableau C.1 Analyse élémentaire des MES de la colonne 3 après 471 jours de suivi (LDM : limite de détection des métaux)

Éléments	LDM	MES2
Al	ND[x]	3,160
As*	ND	0,029
Ba	ND	0,026
Be*	ND	0,000
Bi	ND	0,000
Ca	ND	0,078
Cd	ND	0,001
Co	ND	0,001
Cr	ND	0,056
Cu	ND	0,074
Fe	ND	43,900
Mg	ND	0,544
Mn	ND	0,018
Mo	ND	0,003
Ni	ND	0,020
Pb	ND	0,080
S	ND	26,200
Sb	ND	0,010
Se*	ND	0,000
Sn	ND	0,000
Ti	ND	0,046
Zn	ND	0,217

[x]ND : Non Donné

*: La méthode de digestion utilisée peut volatiliser ces éléments (As, Be, Se)

APPENDIX D

RÉSULTATS DE L'ANALYSE DE L'INTERFACE EAU–RÉSIDUS À LA FIN DES ESSAIS EN COLONNES.

Cette section décrit les observations microscopiques de l'analyse de l'interface eau–résidus à la fin des essais en colonne. Des sections polies des échantillons de résidus prélevés à l'interface eau–résidus de chaque colonne ont d'abord été préparées et observées au microscope optique modèle Nikon optiphot2-Pol, ensuite au MEB et enfin les images obtenues ont été analysées au spectromètre EDS (Energy Dispersive X-ray).

La Figure D.1 montre une comparaison générale entre le résidu minier original et le même résidu provenant des différentes colonnes après leur démantèlement au microscope optique. Le résidu original frais contient une pyrite sous forme de minéraux libres et ne montrant aucun signe d'altération (Figure D.1-a). Cependant, les résidus échantillonnés dans les différentes colonnes montrent des signes d'oxydations évidents dont le degré n'est pas le même d'une colonne à l'autre (Figure D.1-b,c,d,f). En effet, les observations au microscope optique ont permis de relever différents signes d'oxydation entre les différentes colonnes et qui se résument comme suite:

Colonne 1-1 : l'échantillon de cette colonne contient les agglomérats, mais en petite quantité (<1% surfacique) (Figure D.1-b). Les observations microscopiques de l'échantillon révèlent que le résidu minier issu de la colonne 1-1 ressemble fortement au résidu frais. Ceci indique que les résidus de la colonne 1-1 ont très peu d'oxydation.

Colonne 1-2 : Les résidus présentent également des agrégats (Figure D.1-c), mais dans ceux-ci, les minéraux sont enrobés par une croute d'oxydes de fer contrairement à la colonne 1 où les grains sont seulement cimentés entre eux, mais non enrobés d'oxydes de fer (Figure D.2-b), ou très faiblement enrobés (Figure D.2-a).

Colonne 2-1 : Les résidus dans la colonne 2-1 montrent une oxydation très prononcée cde même que ceux de la colonne 3 (Figure D.1-d). Les oxydes de fer sont soit sous forme de matrice qui soudent les particules minérales en agrégats ou sous forme de croutes et concrétions.

Colonne 2-2 : La moitié de l'échantillon est constitué par des agglomérats de taille variant de 100 à 500 µm. Ces agglomérats sont constitués par les plus petites particules minérales de l'échantillon et sont soudés par des oxydes de fer (Figure D.1-e, Figure D.2-d).

Colonne 3 : La pyrite présente des signes très évidents de corrosion. En fait, les résidus de la colonne 3 semblent avoir subi une forte oxydation. En effet, les résidus contiennent une grande quantité de croutes d'oxydes de fer, qui ont une épaisseur atteignant 100 µm (Figure D.2-e à i).

De manière générale, les résidus dans les colonnes 2-1 et 3 sont ceux qui ont connu la plus grande oxydation. La pyrite montre des signes de corrosions très évidentes. Dans ces deux colonnes, il y a beaucoup de croutes d'oxydes de fer et d'agglomérats où les minéraux sont complètement enrobés de minéraux de précipitation secondaires (Figure D.2-c et Figure D.2-eà i). Dans les colonnes 1-1 et 1-2, les particules minérales (pyrite, quartz et silicates) soudées en agrégats ne sont pas enrobées par les oxydes de fer (Figure D.2-a et b). La colonne 1-1 parait comme celle qui a connu la plus faible oxydation par rapport à toutes les colonnes.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

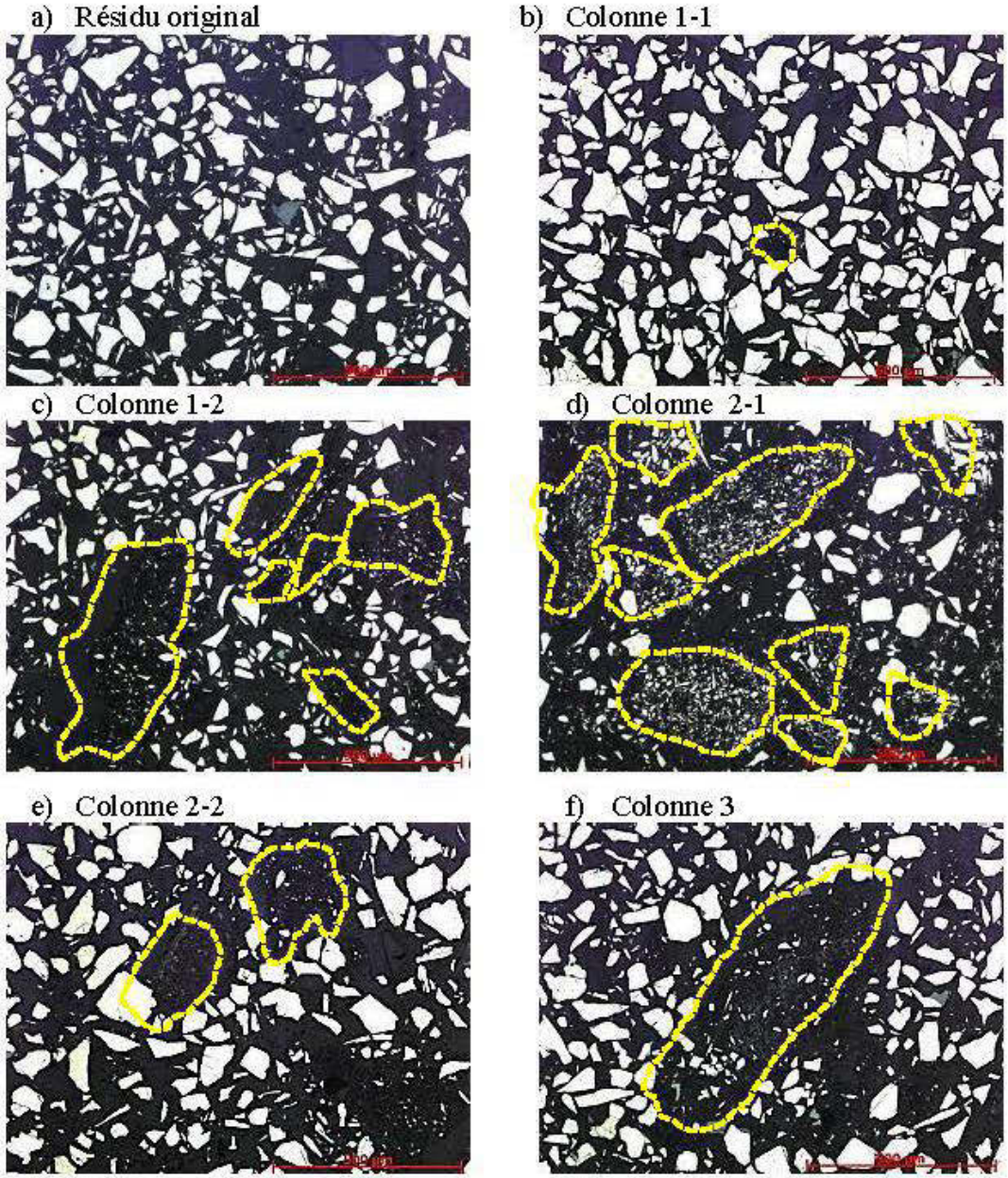


Figure D.1. Images de microscopie optique montrant une vue d'ensemble des six colonnes.

