

Mise en garde

La bibliothèque du Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue et de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) a obtenu l'autorisation de l'auteur de ce document afin de diffuser, dans un but non lucratif, une copie de son œuvre dans <u>Depositum</u>, site d'archives numériques, gratuit et accessible à tous. L'auteur conserve néanmoins ses droits de propriété intellectuelle, dont son droit d'auteur, sur cette œuvre.

Warning

The library of the Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue and the Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) obtained the permission of the author to use a copy of this document for nonprofit purposes in order to put it in the open archives <u>Depositum</u>, which is free and accessible to all. The author retains ownership of the copyright on this document.

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE

COMPORTEMENT HYDROGÉOCHIMIQUE DES STÉRILES D'UNE HALDE EXPÉRIMENTALE VISANT À LIMITER LA PRODUCTION DE DNC PAR CONTRÔLE DES ÉCOULEMENTS

THÈSE

PRÉSENTÉE

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DU DOCTORAT EN SCIENCES DE L'ENVIRONNEMENT

PAR

POATY BISSÉ

AVRIL 2022

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier sincèrement mon directeur de recherche, Benoît Plante, pour son soutien, ses encouragements constants et son optimisme, qui ont permis de mener à bien ce projet de recherche. Il a toujours su guider mes pas durant ce long chemin de ma thèse. Mes remerciements vont aussi à l'endroit de mes co-directeurs, Bruno Bussière et Mostafa Benzaazoua, pour leurs apports importants, leurs implications et conseils avisés notamment lors de la rédaction des articles.

Je remercie aussi le CRSNG, Rio Tinto-Fer et Titane Inc et les autres partenaires industriels de l'Institut de recherche en mines et en environnement (IRME) pour leur soutien financier au projet dont cette thèse fait partie. Je tiens aussi à remercier toutes les personnes qui ont été impliquées dans le projet de la construction de la halde expérimementale, notamment Vincent, Adrien, Babacar, Marie-Lin, Julien, Robert ainsi que l'équipe technique de l'URSTM.

Merci également à Sylvette Awoh pour sa gentillesse, son soutien et ses encouragements constants.

Je remercie chaleureusement mon frère Bouddah, pour ses précieux conseils; il a toujours été un modèle pour moi. Un grand merci aussi à mes ami(e)s Christelle Rocard, Emmanuel Cyr et Esther See pour leur bienveillance et les bons moments que nous avons partagés ensemble. Je tiens aussi à remercier mes collègues et amis étudiants que j'ai eu le privilège de cotoyer. Mention spéciale à Alex Kalonji, Yves-Daddy, Patrick Vualu, Ibrahima Hane, Babacar Kandji, Mohamed Bini, Aurélie Chopard, Koly, etc. Je n'oublie pas aussi de dire merci à ma chère Amy pour sa présence et son support lors de la dernière ligne droite de ce travail.

J'exprime aussi mes sincères remerciements à Tikou Belem, professeur à l'IRME pour ses encouragements, son soutien et son sens de l'humour.

Mes remerciements vont aussi à l'endroit de Danièle Laporte et Ann Gervais pour leur gentillesse, disponibilité et les services rendus.

Merci également à la fondation de l'UQAT (FUQAT) pour la bourse relative au dépôt de thèse de doctorat que j'ai bénéficiée et qui m'a été d'une grande aide. Je remercie par la même occasion Karine Gareau, la directrice de la FUQAT pour sa bienveillance et de m'avoir permis de travailler au sein de ladite fondation.

Enfin, je tiens à remercier Dr. François Duhaime et Éric Rosa évaluateurs externe et interne, d'avoir accepté d'évaluer ma thèse, et Mamert Mbonimpa, pour présider le jury.

DÉDICACE

À mon père Victor Poaty Mboumba

À ma mère Odile Mbissi Bisset.

AVANT-PROPOS

Cette thèse de doctorat en sciences de l'environnement est composé de trois articles scientifiques rédigés en anglais, selon les standards de publication des revues scientifiques internationales. Deux de ces trois articles ont déjà été publiés. Le dernier article est en voie d'être soumis dans un journal avec comité de lecture. Un article de conférence (publié) présentant des travaux préliminaires de cette thèse peut être retrouvé dans les annexes. La rédaction du reste de la thèse s'est faite en français. Cepedant, il est possible que des répétitions et redondances soient constatées par le lecteur dans certains chapitres de cette thèse. L'ensemble des travaux de laboratoire incluant les essais expérimentaux, la construction des modèles physiques (colonnes et système expérimental 2D), la collecte des données présentées dans ces articles et leur rédaction ont été réalisés par l'auteur de cette thèse. Donc, la place de premier auteur de ces articles lui revient.

L'ordre d'apparition des noms des co-auteurs dans ces articles s'est fait suivant leur implication dans la supervision, le travail d'analyse et d'interprétation des données ainsi que leur participation à la structure et à la correction des manuscrits.

La rédaction du reste de la thèse a été effectuée par l'auteur lui-même. Grâce aux remarques et commentaires du directeur et co-directeurs, les différents chapitres de cette thèse ont été bonifiés de façon significative.

TABLE DES MATIÈRES

LIST	'E DES	FIGURES	xiiD
LIST	E DES	TABLEAUX	xvii
LIST	E DES	SYMBOLES ET UNITÉS	.xix2
RÉS	UMÉ		.xxi2
ABS	TRAC	Γ	xxiii⊇
СНА	PITRE	1 INTRODUCTION	12
1.12	Génér	alités sur les rejets miniers	12
1.22	Halde	s à stériles	12
	1.2.1	Méthodes de construction des haldes à stériles	1
	1.2.2	Structure interne des haldes à stériles	2
	1.2.3	Drainage contaminé dans les haldes à stériles	3
1.32	Facter	urs d'influence de la libération des contaminats dans les haldes à stéril	es.42
1.42	Métho	odes de prédiction du DNC	42
1.52	Métho	odes de prévention de la contamination des eaux de drainage	72
	1.5.1	La co-disposition et le mélange des matériaux	7
	1.5.2	Le recouvrement en eau et le recouvrement en sol	8
1.62	Constr compo	ruction de modèles physiques de grande dimension pour l'étude du ortement des stériles	102
1.70	Halde	inclinée avec couche de contrôle des écoulements	112
1.82	Préser	ntation du site d'étude et justification du projet	132

1.92	Objectifs et hypothèses de la thèse	152
1.102	La portée de la thèse	172
1.112	Structure de la thèse	182
1.122	Avancements et contributions scientifiques anticipées	192
CHA LA H	PITRE 2 DESCRIPTION DU DESIGN ET DE LA CONSTRUCTION DE IALDE EXPÉRIMENTALE À STÉRILES	212
2.12	Conception et instrumentalisation de la halde expérimentale à stériles	212
2.22	Choix du site de construction de la halde expérimentale et préparation	242
2.32	Construction et instrumentation des lysimètres	252
	2.3.1 Base des lysimètres et installation de la géomembrane	26
	2.3.2 Couche protectrice de la géomembrane	30
	2.3.3 Installation des débimètres à augets	35
2.42	Construction de la halde expérimentale par la méthode de push-dumping	.372
	2.4.1 Construction des bermes	40
	2.4.2 Construction des bermes	41
2.5.2	Mise en place de la couche de contrôle des écoulements	422
CHA DE C	PITRE 3 MODÈLES PHYSIQUES DE LABORATOIRE ET TECHNIQUES CARACTÉRISATION	49
3.12	Modèle physique unidimentionnelle : colonnes	492
3.22	Modèle physique incliné	512
	3.2.1 Description de la boîte d'infiltration	51
	3.2.2 Échantillonnage des matériaux du modèle physique	52
	3.2.3 Description de la boîte d'infiltration	53
	3.2.4 Système de simulation des précipitations	57

vii

3.3 Méthode de caractérisation	582
3.3.1 Caractérisation physique	. 59
3.3.2 Caractérisation chimique	59
3.3.3 Caractérisation minéralogique	61
CHAPITRE 4 A COLUMN STUDY OF THE IMPACT OF LAYERING THE DIFFERENT LAC TIO MINE WASTE ROCK LITHOLOGIES ON DRAINAGE WATER QUALITY	2 62
4.12 Introduction	.652
4.22 Materials and methods	.682
4.2.1 Sampling and waste rock properties	. 68
4.2.2 Physico-chemical properties of materials	69
4.2.3 Column kinetic tests	70
4.2.4 Geochemical equilibrium modeling	72
4.32 Resultats and discussion	732
4.3.1 Waste rock characterization	73
4.3.2 Column test results	78
4.3.3 Geochemical equilibrium modeling results	. 88
4.42 Summary and conclusion	.912
4.5 Acknowledgments	.922
CHAPITRE 5 ASSESSMENT OF HYDROGEOCHEMICAL BEHAVIOR OF LAYERED WASTE ROCK STOCKPILES: A MESO-SCALE LABORATORY EXPERIMENT	93
5.12 Introduction	.982
5.22 Description of the experimental system	1012

viii

	5.2.1 Infiltration box	101
	5.2.2 Rainfall system, measuring devices and acquisition data	102
	5.2.3 Waste rock characterization and installation	103
	5.2.4 Test procedures in the infiltration box	105
5.32	Results and discussion	1072
	5.3.1 Materials characterization	107
	5.3.2 Results of water flow behavior	111
	5.3.3 Results of geochemical behavior	116
5.42	Summary and conclusion	1272
5.52	Acknowledgments	1282
5.62	Supplementary material	1292
CHA AN E	PITRE 6 ASSESSMENT OF HYDROGEOCHEMICAL BEHAVIOR OF EXPERIMENTAL WASTE ROCK PILE	131
6.12	Introduction	1362
6.22	Materials and methods	1382
	6.2.1 Description of the site study	138
	6.2.2 Test pile construction and instrumentation	139
	6.2.3 Sampling and geochemical of the test pile	141
	6.2.4 Physical, chemical and mineralogical characterization methods	141
	6.2.5 Geochemical modeling	142
	6.2.6 Rainfall data	142
	6.2.7 Applied rainfall	143

ix

	6.3.1	Material characterization	144
	6.3.2	Hydrological response of the test pile	147
	6.3.3	Geochemical response of the test pile	150
6.42	Conclu	usion	1592
6.52	Ackno	wledgments	1612
CHA À DI	.PITRE FFÉRE	7 COMPARAISONS DES COMPORTEMENTS GÉOCHIMIQUES NTES ÉCHELLES	162
7.12	Introdu	uction	1622
7.22	Matéri	aux et méthodes	1642
	7.2.1	Caractérisation physique, chimique et minéralogique	164
	7.2.2	Essai de terrain à l'échelle de la halde expérimentale	166
	7.2.3	Essai de laboratoire	166
	7.2.4	Étude antérieure sur les stériles miniers	167
	7.2.5	Compararaison des essais aux différentes échelles	169
7.32	Résult	ats et discusion	1712
	7.3.1	Caractérisation chimique	171
	7.3.2	Comparaison des résultats de la qualité de l'eau aux différentes échelles	172
	7.3.3	Comparaison des taux de génération à différentes échelles expérimentales	176
	7.3.4	Influence de la surface spécifique sur les taux de génération	180
	7.3.5	Influence du rapport liquide/solide sur les taux de génération	183
	7.3.6	Résultats des calculs thermodynamiques à l'équilibre à différentes échelles	186

Х

7.42	Conclusion	1892
CHA	PITRE 8 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS	1912
8.12	Sommaire	1912
8.22	Chapitre 4	1932
8.32	Chapitre 5	1942
8.42	Chapitre 6	1962
8.52	Chapitre 7	1992
8.62	Remarques finales	2002
ANN OF D MINI	EXE A ARTICLE DE CONFÉRENCE : GEOCHEMICAL BEHAVIOR IFFERENT WASTE ROCK CONFIGURATIONS FROM THE LAC TIO E : COMPARISON BETWEEN COLUMN TESTS AND	
EXPE	ERIMENTAL WASTE ROCK PILE RESULTS	202
BIBL	IOGRAPHIE GÉNÉRALE	2212

LISTE DES FIGURES

Figu	Page
1.1	Configuration de halde inclinée avec couches de contrôle des écoulements (Aubertin, 2013)
2.1	Configuration de la halde expérimentale
2.2	Débitmètre à auget (a), sonde de modèle GS3 (b) et sondes MPS-2 Decagon (c)
2.3	Nivellement de la surface devant accueillir la halde expérimentale25
2.4	Mise en place de la couche de sable de protection inférieur du lysimètre 1 26
2.5	Installation du drain de collecte des eaux dans un des six lysimètres
2.6	Compaction de la couche de sable de protection inférieure du lysimètre28
2.7	Mise en place de la géomembrane sur la couche de sable de protection inférieure du lysimètre 1 (a) et son raccordement au drain de collecte des eaux de drainage (b)
2.8	Mise en place de la crépine
2.9	Test d'étanchéité des drains des lysimètres
2.10	Installation de la sonde de teneur en eau volumique '' Decagon GS3'' dans la couche de sable de protection supérieure
2.11	Compaction de la couche de sable de protection supérieur du lysimètre 1 à l'aide d'une plaque vibrante
2.12	Installation des électrodes de géophysique et de leurs fils
2.13	Tranchées pour l'installation du câble DTS
2.14	Mise en place d'une couche de stériles minéralisés de protection sur les lysimètres à l'aide d'une excavatrice