Les analyses chimiques ponctuelles faites par le spectromètre de masse du microscope électronique sur les minéraux de précipitation secondaire issus de l'oxydation de la pyrite des différentes colonnes révèlent qu'il s'agit de manière générale d'oxyde de fer comme an tablean D.1. La stœchiométrie de ces phases minérales n'a pas permis leur identification. Le classement du degré d'oxydation des colonnes selon les observations microscopes est le suivant :

Colonne 3 > colonne 2-1 > colonne 2-2 > colonne 1-2 > colonne 1-1

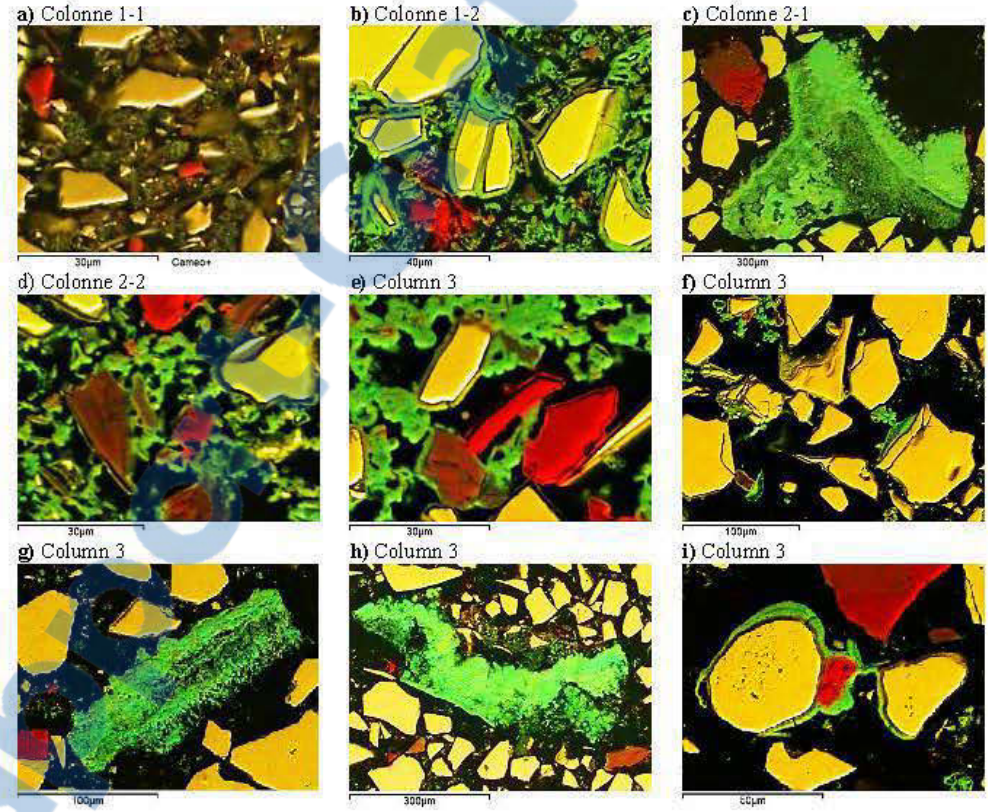


Figure D.2 Images de microscopie électronique montrant l'aspect détaillé de l'oxydation de la pyrite.

Rapport-Gratuit.com

Tableau D.1 Analyses chimiques ponctuelles au spectromètre de masse du microscope électronique

Colonne	O	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Fe	Cu	Zn
	42,4			1,5	1,57	4,8			48,87	0,86	
1-1	36,07	0,46		2	2,23	14,45			43,45	0,71	0,65
	25,41	0,77		5,87	6,9	22,83	1,34		36,87		
	26,6	0,56		0,57	0,78	27,63	0,21		43,65		
1-2	40,51	1,69		0,81	0,91	10,07	0,56		45,44		
	46,86	0,53	0,47	2,56	3,24	1,25	0,46		44,09		0,53
	34,25				0,42	5,03			58,72	1,58	
2-1	24,75			0,64	1,68	9,64			61,01	1,05	1,23
	34,34	0,57		0,77	2,17	8,12			54,03		
	35,90			2,08	5,05	5,60		5,76	44,50	1,12	
2-2	43,74			0,59	2,10	2,77			49,87	0,41	0,53
	45,15	0,47	0,00	4,56	5,52	2,37	1,54	0,00	40,39	0,00	0,00
	47,29	0,73		3,42	3,73	1,47	0,56		42,28	0,53	
3	41,99				0,47	0,83			56,71		
	41,43				0,8	0,71			54,75		2,31

APPENDIX E

CORRÉLATION ENTRE LES CONCENTRATIONS ET LES DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DES MATIÈRES EN SUSPENSION

Cette étude a pour objectif de développer une nouvelle approche pour estimer le diamètre caractéristique représentatif des résidus miniers lors de l'érosion et de la remise en suspension de ces résidus miniers au laboratoire. La procédure proposée vise à utiliser un système de remise en suspension qui permettra de simuler la remise en suspension des résidus miniers suivie de la détermination des concentrations des particules en suspension et de leur caractérisation granulométrique au granulomètre Laser

E.1 Caractérisation des matériaux

Des échantillons des résidus Gallen ont été caractérisés au granulomètre Laser afin de déterminer leur granulométrie initiale. La courbe granulométrique et les paramètres caractéristiques des résidus sont présentés à la Figure E.1 et au Tableau E.1. On constate que les résidus Gallen sont composés de 84% de particules de taille inférieure à 80 μm et 5 % de taille inférieure à 2 μm. Le coefficients d'uniformité (C_u) est compris entre 5 et 20, ce qui signifie que la granulométrie est semi-étalée. Ces résultats suggèrent que ces résidus ont une granulométrie hétérogène, ils sont fins et donc plus susceptibles de se remettre en suspension dans un premier temps.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

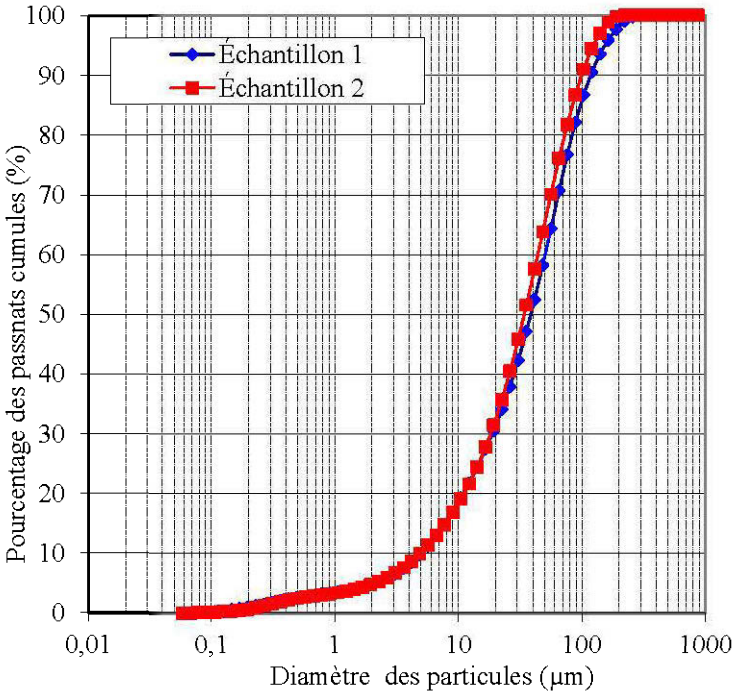


Figure E.1 Courbes granulométriques des résidus de Don Rouyn.