2.15	Excavation pour l'installation des débitmètres
2.16	Installation d'un débitmètre à bascule
2.17	Datatalogger mis dans une boîte de protection (a) et l'ensemble suspendu (b). 37
2.18	Déversement de stériles du haut de la rampe d'accès à l'aide d'un camion de 100 tonnes (a) et utilisation d'un bulldozer pour les pousser vers le bas
2.19	Repères sur la surface des stériles de la halde pour l'installation future des câble DTS (a) et mise en place du câble DTS dans les stériles (b)
2.20	Tranchées creusées dans les stériles du haut de la halde (a) et installation des sondes de teneur en eau et de succion dans ces tranchées (b)
2.21	Aperçu de la surface de la halde expérimentale bordée par les bermes de gauche, de droite et de l'avant (a) et mise en place des bermes de sécurité (b). 41
2.22	Boîte de protection des modules d'enregistrement des données de sondes de teneur en eau et de succion, posée sur la berme latérale droite
2.23	Nivellement (a) et compaction de la première levée de sable (b)43
2.24	Tranchées pour l'installation du câble DTS (a) et installation des sondes de teneur en eau et de succion (GS3 et MPS2 Decagon) (b)44
2.25	Mise en place et compaction du sable de la deuxième levée
2.26	Début de la mise en place de la couche de matériaux fins anorthositiques concassés et sa compaction (surface finale de la halde expérimentale)
2.27	Construction d'une rampe d'accès pour les travailleurs
2.28	Halde expérimentale complétée
3.1	Configuration des colonnes mises en place au laboratoire (tiré de Poaty et al., 2018)
3.2	Modèle physique mettant en évidence les sections de matériaux grossiers et les angles de déposition des stériles grossiers (tiré de Poaty et al., 2021b)51
3.3	Vue d'ensemble du modèle physique 2D avant (a) et au début de son remplissage avec les matériaux (b)

3.4	Homogénéisation des stériles d'hémo-ilménites (a), d'anorthosite non concassée (b), d'anorthosite concassée (c) et du sable (d)	. 53
3.5	Installation des géotextiles à la base du modèle physique et compactage des matériaux	.54
3.6	Mise en place de la couche des matériaux grossiers, section par section, dans le modèle physique	. 55
3.7	Modèle physique 2D après la mise en place des trois couches de différents matériaux	.57
3.8	Simulateur des précipitations en dehors et au dessus du modèle physique	. 58
4.1	Configuration of the laboratory column set up (adapted from Poaty et al., 2018)	71
4.2	Grain-size distribution of materials used in columns	.75
4.3	Sulphur and others elements (Ni, Si, Ca and Al) distribution for discrete particle sizes of hemo-ilmenite samples	.77
4.4	Evolution of effluent alkalinity and dominant dissolved constituents from the columns over time (adapted from Poaty et al., (2018))	. 80
4.5	Cumulative normalized loadings for oxidation/neutralization-related elements over time in the column tests (adapted from Poaty et al., 2018)	. 86
4.6	Variation of the Ni/SO ₄ cumulative loading ratios over time within column leachates	. 88
4.7	Modeled saturation index for gypsum (CaSO ₄ .2H ₂ O) in effluents from columns	.90
5.1	Photos illustrating the experimental set-up and related accessories 1	102
5.2	Schematic representation of materials configuration into the infiltration box highlighting the filling sections and the deposition angles of waste rocks (1cm = 0.283m in the field for the length)	104
5.3	Grain-size distribution of the materials used in the three-layer system	107

5.4	Cumulative water volume collected along the bottom of the box at 8 (a), 17 (b) and 27mm/day (c), respectively, as well as the total applied and collected water (d)
5.5	Electrical conductivity measured in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 2500 µS/cm in c) compared to 1200 µS/cm in a) and b))
5.6	Measured concentrations of nickel in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 7 mg/L in c) compared to 4 mg/L in a) and b)) 118
5.7	Measured concentrations of sulfates in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 1800 mg/L in c) compared to 800 mg/L in a) and b))
5.8	Representation of the physical model in virtual compartments
5.9	Nickel loadings from drains located along the bottom of the box (a, b, c) and from the whole physical model (d)
5.10	Sulfate loadings from drains located along the bottom of the box (a, b, c) and from the whole physical model (d)
5.11	Conceptual flow paths in a flow control layer (consisting of two compacted sand and crushed anorthosite inclined sub-layers), placed on a coarse-grained material (waste rock)
5.12	Calibration of rainfall simulation system using four plastic bags to collect high pressure water jets from the four oscillating sprinklers
5.13	Calibration curve of rainfall simulation system
6.1	Design of the experimental waste rock pile, showing instrumentation location
6.2	Contribution of each lysimeter to total outflow before FCL placement (2015) and after (2016 and 2017); 2015 and 2016 data from flowmeters, 2017 data from manual flow measurement
6.3	Evolution of the main geochemical parameters from lysimeters 1 to 6 over time (adapted from Poaty et al., 2018)
6.4	Cumulative normalized nickel and sulphate loadings from lysimeters 1 to 6 in 2015, 2016 and 2017

6.5	Log activity of Ca^{2+} versus log activity of SO_4^{2-} (a) and modeled saturation index for gypsum (CaSO ₄ .2H ₂ O) (b) in water samples from lysimeters 157
7.1	pH, conductivité et concentrations des certains produits d'oxydation et de neutralisation (Ni, SO ₄ et Ca) mesurés à partir des échantillons d'eau de drainage provenant des colonnes, du modèle physique et de la halde expérimentale
7.2	Charges cumulées normalisées en nickel et sulfate dans les lixiviats obtenues à différentes échelles étudiées177
7.3	Comparaison des taux massiques de génération des produits d'oxydation, obtenus à différentes échelles étudiées
7.4	Comparaison des taux volumiques de génération des produits d'oxydation, obtenus à différentes échelles dans cette étude et dans celle de Plante et al (2014)
7.5	Comparaison des taux surfaciques de génération de Ni, SO ₄ et Ca, obtenus à différentes échelles dans cette étude et dans celle de Plante et al (2014) 181
7.6	Influence du rapport liquide/solide sur les taux de génération des produits d'oxydation et de neutralisation et sur leurs ratios (Ca/SO ₄)
7.7	Comparaison de l'activité calculée de Ca en fonction de celle de SO ₄ pour les essais à l'échelle du laboratoire (colonnes, en (a) et modèle physique, en (b)) et à l'échelle de la halde expérimentale (c) avec une ligne droite théorique exprimant la solubilité du gypse