Tableau E.1 Paramètres caractéristiques des résidus

	Échantillon 1	Échantillon 2
Passant tamis 80µm (%)	76	84
Passant tamis 2 µm (%)	5	5
Cu, D_{60}/D_{10}	10,16	8,99
Cc, $D_{30}^2/D_{60}*D_{10}$	1,40	1,53
D_{10}	4,98	4,90
D_{20}	10,96	11,08
D_{30}	18,79	18,22
D_{40}	28,21	25,82
D_{50}	38,68	34,22
D_{60}	50,53	44,10
D_{70}	64,46	56,15
D_{80}	83,98	72,97
D_{90}	118,44	100,19

E.2 Montage du système de mesures et simulation de la remise en suspension des MES

Le système de simulation de la remise en suspension des particules solides se compose d'une chaudière de 27 cm de diamètre et de 31 cm de hauteur, d'un agitateur monté sur un support, d'une pompe péristaltique et de bouteilles en HDPE. Une vue d'ensemble du système de mesure est présentée à la Fgure E.2. Une épaisseur de 4 à 5 cm de résidus est mise en place dans la chaudière et une hauteur de 20 cm d'eau est ajoutée. La chaudière est laissée au repos pendant une journée pour permettre la décantation. L'agitateur est ensuite positionné à environ 2 cm à 3 cm au-dessus des résidus. Trois vitesses de remise en suspension soit V1 (50 RPM), V2 (100 RPM) et V3 (200 RPM) correspondant respectivement à la vitesse faible, moyenne et maximale sont définies. Une fois que l'eau surnageant est devenue claire, la première vitesse est activée et après 10 min de marche, de l'eau contenant les particules remises en suspension est prélevée à l'aide d'une pompe péristaltique et déverser dans des bouteilles en HDPE (Figure E.2) pour la détermination des MES. Cet exercice est répété pour chaque vitesse d'agitation.

E.3 Détermination des concentrations de MES et analyse granulométrique

Après chaque prélèvement d'eau suivant la vitesse d'agitation, l'eau est filtrée et remise dans la chaudière avant de passer au second prélèvement. Les échantillons d'eau sont filtrés par filtration à 0,45 µm d'un volume d'eau connu (Figure E.3). La concentration en MES est obtenue par la différence de masse entre le filtre pesé avant la filtration et ce même filtre pesé après filtration et séchage. Les échantillons de résidus secs sont conservés dans des petits sachets en plastique destinés à cet effet. Ils sont soumis à l'analyse granulométrique Laser pour la détermination de la granulométrie et des paramètres caractéristiques des courbes granulométriques pour chaque vitesse d'agitation de l'échantillon. La granulométrie a été réalisée avec le granulomètre Laser Malvern Mastersizer.

Figure E.2 Photo du système de simulation de la mesure de la MES.

Figure E.3 Photo de la filtration à l'aide d'un filtre de 0,45 µm.

E.4 Résultats et interprétation

E.4.1Concentration des MES

Les concentrations de MES obtenues aux différentes vitesses d'agitation sont présentées au tableau E.2.

Tableau E.2 Concentration des MES des résidus

Échantillon	Vitesse (RPM)	Masse (nacelle + filtre mg)	Masse Nacelle+ filtre+solide (mg)	Volume d'eau filtré (L	Concentration MES (mg/l)
Don-Rouyn MES1	50	4100	4760	4	3735
Don-Rouyn MES2	100	4100	6610	4	5167
Don-Rouyn MES3	200	4100	7900	1,5	5585

E.4.2 Granulométrie des MES

Les distributions granulométriques de MES ont été déterminées pour chaque vitesse d'agitation. Les courbes granulométriques ont été comparées à celle des échantillons non remis en suspension. Les courbes granulométriques sont présentées à la Figure E.4 et les paramètres caractéristiques sont au Tableau E.3. L'analyse granulométrique a montré les résultats suivants :

- 85 à 96% des particules sont de taille inférieure à 80 µm et 7 à 10% sont de taille inférieure à 2 µm. Alors que, pour le résidu original non remis en suspension, 76 à 84% sont de taille inférieure à 80 µm et 5% de taille inférieure à 2 µm.
- On constate aussi que lorsque les résidus sont remis en suspension, les pourcentages de particules très fines, soit, les passants au tamis de 2 µm sont plus élevés à la vitesse d'agitation de 50 RPM par rapport à la vitesse de 100 et 200 RPM. Autrement dit, la portion de particules de la taille très fine (inférieure à 2 µm) est plus élevée à faible vitesse d'agitation, mais lorsqu'on passe à des vitesses plus élevées, cette portion diminue et laisse place à la portion de la taille un peu moins fine. Par exemple, à 50 RPM, on a 10% de particule de la taille inférieure à 2 µm et 94 % de particule inférieure à 80 µm. À 100 RPM, on a 8% de particules de la taille inférieure à 2 µm. Ces résultats suggèrent que lorsqu'il y a remise en suspension des résidus, les premières particules à se mettre en suspension sont les particules les plus fines.

- Les coefficients d'uniformité (C_u) sont compris entre 5 et 20, ce qui signifie que la granulométrie est semi-étalée. Les coefficients de courbure (C_c) quant à eux sont beaucoup plus proches de 1 que de 3, ce qui indique que les courbes granulométriques sont quasi-linéaires entre le D_{60} et le D_{10}.

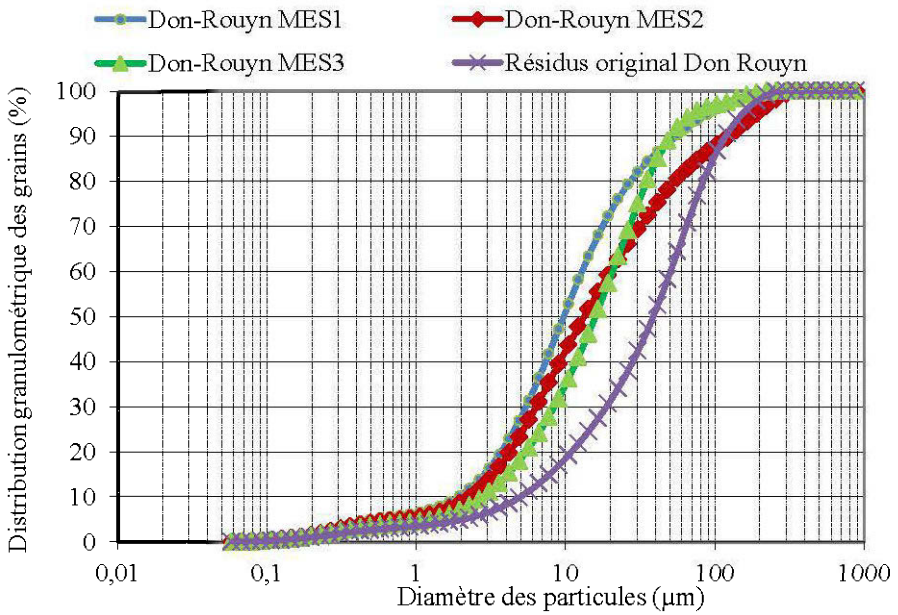


Figure E.4 Comparaison des courbes granulométriques des résidus de Don-Rouyn sans remise en suspension et des MES des résidus de Don-Rouyn.