LISTE DES TABLEAUX

Tableau	Page
4.1	Major geochemical processes that control water quality in the Lac Tio waste rock
4.2	Chemical characterization of the hemo-ilmenite and anorthosite waste rock samples from columns (from Poaty et al., 2018)74
4.3	Features of waste rocks used in columns75
4.4	Mineralogical compositions by x-ray diffraction of waste rock (wt%) used in columns
4.5	Release rates of Ca, Ni, and SO ₄ (mg/kg/day) during column tests (>500 days)
4.6	Calculated saturation indices with Vminteq for selected mineral phases formed during representative water quality column tests (flush 10)91
5.1	Detailed experimental conditions and amounts of water collected at the bottom of the physical model
5.2	Features of materials from each section and layer of experimental system (AEV: air entry value; ksat: saturated hydraulic conductivity; θ_r : residual volumetric water content; ψ_r : residual suction)
5.3	Chemical characterization of materials from each section and layer of the physical model
5.4	XRD results from the physical model samples. A phase more than 80 wt% is indicated by xxxx, that between 40 and 60 wt% is indicated by xxx, xx indicates a phase present between 20 and 40 wt%, and x is a phase present at <10 wt%
6.1	Rainfall and temperatures at the Lac Tio mine site recorded by the weather station during 2014, 2015 and 2016

6.2	Properties of the materials used in the waste rock test pile 145
6.3	Chemical characterization of samples from the experimental waste rock pile (mean values of 27 samples) (adapted from Poaty et al., 2018)
6.4	Mineralogical compositions of waste rock (wt%) from the experimental pile
6.5	Nickel and sulphate release rates before and after FCL placement
6.6	Saturation indices calculated with Vminteq for certain mineral phases formed in representative water samples from lysimeters
7.1	Comparaison de quelques caractéristiques des différentes échelles 170
7.2	Caractérisation chimique des échantillons de matériaux utilisés à différentes échelles
7.3	Paramètres géochimiques des eaux de drainage à différentes échelles 173

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS

ABA Acid-Base Accounting AEV (kPa) Air entry value (kPa) AMD Acid Mine Drainage AP Acid Production Potential (kg CaCO₃/t) CND Contaminated Neutral Drainage Conseil de Recherches en Sciences Naturelles et en Génie du Canada CRSNG C_{C} Coefficient de courbure (-) CCE Couche de contrôle des écoulements C_u Coefficient d'uniformité (-) CEBC Couverture avec effets de barrière capillaire D_{10} Diamètre correspondant à 10 % cumulé de la distribution granulométrique (µm) Diamètre correspondant à 30 % cumulé de la distribution D₃₀ granulométrique (µm) Diamètre correspondant à 60 % cumulé de la distribution D60 granulométrique (µm) Diamètre moyen (µm ou m) di Densité relative des grains (-) D_r

- DMA Drainage Minier Acide
- DNC Drainage Neutre Contaminé
- DRX Diffraction des Rayons-X
- ICP-AES Spectrométrie d'émission atomique au plasma à couplage inductif
- Kps Coefficient de produit de solubilité
- k_{sat} Conductivité hydraulique saturée (m/s)
- MEB-EDS Microscope électronique à balayage avec spectromètre à dispersion d'énergie
- n Porosité
- NSERC Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada
- Ppm Partie par million
- Ss Surface spécifique $(m^2/g \text{ ou } m^2/kg)$
- S.S.A Specific Surface Area $(m^2/g \text{ ou } m^2/kg)$
- UQAT Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue
- XRD X-Ray Diffraction
- XRF X-ray fluorescence
- θ_r Teneur en eau volumique résiduelle (-)
- ψ_r Pression d'entrée d'eau ou succion à teneur en eau résiduelle (kPa)

RÉSUMÉ

Une halde expérimentale inclinée à 5%, a été construite à la mine Lac Tio (près de Havre-Saint-Pierre, au Québec, Canada) pour évaluer une nouvelle approche de stockage de stériles miniers visant à contrôler les infiltrations d'eau et minimiser la contamination dans les haldes à stériles. Cette nouvelle méthode est basée sur une couche de contrôle d'écoulement (CCE) placée au-dessus de la halde expérimentale à stériles et contribuant à dévier l'eau vers l'extrémité de cette halde constituée de stériles non réactifs. Des essais au laboratoire (colonnes et système expérimental 2D) ont été menés en parallèle afin de répondre à toutes les préoccupations liées à la limitation de l'essai de terrain (halde expérimentale). Aussi, une évaluation à plus petite échelle (colonnes de laboratoire) a été menée afin de mieux cerner les phénomènes hydrogéochimiques qui peuvent avoir lieu à l'échelle de terrain. En effet, des essais en colonnes ont été effectués afin de comprendre le comportement hydrogéochimique des différents types de stériles de la mine Lac Tio (à prédominance anorthosite ou hémoilménite) séparément et juxtaposés. Des essais d'infiltration en laboratoire ont aussi été réalisés dans un modèle physique (système expérimental 2D) afin de comprendre les facteurs qui influencent la performance de la CCE. De ce fait, la structure interne du modèle physique a été conçue de façon similaire à celle de la halde expérimentale.

Les résultats des essais en colonnes ont montré une variation des taux de libération de nickel et de sulfate d'un à deux ordres de grandeur selon le type de stériles et leur configuration (purs ou mélangés entre eux). La qualité de l'eau de drainage a été affectée par les changements de volume d'eau de rinçage, par la précipitation/dissolution de minéraux secondaires et par la sorption de Ni dans les stériles anorthositiques. Ces résultats ont aussi démontré que le stockage de stériles d'hémo-ilménite sur ceux d'anorthosite est un moyen efficace de réduire les niveaux de Ni dans les eaux de drainage des matériaux de la mine Lac Tio.

Les résultats du modèle physique ont montré que la déviation de l'eau le long de la pente de la boîte d'infiltration est régit en grande partie par l'angle d'inclinaison de la boîte et le taux de pluie appliqué. Ces résultats ont aussi montré que la distribution de l'infiltration au sein du système dépend de l'intensité des précipitations. Les résultats des essais d'infiltration ont aussi indiqué que les charges de nickel et de sulfate sont influencées par les taux de précipitations appliqués et que la qualité de l'eau de drainage est améliorée par une meilleure déviation de l'eau par la CCE. Ces résultats suggèrent

que les charges de nickel et de sulfate sont principalement contrôlées par les effets de barrière capillaire, les chemins d'écoulement et le débit.

Les résultes de la halde expérimentale ont montré que la CCE constituée de matériaux non réactifs compactés à grains fins, a conduit à une diminution l'infiltration de l'eau dans les matériaux réactifs et à une déviation de l'eau vers le pied de la halde (constitué de de stériles non réactifs). Les taux de libération en nickel ont été du même ordre de grandeur avant et après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale. Les taux de libération en sulfate avant la mise en place de la CCE ont été également proches de ceux obtenus après l'installation de la CCE. La faible différence de taux de libération en nickel obtenue avant et après l'installation de la CCE pourrait s'expliquer partiellement par la libération de Ni dans les eaux de drainage en raison d'une diminution de la capacité de sorption de Ni des stériles au cours du temps. En conséquence, l'efficacité de la CCE a été affectée. Cela pourrait également s'expliquer par la faible infiltration d'eau dans les stériles réactifs entraînant une libération lente et progressive de produits d'oxydation tels que le nickel et les sulfates comparativement à avant l'installation de la CCE. Ces résultats sugèrent que la réactivité des stériles reste similaire avant et après la mise en place de la CCE mais que leur capacité de sorption du nickel diminue avec le temps. Cependant, la qualité des eaux de drainage pourrait être considérablement améliorée par l'inclusion de plusieurs CCE dans une grande halde à stériles.