Tableau E.3 paramètres caractéristiques des échantillons de résidus

	Passant au tamis de 80 µm (%)	Passant au tamis de 2 µm (%)	C_u	C_c	D_{10} (µm)	D_{50}(µm)	D_{60}(µm)	D_{90}(µm)
Don-Rouyn MES1	94	10	6,76	1,20	1,91	9,74	12,93	55,43
Don-Rouyn MES2	85	8	8,74	0,88	2,30	13,38	20,13	124,88
Don-Rouyn MES3	96	7	7,41	1,22	2,80	15,87	20,74	51,17

E.5 Conclusion

Les résultats de la simulation de la remise en suspension des résidus au laboratoire ont montré que lors de l'érosion et de la remise en suspension des résidus, les particules les plus fines sont les premières à être en suspension. Les autres tailles de particule se remettent en suspension plus tard lorsque la vitesse d'agitation devient plus grande. À partir de ce résultat, on peut émettre l'hypothèse suivante : lors de l'érosion et de la remise en suspension des résidus, la contrainte de cisaillement critique pourrait être estimée en tenant compte du diamètre des grains les plus remis en suspension suivant la vitesse de remise en suspension pendant la période de remise en suspension. Autrement dit, chaque contrainte de cisaillement critique devrait être spécifique pour une vitesse donnée qui déterminerait le diamètre des grains susceptible de se mettre en suspension.

APPENDIX F

ÉVALUATION QUALITATIVE DE L'INFLUENCE DES PROCESSUS CHIMIQUES ET BIOLOGIQUES SUR L'OXYDATION DES SULFURES DANS DEUX ÉCHANTILLONS DE RÉSIDUS MINIERS

L'évaluation qualitative de l'influence des processus chimiques et biologiques sur l'oxydation des sulfures a été réalisée par l'École Polytechnique de Montréal sur deux échantillons (U 4861 et U 4865) des résidus miniers qui ont été pour les essais en colonne.
L'évaluation qualitative s'est faite selon la méthode développée par Zagury et al. (1997). Cette méthode consiste à laisser les résidus miniers en incubation dans une solution dont les conditions sont idéales pour la prolifération de chaque populations bactériennes, sur un agitateur rotatif pendant 3 à 4 semaines à 23 ± 2ºC. Durant cette période, un suivi du pH et du potentiel d'oxydoréduction (Eh) est effectué pour des résidus non stérilisés et pour des résidus stérilisés utilisés comme témoins (stérilisation par radiation gamma à une dose de 32-33,6 kGy) . Une comparaison du comportement des échantillons non stérilisés et des échantillons stérilisés permet alors d'effectuer une caractérisation qualitative de l'activité bactérienne (Pepin, 2008).

Les Figures F.1 à F.8 présentent les résultats obtenus sur une durée de 24 jours, pendant laquelle des mesures de pH et de POR (potentiel d'oxydo-réduction) ont été pris à chaque 2 ou 3 jours. Chaque graphique contient deux courbes dont la première (en noir), qui a été tracée à partir de résultats (moyenne des deux réplicas) sur l'échantillon non-stérilisé et la deuxième (en bleu), qui a été tracée à partir des résultats (un seul réplica) sur le témoin stérilisé.

Les résultats des tests d'évaluation qualitative de l'influence des processus chimiques et biologiques sur l'oxydation des sulfures montrent que les bactéries sulfo-oxydantes acidophiles (Figures F.1 et F.2) et sulfo-oxydantes neutrophiles (Figures F.3 et F.4) sont présentes et sont actives dans les deux échantillons lorsqu'elles sont dans des conditions propices à l'oxydation du soufre. Cependant, en raison d'une stérilisation insuffisante des témoins, les tests n'ont pas permis de faire une différence claire entre l'influence des processus chimiques et biologiques sur l'oxydation des sulfures à part pour l'échantillon U4861 (Figure F.3), où les résultats montrent clairement la présence des bactéries sulfo-oxydantes neutrophiles, car la diminution du pH se produit plus lentement dans le témoin stérilisé (par irradiation gamma).

La présence des bactéries ferro-oxydantes (Figures F.5 à F.8) est moins évidente non seulement à cause d'un comportement similaire au témoin stérilisé, mais aussi à cause de la faible augmentation du POR (potentiel d'oxydo-réduction) dans tous les échantillons (et de la faible diminution du pH). Les bactéries ferro-oxydantes du type *Acidithiobacillus ferroxidans* sont donc beaucoup moins actives que les bactéries sulfo-oxydantes dans ces échantillons.
À la rigueur, des dénombrements de ces trois types des bactéries peuvent être réalisés.

Rapport-Gratuit.com

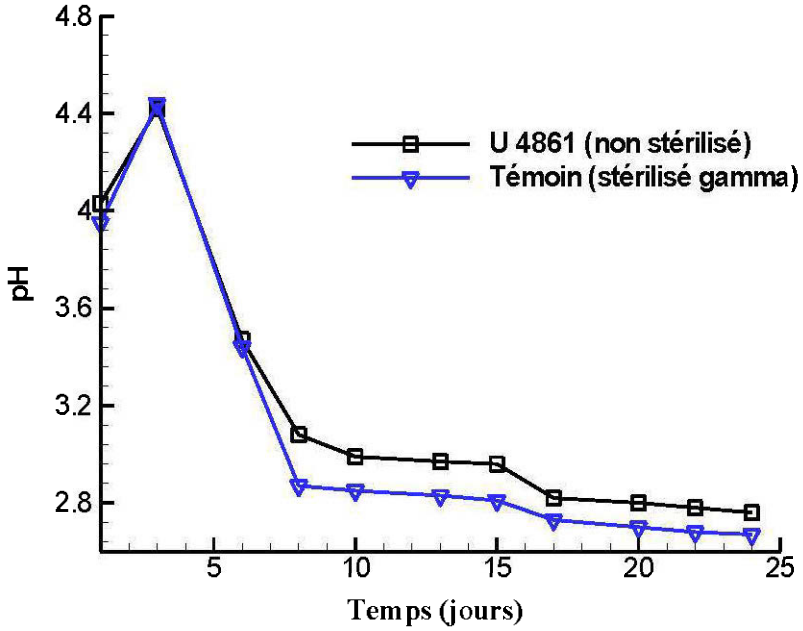


Figure F.1 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4861 pour les bactéries sulfo-oxydantes acidophiles

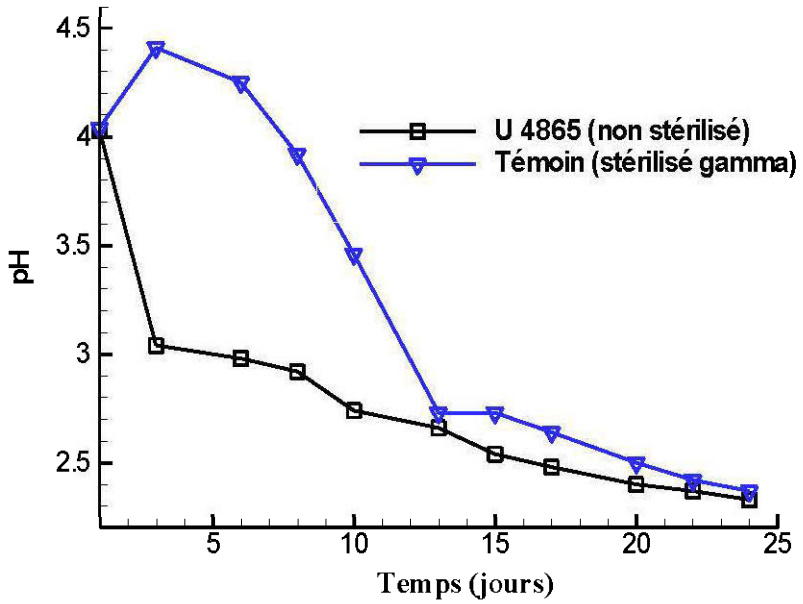


Figure F.2 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4865 pour les bactéries sulfo-oxydantes acidophiles

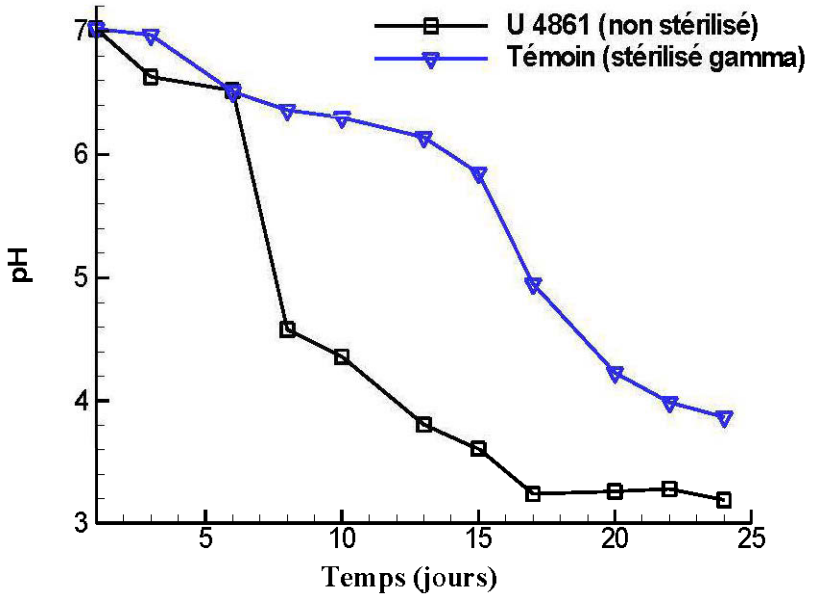


Figure F.3 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4861 pour les bactéries sulfo-oxydantes neutrophiles

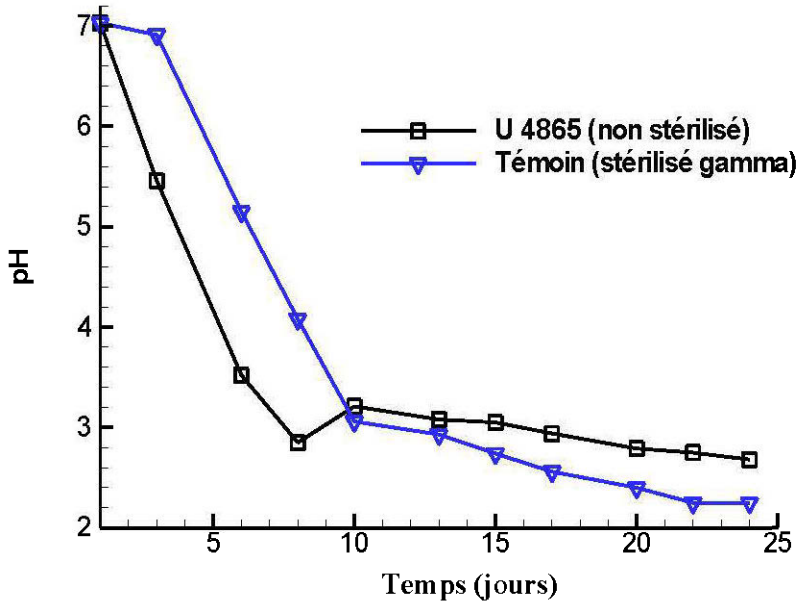


Figure F.4 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4865 pour les bactéries sulfo-oxydantes neutrophiles

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

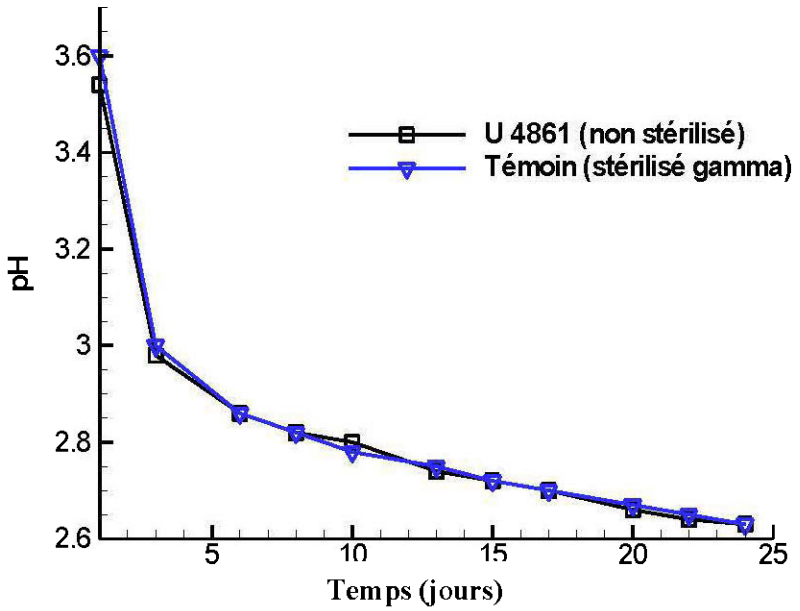


Figure F.5 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4861 pour les bactéries ferro-oxydantes acidophiles

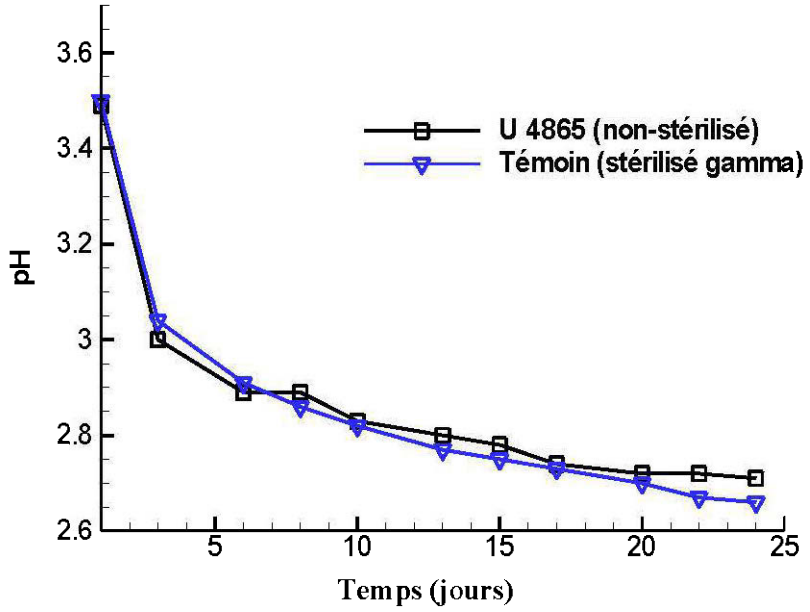


Figure F.6 Évolution du pH, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4865 pour les bactéries ferro-oxydantes acidophiles

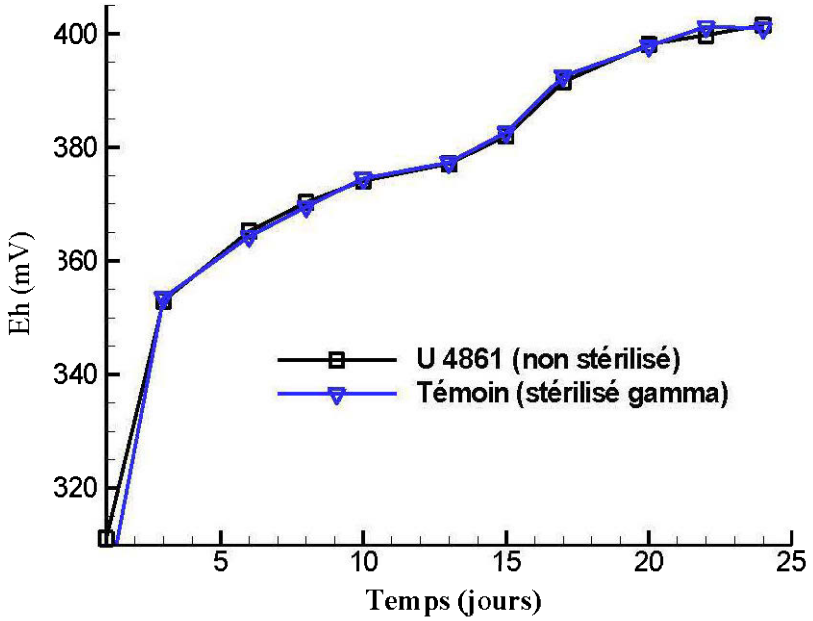


Figure F.7 Évolution du Eh, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4861 pour les bactéries ferro-oxydantes acidophiles