L'ensemble de tous ces résultats permettent de mieux comprendre le comportement hydrogéochimique de la halde expérimentale comme méthode de gestion et de stockage des stériles miniers.

Mots clés : Couche de contrôle d'écoulement, drainage neutre contaminé, halde expérimentale, nouvelle méthode de gestion et stockage des stériles miniers

ABSTRACT

An experimental pile, inclined at 5%, was built at the Lac Tio mine (near Havre-Saint-Pierre, Quebec, Canada) to evaluate a new approach to waste rock storage aimed at controlling water infiltration and minimizing contamination in waste rock piles. This new method is based on a flow control layer (FCL) placed above the experimental waste rock pile and contributing to divert water towards the extremity of this pile made of non-reactive waste rock. Laboratory tests (columns and 2D experimental system) were carried out in parallel in order to respond to all concerns related to the limitation of the field test (experimental pile). Also, a smaller scale assessment (laboratory columns) was conducted in order to better understand the hydrogeochemical phenomena that can take place at the field scale. Indeed, column tests were carried out in order to understand the hydrogeochemical behavior of the different types of waste rock from the Lac Tio mine (predominantly anorthosite or hemo-ilmenite) separately and juxtaposed. Laboratory infiltration tests were also performed in a physical model (2D experimental system) in order to understand the factors that influence the performance of the FCL. For this reason, the internal structure of the physical model was designed similarly to that of the experimental pile.

The results of the column tests showed a variation of the nickel and sulphate release rates of one to two orders of magnitude depending on the type of waste rocks and their configuration (pure or mixed with each other). The quality of the drainage water was affected by changes in the volume of rinsing water, precipitation/dissolution of secondary minerals, and Ni sorption within the anorthosite waste rock. These results also demonstrated that the storage of hemo-ilmenite waste rock on anorthosite waste rock is an effective way to reduce Ni levels in drainage waters from the Lac Tio mine materials.

The results of the physical model showed that the deviation of water along the slope of the infiltration box is largely governed by the inclination angle of the box and the applied rainfall rate. These results also showed that the distribution of infiltration within the system depends on rainfall intensity. The results of the infiltration tests also indicated that the nickel and sulphate loadings are influenced by the applied rainfall rates and that the quality of the drainage water is improved by better water diversion from the FCL. These results suggest that nickel and sulfate loads are mainly controlled by capillary barrier effects, flow paths, and flow rate.

The results of the experimental pile showed that the FCL, made of compacted finegrained non-reactive materials, led to a decrease of infiltration into the reactive materials and a deviation of the water towards the toe of the pile (made of non-reactive waste rock). The nickel release rates were of the same order of magnitude before and after the installation of the FCL on the experimental pile. The sulfate release rates before the FCL installation were also close to those obtained after the FCL placement. The small difference in nickel release rate obtained before and after the FCL installation could be partly explained by the release of Ni in the drainage water due to a decrease in the Ni sorption capacity of the waste rock over time. As a result, the FCL effectiveness was affected. This could also be explained by the low infiltration of water into the reactive waste rock resulting in a slow and gradual release of oxidation products such as nickel and sulphates compared to before the FCL installation. These results suggest that the reactivity of the waste rock remains similar before and after the FCL placement but that their nickel sorption capacity decreases over time. However, the quality of the drainage water could be considerably improved by the inclusion of several FCLs in a large waste rock pile.

All of these results provide a better understanding of the hydrogeochemical behavior of the experimental pile as a waste rock management and storage method.

Keywords : Flow control layer, contaminated neutral drainage, experimental pile, new method of management and storage of waste rock

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 Généralités sur les rejets miniers

Des quantités importantes de rejets solides et liquides sont générées lors des exploitations minières. Les principaux rejets solides générés sont les rejets de concentrateurs et les stériles miniers. Les rejets de concentrateurs sont des roches finement broyées à partir desquelles on extrait des minéraux d'intérêt commercial. Ils sont généralement entreposés en surface sous forme de pulpe dans les parcs à résidus. Les stériles miniers sont constitués de roches dépourvues de minéraux ayant une valeur économique dont l'extraction est nécessaire pour accéder au gisement de minerai. La proportion des stériles extraite afin d'accéder à la zone minéralisée représente entre 5 et 15 % du volume de la roche extraite dans les mines souterraines, contre au moins 60 % pour celles à ciel ouvert (Aubertin et al, 2008). Les stériles miniers sont entreposés en surface sous forme d'empilements appelés haldes à stériles. Ces derniers sont des ouvrages qui peuvent atteindre plusieurs centaines de mètres et contenir des centaines de mètres cube (m³) de stériles (Fala et al., 2005).

1.2 Haldes à stériles

1.2.1 Méthodes de construction des haldes à stériles

La configuration des haldes à stériles dépend principalement de la topographie du site, des conditions climatiques, de la machinerie et de la méthode de construction. Quatre techniques principales peuvent être utilisées pour construire les haldes à stériles, à savoir la méthode de déversement à la benne (*end-dumping*), la méthode de

déversement avec épandage au butoir (*push-dumping*), la méthode de déversement à la benne avec régalage (free-dumping) et la méthode de déversement avec une pelle à benne trainante (drag-line) (Morin et al., 1991; Aubertin et al., 2002, 2008); les deux méthodes les plus conventionnelles sont le déversement à la benne (end-dumping) et le déversement avec épandage au butoir (push-dumping). Le déversement avec épandage au butoir (*push-dumping*) implique que les stériles sont déposés à la surface supérieure de la pile avec des camions ou des convoyeurs, et poussés du haut de la crête avec des bulldozers. Cependant, déversement à la benne (end-dumping) implique qu'un camion à benne basculante déverse les stériles directement le long de la crête de la pile. Le choix d'une méthode dépend de la topographie du site, du type et de la taille de la machinerie disponible mais aussi des caractéristiques physico-chimiques des stériles. Ces méthodes ont un impact direct sur la structure interne de la pile (Aubertin et al., 2002, 2005; Fala et al, 2003; Anterrieu et al., 2010; Dawood et al., 2011). En effet, chaque méthode conduit à une répartition différente des matériaux (Corazao Gallegos, 2007). Cependant, la construction des haldes à stériles ne suit pas un critère bien défini, mais la conception de chaque pile repose sur un compromis entre aspects pratiques, saisons et contraintes budgétaires (Bay, 2009).