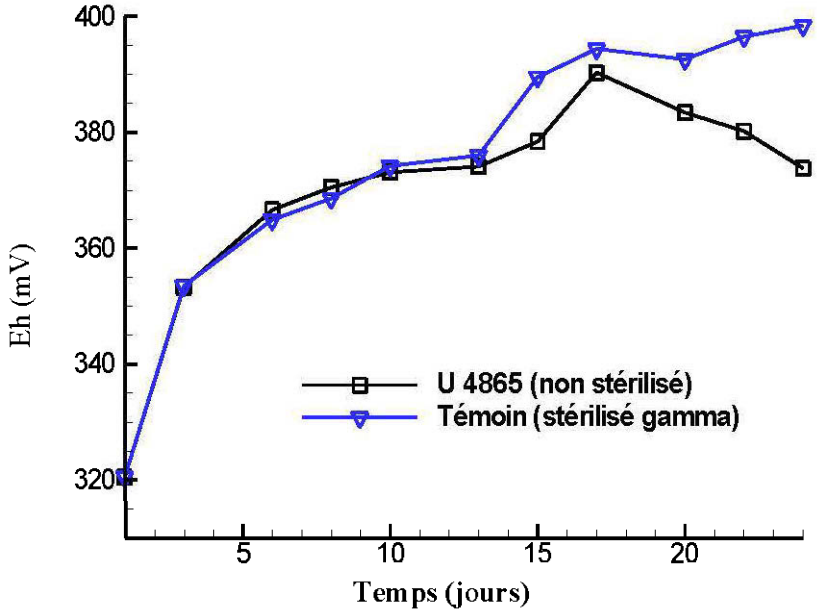


Figure F.8 Évolution du Eh, lors de la caractérisation microbiologique de l'échantillon U 4865 pour les bactéries ferro-oxydantes acidophiles

Références

Zagury, G.J., Colombano, S.M., Narasiah, K.S., Ballivy, G. 1997. "Stabilisation de résidus acides miniers par des résidus alcalins d'usines de pâtes et papiers". *Environmental technology*, 18: 959-973.

Pepin, G. 2009."Evaluation du comportement géochimique de stériles potentiellement générateurs de drainage neutre contaminé à l'aide de cellules expérimentales *in situ*". Memoire de maitrise, Departement des génies civil, géologique et des mines. Ecole Polytechnique de Montréal, Montréal, Qc, Canada.

APPENDIX G

RÉSULTATS DE LA MODÉLISATION GÉOCHIMIQUE À L'AIDE DE VMINTEQ

Les résultats de la modélisation géochimique, avec VMINTEQ, sont présentés sous forme de figures (Figure G.1 à G.3), qui montrent l'évolution temporelle des indices de saturation des minéraux sursaturés dans chaque colonne. Les minéraux sursaturés ayant un indice de saturation supérieur à 0.

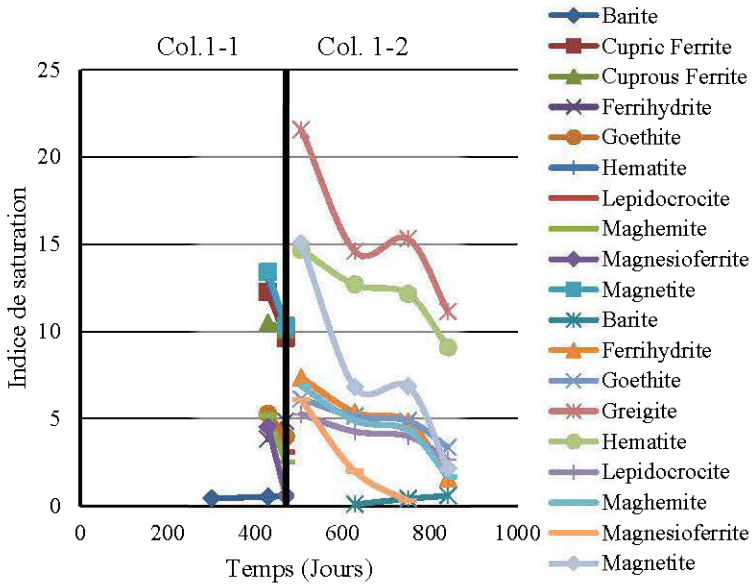


Figure G.1 Évolution temporelle des minéraux sursaturés dans les colonnes 1-1 et 1-2.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

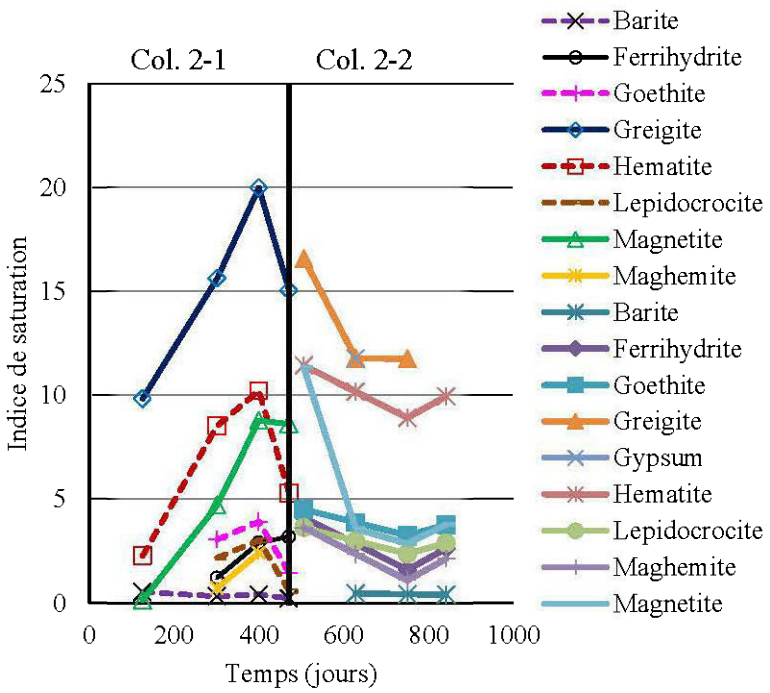


Figure G.2 Évolution temporelle des minéraux sursaturés dans les colonnes 2-1 et 2-2.

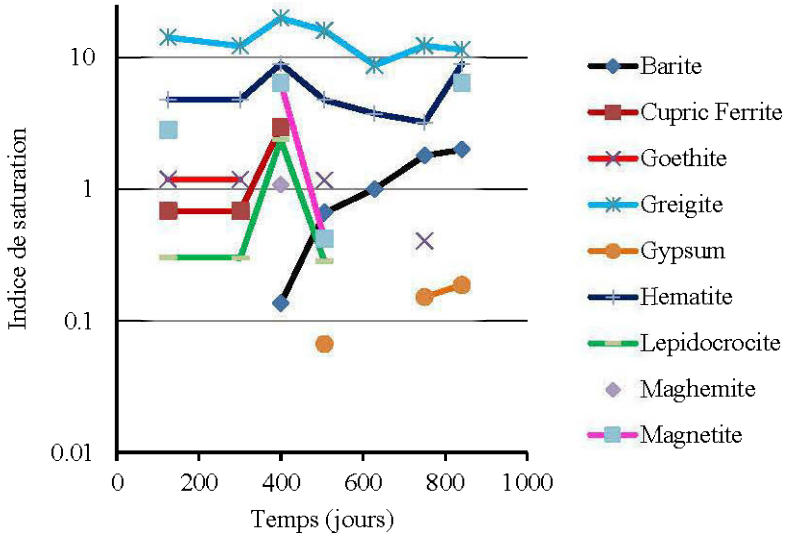


Figure G.3 Évolution temporelle des minéraux sursaturés dans la colonne 3.

APPENDIX H

MESURE DES MATIÈRES EN SUSPENSION À DON ROUYN

H.1 Description de la sonde Susix

La mesure en continu des MES est effectuée avec la sonde Susix de la compagnie MJK Automation A/S. C'est un senseur optique de mesure de la turbidité et des MES. La sonde Susix mesure les concentrations de MES de 1 mg/L à 400 000 mg/L à la température de 0 à 60 °C avec une précision de 5% et un temps de réponse de 1 s. Elle utilise 6 canaux à multi-rayon, un système infrarouge léger à impulsion fournissant un seul capteur tant pour la mesure de la turbidité que celle des MES. Avec un poids de 1,3 kg, elle est construite en acier inoxydable avec une couche de dioxyde de chrome. Elle est équipée de fenêtres optiques fabriquées à partir de verre de saphir résistant. Ces matériaux permettent de réduire le nettoyage de la sonde dans beaucoup d'applications. La sonde Susix comprend aussi un câble d'immersion (de 10 m de long dans le cas présent) connecté à un convertisseur et à une unité d'affichage. Le convertisseur pèse 1,1 kg, il est construit en verre de polycarbonate renforcé et il peut supporter des températures allant de -20 à 60 °C. La lecture des mesures se fait avec une précision de 0,1%. Tout comme le convertisseur, l'unité d'affichage est en verre de polycarbonate renforcé. Elle a une mémoire de 256 ko pouvant contenir 20 000 entrées de valeurs avec date et heure. L'unité d'affichage dispose d'un enregistreur qui peut stocker les données suivant un pas de mesure défini. Ceux-ci peuvent être transférés à un ordinateur sous format csv (Comma Separated Values) à l'aide d'une connexion USB incorporée à l'unité d'affichage et d'un logiciel approprié livré avec l'appareil. Avant l'utilisation de la sonde Susix pour des mesures sur le terrain, il est important d'effectuer la calibration de l'appareil. Le protocole de calibration est décrit dans ce qui suit.

H.2 Calibration de la sonde Susix au laboratoire

Le système de calibration de la sonde de MES au laboratoire se compose d'une chaudière de 27 cm de diamètre et de 31 cm de hauteur, d'un agitateur couplé à un moteur modèle 103 de Talboys laboratory de 120 V de tension et 110 W de puissance connecté à une alimentation et monté sur un support. La sonde Susix fixée à un support est connectée au convertisseur et à l'unité d'affichage. Ces derniers sont alimentés pas une batterie Nautilus de Motomaster. L'agitateur permet de mettre en suspension les résidus. Une vue d'ensemble du système de mesures est présentée à la Figure H.1.

De façon générale, la calibration est réalisée à l'aide de trois concentrations de MES prédéfinies dans un volume d'eau connu. Pour chaque concentration de MES, la masse de matériau sec à ajouter aux 10 litres d'eau peut être calculée. Comme la sonde doit être installée au site Don Rouyn, les résidus de ce site sont utilisés pour la calibration. Des concentrations de 0, 60, 80 et 100 mg/L MES ont été visées. L'agitateur est fixé au centre et à 7 cm du fond de la chaudière. Celle-ci est remplie d'un volume de 10 litres d'eau. L'agitateur est mis en marche à la vitesse autour de 300 RPM (tour/minute). La première masse de résidu (correspondant à la première concentration de MES) est déversée dans l'eau agitée dans la chaudière. Lorsque le mélange est bien homogénéisé (toutes les particules soient constamment mises en suspension), la sonde Susix préalablement nettoyée est plongée dans la chaudière dans l'axe de l'agitateur. La concentration s'affiche sur l'écran de la sonde et la concentration correspondant à cette masse est rentrée manuellement dans la section calibration de l'appareil. La même procédure est répétée pour les deux autres masses de résidus (ou autres concentrations de MES). Une fois que les trois concentrations sont inscrites dans l'appareil, la calibration prend fin.

Afin de s'assurer que la calibration a été bien effectuée, une vérification est effectuée. Des masses de résidu correspondant à des concentrations de MES de vérification sont définies de 0, 10, 30, 50, 60, 80 et 100 mg/L. Chaque masse est ajoutée dans l'eau de la chaudière. Une fois que l'eau était complètement mélangée, la valeur lue par l'unité d'affichage est notée. La

même opération que précédemment est effectuée pour les deux autres masses. Si les concentrations données par la sonde Susix correspondent à celles prédéfinies alors, la calibration bien effectuée. La calibration est complétée avec succès et la sonde Susix peut de ce fait être installée sur le terrain. Dans le cas des résidus Don Rouyn, la Figure H.2 compare les concentrations de MES mesurées avec celles initialement fixées. La Figure H.2 indique que ces concentrations concordent très bien, ce qui confirme que la sonde peut être utilisée pour les résidus Don Rouyn.

Il faut souligner que pour chaque type de résidus, une nouvelle calibration doit être faite. Aussi, la calibration précédente doit être effacée si l'on veut effectuer la calibration d'un autre type de résidus. La calibration a été faite avec toutes les particules des résidus. Si seulement une partie des résidus (fraction fine par exemple) est mise en suspension, ce qui peut être le cas sur le terrain, on suppose que la calibration reste valable.

Figure H.1 Photo du système de mesures de la MES lors de la calibration au laboratoire.

Rapport Gratuit.com

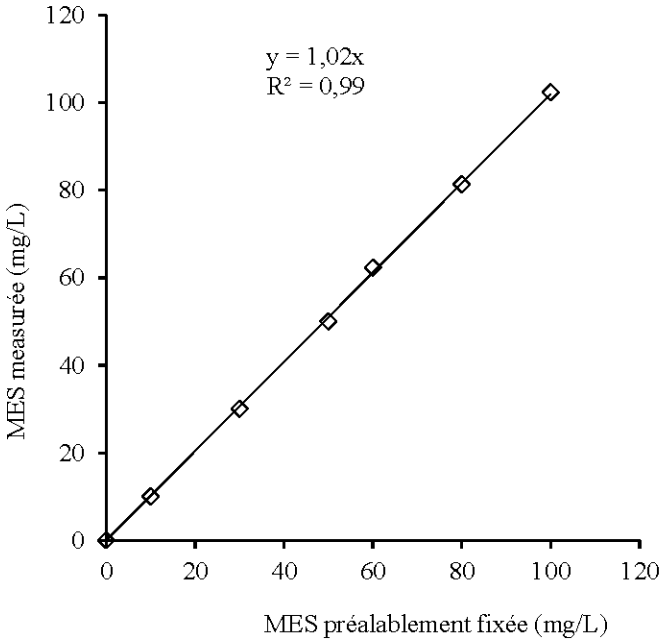


Figure H.2 Comparaison au laboratoire des concentrations de MES mesurées et préalablement fixées après la calibration.

APPENDIX I

CARACTÉRISATION DÉTAILLÉE DES RÉSIDUS MINIERS GALLEN À DON ROUYN

Cette partie présente les résultats complémentaires de la caractérisation des résidus Gallen déposés sous le recouvrement en eau de Don Rouyn. La distribution granulométrique et la minéralogie des résidus sont présentées aux figures I.1 et I.2. Les paramètres caractéristiques des résidus obtenus à partir de l'analyse granulométrique, l'analyse élémentaire et l'analyse soufre/carbone sont présentés aux tableaux I.1 à I.3.