1.2.2 Structure interne des haldes à stériles

Les haldes à stériles sont constituées de roches hétérogènes dont la distribution granulométrique, la porosité et la composition minéralogique peuvent varier considérablement à l'intérieur des piles (Aubertin et al., 2005). Ces haldes à stériles peuvent être construites selon diverses méthodes qui conduisent à une distribustion différente des stériles, à la création de zones plus compactées et de zones stratifiées (Morin et al., 1991, Aubertin et al., 2002, Azam et al., 2007). Cela rend chaque pile unique en termes de configuration, de structure interne et de caractéristiques des matériaux. En conséquence, les réponses hydrogéologiques, géotechniques et géochimiques des haldes à stériles peuvent être significativement impactées par ces

facteurs (Aubertin, 2013). En effet, la structure interne d'une halde à stériles donnée a un impact majeur sur le mouvement de l'eau et de l'oxygène et par conséquent sur la qualité des eaux de drainage (Broda et al., 2014; Amos et al., 2015). Ainsi, l'écoulement de l'eau dépend de la structure interne de la halde à stériles, qui dépend de la méthode de construction utilisée pour construire la halde à stériles (Fala et al., 2003) et du type de machinerie. En général, les structures internes des haldes à stériles sont constituées des couches inclinées et stratifiées ou des poches de matériaux à grains fins ou grossiers. Ces structures internes comprennent également des couches compactées générées par le trafic d'équipement lourd et des conditions climatiques, ainsi que des couches à faible perméabilité (Morin et al., 1991; Smith et al., 2004; Stockwell et al., 2006; Andrina, 2009; Momeyer , 2014).

1.2.3 Drainage contaminé dans les haldes à stériles

Les haldes à stériles sont sujets à l'instabilité physique et chimique, pouvant entrainer des graves dommages à l'environnement et aux infrastructures avoisinantes. En effet, les stériles miniers peuvent générer des contaminants et favoriser leur migration à travers les eaux de surface et souterraines situées à proximité de ces ouvrages. La contamination de ces eaux est liée à la présence des minéraux réactifs tels que les minéraux sulfureux, dans les rejets miniers. Exposés à l'eau et à l'oxygène de l'atmosphère, les minéraux sulfureux (P.ex pyrite, pyrrhotite) s'oxydent et génèrent des eaux de drainage minier acide (DMA). Ces eaux ont habituellement un pH faible (généralement inférieur à 5) et sont chargées en métaux et en sulfates. (e.g. Lefebvre et al., 2001; Ritchie, 2003; Plante et al., 2020a). La teneur des métaux dans le DMA est souvent élevée car ils se dissolvent plus facilement dans les eaux présentant un pH bas. Par ailleurs, les effluents miniers peuvent tout de même contenir des concentrations importantes de métaux et métalloïdes tels le nickel, le zinc, le cobalt, l'arsenic et l'antimoine, qui se solubilisent à des pH près de la neutralité. On parle alors de drainage neutre contaminé (DNC) (Bussière et al, 2005,2008, 2011; Plante, 2010).

1.3 Facteurs d'influence de la libération des contaminats dans les haldes à stériles

A travers les études de lixiviation des stériles miniers en grandes colonnes, Murr (1981) a montré que les quantités de métaux libérés par ces matériaux sont proportionnelles à leur surface (granulométrie grossière ou fine) en contact avec le fluide. La qualité des effluents provenant des stériles est donc déterminée par leurs hétérogénéités physiques (granulométrie, texture, lithologie-minéralogie, composition chimique, stratification, canalisation, ségrégation, sorption et perméabilité) et l'écoulement du fluide à travers ces matériaux (Smith et al., 2004; Fala et al., 2005; Bay, 2009). En effet, les hétérogénéités physiques des stériles ont un impact sur le débit, la direction et l'uniformité de l'écoulement dans les stériles. La composition chimique et les charges massiques des contaminants dans les effluent seront donc affectées par les différences de débit générées (Bay, 2009).

Aussi, l'entreposage des stériles miniers de façon à minimiser la contamination des eaux de drainage constitue un véritable défi environnemental. Pour y parvenir, il est indispensable de prédire le comportement géochimique des stériles.

1.4 Méthodes de prédiction du DNC

La prédiction de la qualité du drainage minier généré à partir des haldes à stériles constitue un aspect important de la planification de la gestion des rejets miniers et des mesures d'atténuation des impacts environnementaux. Les données provenant d'expériences en laboratoire à petite échelle ou sur le terrain de courte durée sont souvent utilisées pour paramétrer la prédiction de la qualité du drainage des haldes à stériles (Kempton, 2012; Plante et al., 2014; Amos et al., 2015; Vriens et al., 2020).

Cette prédiction nécessite une caractérisation détaillée des propriétés des haldes à stériles et une compréhension des processus hydrogéochimiques impliqués dans la génération de drainage minier (Amos et al., 2015; Blowes et al., 2003). Toutefois, en

raison de la spécificité des sites miniers générant les stériles (des différences dans les techniques d'extraction), de l'hétérogénéité physico-chimique dans les haldes à stériles et des conditions climatiques locales, la prédiction de la qualité du drainage des stériles à l'échelle de terrain peut s'avérer difficile (Vriens et al., 2020; Jung and Navarre-Sitchler, 2018; Lahmira et al., 2017; Stockwell et al., 2006).

Il existe plusieurs outils de prédiction de la qualité des eaux de drainage qui permettent d'élaborer un plan de gestion des rejets miniers, à savoir: les essais statiques, les essais cinétiques et les modèles numériques (Plante, 2010; Plante et al., 2020b). La qualité des eaux de drainage est souvent prédite avec des essais statiques et cinétiques en laboratoire à petite échelle. Toutefois, dans ces essais (statiques et cinétiques), les conditions climatiques variables dans l'environnement sont souvent simplifiées et la sélection d'échantillons de stériles représentatifs pour ces tests est difficile dans des contextes géologiques hétérogènes (Parbhakar-Fox et Lottermoser, 2015; Price, 2009).

Les tests statiques permettent d'évaluer rapidement le potentiel de génération d'acide (PA) et le potentiel de neutralisation (NP) par des calculs chimiques et/ou minéralogiques (Chopard et al., 2015). Ne prenant pas en compte la cinétique de réaction, les essais statiques établissent le bilan entre le potentiel de génération d'acide et le potentiel de neutralisation des échantillons par des méthodes chimiques (e.g. Sobek *et al.*, 1978; Lawrence et Wang, 1996) ou minéralogiques (e.g. Lawrence et Scheske, 1997; Paktunc, 1999). En effet, les essais statiques ne peuvent que prédire le potentiel de produire un drainage acide, tandis que le taux de génération d'acide peut être estimé en utilisant les essais cinétiques (Acharya and Kharel., 2020; Dold, 2017; Banerjee, 2014). Contrairement aux essais cinétiques, les tests statiques sont peu couteux et très rapides à réaliser, fournisant ainsi des résultats généralement à l'intérieur d'une journée (Bouzahzah, 2013). Les tests cinétiques simulent les réactions se produisant sur les sites miniers, généralement à une vitesse accrue (Banerjee, 2014;

Acharya and Kharel., 2020). Les essais cinétiques consistent en des cycles répétitifs de lixiviation et de suivi, soit dans des conditions de laboratoire, soit sur le terrain. Les essais cinétiques renseignent aussi sur les taux de génération à long terme des métaux et non métaux, et sur des paramètres tels que l'acidité, que les tests statiques ne peuvent fournir (Acharya and Kharel., 2020; Dold, 2017). Au moyen des essais cinétiques, il est aussi possible de déterminer les temps nécessaires à l'épuisement des minéraux responsables de la génération d'acide et de la neutralisation (Plante, 2010). Les tests cinétiques peuvent être effectués pour compléter les tests statiques. En effet, lorsque la génération en DMA d'un rejet minier est incertaine en essai statique, ce rejet est généralement soumis à des tests cinétiques (Plante, 2010).

Les essais en cellule humide, les essais en colonne et les cellules de terrain sont des essais cinétiques les plus souvent utilisés (Plante, 2010). Cependant, les résultats en termes de qualité de l'eau et de taux de génération en éléments chimiques peuvent être significativement différents selon le type d'essai cinétique utilisé et/ou des conditions mis en place lors des tests (Hakkou et al., 2008; Plante et al., 2014). D'autre part, les essais cinétiques à l'échelle de laboratoire ne fournissent pas toujours des résultats qui sont représentatifs de la qualité du lixiviat d'une halde à stériles à grande échelle. Toutefois, les essais cinétiques prédisent la durée possible de production du DMA, les taux de génération d'acide et permettent l'évaluation des éléments libérés (Hakkou et al., 2008; Dold, 2017; Acharya and Kharel, 2020).

Avec des résultats obtenus à partir des essais cinétiques, la modélisation numérique peut être utilisée comme un outil pour extrapoler ces résultats sur l'ensemble d'une halde à stérile ou parc à résidus (Nicholson et al., 2003; Molson et al., 2005; Linklater et al., 2005). La modélisation numérique peut permettre d'étudier les processus impliqués dans la libération et l'atténuation des métaux provenant des haldes de stériles (Raymond et al., 2020). De façon générale, la prédiction de qualité des eaux de drainage

repose sur la compréhension des processus hydrogéochimiques qui sous-tendent la génération de drainage à différentes échelles (Amos et al., 2015; Blowes et al.,2003). Ces processus contrôlent la cinétique d'altération des rejets miniers, le transport hydrologique et, finalement, la chimie du drainage (Amos et al., 2015). Donc, des modèles de prédiction précis incluant tous les mécanismes pertinents sont requis pour prédire la qualité du drainage à long terme et mettre en place des mesures d'atténuation (Lapakko, 2015; Parbhakar-Fox and Lottermoser, 2015; Dold, 2017).

1.5 Méthodes de prévention de la contamination des eaux de drainage

Pour atténuer le relargage de contaminants à partir des rejets miniers, des structures de conception d'ingénierie telles que des systèmes de recouvrement, l'ennoiement (recouvrement en eau), le mélange des matériaux générateurs d'acide et de ceux consommant de l'acide, ou des techniques de co-disposition peuvent être utilisées comme mesures de prévention de la contamination des eaux (Johnson et hallberg, 2005; Acharya and Kharel., 2020; Kefeni et al., 2017; Demers and pabst, 2020). En effet, les méthodes préventives du DMA et du DNC consistent à mettre en place des recouvrements sur les parcs à résidus ou haldes à stériles. En climat humide, ces rejets miniers sulfureux (Blowes et al., 2014; Demers et al., 2017; Park et al., 2019). En effet, étant alimentée par les minéraux sulfureux, l'eau et l'oxygène, la formation du DMA et du DNC peut être minimisée en limitant ou supprimant l'apport d'un ou plusieurs de ces éléments.

1.5.1 La co-disposition et le mélange des matériaux

La co-disposition et le mélange des matériaux générateurs d'acide et ceux consommant de l'acide sont deux approches promeutteuses qui permettent de minimiser la production des eaux de drainages contaminées (Park et al., 2019). La co-disposition consiste à mélanger des résidus miniers avec des stériles afin de diminuer la perméabilité de la halde (Wilson et al. 2006; Mehling et al., 1997). En effet, bien adapté aux fins de recouvrement, le matériau composite obtenu combine la stabilité physique des stériles avec la faible conductivité hydraulique des résidus (Wilson et al. 2003). Dans le cas du mélange des matériaux, l'acide généré par les rejets miniers sulfureux est neutralisé par des matériaux alcalins (la chaux, le calcaire, etc), favorisant ainsi l'immobilisation des contaminants par précipitation (Park et al., 2019; Hakkou et al., 2009; Mehling et al., 1997).

1.5.2 Le recouvrement en eau et le recouvrement en sol

Le recouvrement en eau et le recouvrement en sol (ou autres matériaux géologiques) constituent les principaux recouvrements utilisés (Park et al., 2019; Akué et al., 2020; Demers et Pabst, 2020a). Afin de limiter la diffusion de l'oxygène, une couverture d'eau peut être maintenue au-dessus des rejets miniers sulfureux dans le cas d'un recouvrement en eau (ou ennoiement). Placés au-dessus des rejets miniers générateurs d'acide, les recouvrements en sol (barrières sèches) sont constitués de divers matériaux naturels tels que le sable, le silts/argile et le gravier (Bussière et al., 2007; Nastev et Aubertin, 2000). Des matériaux alternatifs comme les résidus à faible teneur en sulfures, des sols argileux, des substrats alcalins, des résidus organiques, des matériaux neutralisants et des résidus miniers désulfurés, peuvent aussi être utilisés en absence des matériaux naturels appropriés à proximité du site minier problématique (Taylor et al., 2006; Lottermoser, 2010; Smart et al., 2010; Zinck et al., 2010; Olds et al., 2012; Demers and pabst, 2020b).