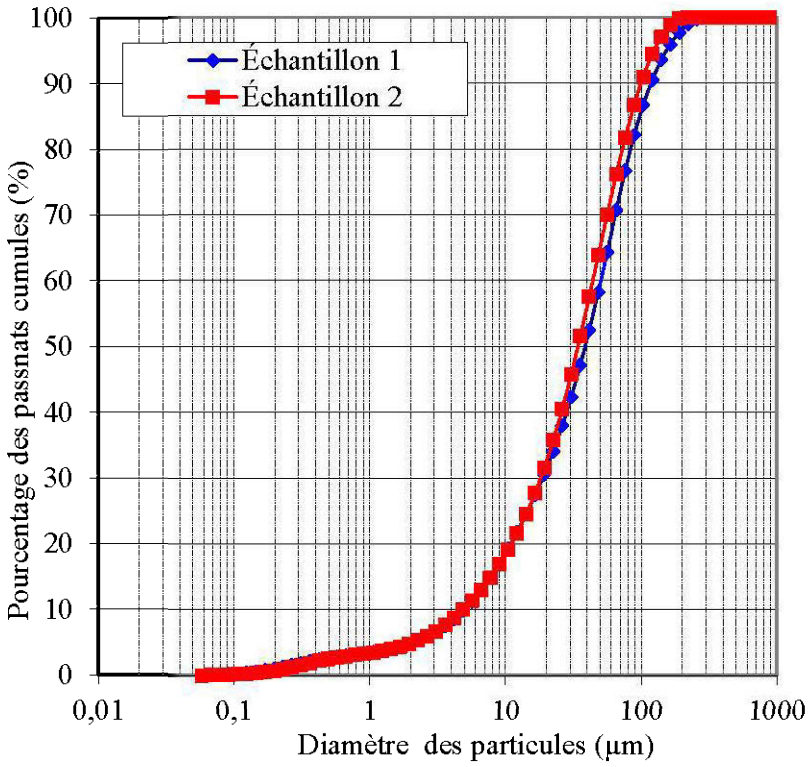


Figure I.1 Courbes granulométriques des résidus miniers du site Don Rouyn.

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

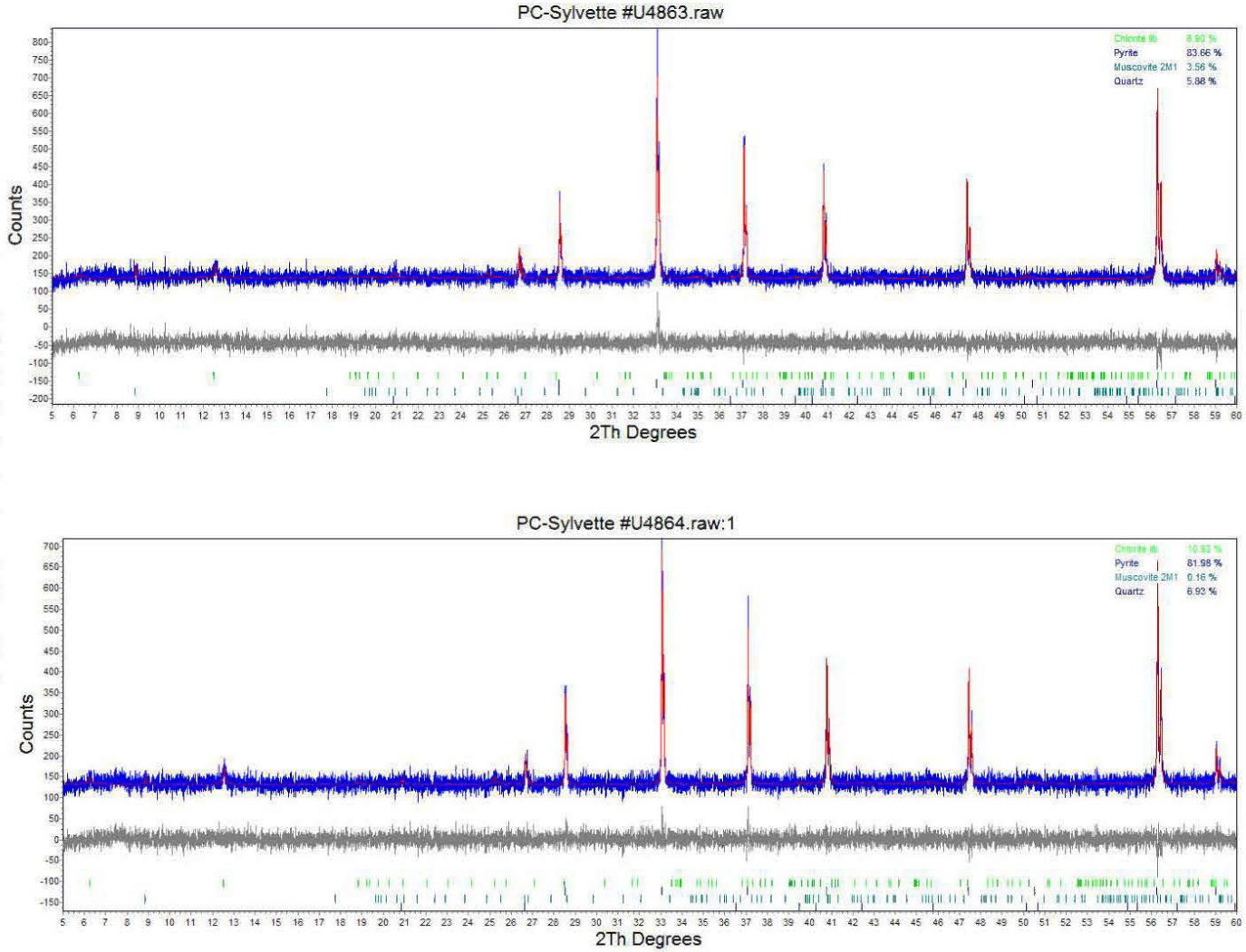


Figure I.2 Minéralogie des résidus Gallen.

Tableau I.1 Paramètres caractéristiques et densité des grains

	Échantillon 1	Échantillon 2
Cu, D_{60}/D_{10}	10,16	8,99
Cc, $D_{30}^2/D_{60}*D_{10}$	1,40	1,53
D_{10}	4,98	4,90
D_{20}	10,96	11,08
D_{30}	18,79	18,22
D_{40}	28,21	25,82
D_{50}	38,68	34,22
D_{60}	50,53	44,10
D_{70}	64,46	56,15
D_{80}	83,98	72,97
D_{90}	118,44	100,19

Tableau I.2 Analyse élémentaire des résidus Gallen (LDM : limite de détection des métaux)

Éléments	LDM	Échatillon 1	Échatillon 2
Al	ND[x]	0,91	0,91
As*	ND	0,01	0,01
Ba	ND	0,01	0,01
Be*	ND	0,0	0,0
Bi	ND	0,002	0,002
Ca	ND	0,32	0,32
Cd	ND	0,001	0,001
Co	ND	0,001	0,001
Cr	ND	0,001	0,002
Cu	ND	0,05	0,05
Fe	ND	48,5	49,3
Mg	ND	0,19	0,20
Mn	ND	0,02	0,02
Mo	ND	0,00	0,00
Ni	ND	0,001	0,001
Pb	ND	0,07	0,07
S_{tot}	ND	38,0	39,3
Sb	ND	0,001	0,001
Se*	ND	0,0	0,0
Sn	ND	0,0	0,0
Ti	ND	0,01	0,02
Zn	ND	0,38	0,38

[x]ND : Non Donné

Rapport-gratuit.com
LE NUMERO 1 MONDIAL DU MÉMOIRES

Tableau I.3 Analyse soufre-carbone

Élément	C_{total}	S_{total}
Unités	% p/p	% p/p
LDM	0,04	0,004
Résidus	0,129	47,2