Les barrières sèches visent à minimiser la diffusion de l'oxygène ou l'infiltration de l'eau jusqu'aux rejets miniers sulfureux (Bussière et Bernier, 2002; Kefeni et al., 2017). Les recouvrements en sol sont classés en deux types : les recouvrements en sol de type monocouches et de type multicouches, communément appelés couvertures avec effet de barrière capillaire (CEBC). Utilisé comme barrière à l'oxygène, le recouvrement de

type monocouche est constitué d'un seul matériau qui est placé au-dessus des rejets miniers. Constitués de plusieurs couches superposées de divers matériaux, les CEBC visent à minimiser la migration de l'oxygène, tout en réduisant l'infiltration de l'eau vers les rejets réactifs, et cela en maintenant au moins une des couches presque ou complètement saturée. Ces diverses couches de matériaux présentent des granulométries et des propriétés hydriques différentes. Grâce aux effets de barrière capillaire, l'une des couches d'une CEBC maintenue à un degré de saturation élévé permet de limiter la migration de l'oxygène. Ces effets de barrière capillaire apparaisent lorsqu'une couche de matériau fin est placée au-dessus d'une couche de matériau grossier. En effet, en raison du contraste de granulométrie des matériaux, et donc du contraste des propriétés hydriques, la couche de matériau fin est conservée saturée (Nicholson et al., 1989; MEND, 2001; Aubertin el al., 2002; MEND, 2004). Ce contraste crée une barrière à l'oxygène suite à la formation d'un bris capillaire. Ainsi, l'eau peut être déviée à l'interface entre le matériau grossier et le matériau fin lorsque les CEBC sont construites en pente. De ce fait, seule une partie d'eau déviée à l'interface peut percoler dans le matériau grossier sous-jacent (Aubertin et al., 2009). Afin de minimiser la percolation dans les stériles sous-jacents, les CEBC peuvent être utilisées dans les climats secs et semi-arides (Morris et Stormont, 1999). L'application d'une CEBC en climat humide nécessite la mise en place d'une couche de sable (couche de matériau fin) comme couche drainante non saturée au-dessus des stériles (couche de matériau grossier). La couche drainante non saturée vise à augmenter la diversion latérale et à retarder la percolation de l'eau dans le matériau grossier sous-jacent (Morris et Stormont, 1999). En effet, au fur et à mesure que l'eau déviée s'accumule le long de la pente, il se produit une augmentation de la pression d'eau à l'interface des matériaux grossiers et fins. Il s'en suit une percolation progressive de l'eau dans le matériau grossier sous-jacent suite à la réduction graduelle de l'effet de barrière capillaire. De cette manière, il est possible de contrôler les écoulements d'eau dans les haldes à stériles.

1.6 Construction de modèles physiques de grande dimension pour l'étude du comportement des stériles

Des études antérieures ont porté sur le comportement hydrogéologique des haldes à stériles à l'aide de modèles physiques à grande échelle. La construction d'une halde expérimentale à stériles à échelle intermédiaire (8 m x 8 m x 5 m) à la mine d'uranium de Cluff Lake en Saskatchewan au Canada a été décrite dans des études antérieures (Nichol et al., 2000, 2003, 2005). Cette halde expérimentale a été construite pour étudier les processus d'écoulement des fluides et de transport de solutés dans les stériles non saturés. Dans le cadre d'une étude d'atténuation à long terme du drainage rocheux acide (DRA), une halde expérimentale à grande échelle (480 m x 80 m x 20 m) a également été construite à la mine de cuivre-or de Grasberg en Indonésie (Miller et al., 2003a, 2003b, Andrina et al., 2003, Miller et al. 2006, Andrina et al., 2006, Andrina, 2009). Cette étude à l'échelle du terrain a été menée pour quantifier les taux de libération des métaux des stériles ainsi que leur comportement hydrologique dans des conditions de fortes précipitations. Cette étude visait également à évaluer l'efficacité de différentes méthodes de mélange de roches carbonatées avec des stériles générateurs d'acide et à vérifier l'efficacité d'une couverture imperméable pour limiter la génération du DMA. Cinq haldes expérimentales de dimension 36 m x 36 m x 10 m ont également été construites à la mine Antamina au Pérou (Corazao Gallegos, 2007 ; Bay, 2009 ; Blackmore et al., 2012 ; Harrison et al., 2012 ; Javadi et al., 2012). Cette étude à l'échelle du terrain visait à analyser la réponse géochimique et hydrologique des stériles générateurs de DNC. Dans les Territoires du Nord-Ouest, au Canada, trois haldes expérimentales (50 m x 60 m x 15 m) ont aussi été construites à la mine de diamant Diavik (Blowes et al., 2006; Amos et al., 2009; 2011; Smith et al., 2013; Bailey et al., 2016). L'étude impliquant la construction de ces trois haldes à stériles à grande échelle visait à caractériser les régimes d'écoulement, de transport thermique et de gaz, ainsi que les processus géochimiques et microbiologiques dans ces haldes à stériles dans un environnement de pergélisol continu. La construction d'une halde expérimentale à stériles (0,71 ha, 15 m de hauteur) constituée de matériaux potentiellement générateurs d'acide a également été réalisée à la mine d'or Cadia Hill en Australie (Rohde, 2009; Rohde et Williams 2009). L'objectif de cette étude de terrain était de comparer les taux d'infiltration et de ruissellement des eaux de drainage de cette halde à stériles potentiellement génératrice de DMA. En général, les résultats de ces tests à l'échelle du terrain sont considérablement influencés par la méthode de construction et les dimensions de ces tests ainsi que les paramètres de suivi et leur fréquence d'échantillonnage (Corazao Gallegos, 2007). Cependant, aucune des configurations de ces différentes haldes à stériles expérimentales ne visait à contrôler l'infiltration et l'écoulement non saturé de l'eau à l'intérieur des haldes, comme le préconise la nouvelle approche décrite ci-dessous.

1.7 Halde inclinée avec couche de contrôle des écoulements

Pour prévenir la contamination de l'eau, la construction des haldes à stériles peut être planifiée de façon à limiter les infiltrations d'eau et de favoriser l'écoulement des eaux infiltrées vers les zones non réactives ou hors de la halde (Aubertin et al, 2005, 2009, 2013 ; Fala et al., 2005; Aubertin, 2013). De façon théorique, l'infiltration d'eau dans les haldes (et par conséquent, la production de drainage contaminé) peut être minimisée en utilisant des couches inclinées de matériaux fins et compactés lors de la construction des haldes à stériles (eg, Aubertin, 2013; Fala et al., 2005). Ces couches inclinées sont appelées couches de contrôle d'écoulement (CCE). Pourvues des propriétés hydrogéologiques nécessaires (ex: conductivité hydraulique), ces couches visent à limiter la percolation de l'eau à l'intérieur de la halde et à diriger l'eau infiltrée vers l'extérieur de la halde (ex. Aubertin et al., 2005; Rohde et Williams, 2009). Lors de la construction de stériles (figure 1.1). Aussi, il s'établit des effets de barrière capillaire entre la couche de matériau fin et dense de la CCE et les stériles plus lâches (Broda et al., 2013; Dawood et Aubertin, 2009; Fala et al., 2005). La CCE permet de dévier l'eau sur une
distance qui dépend de ses propriétés hydrogéologiques, de son épaisseur et de son angle (Aubertin et al., 2005; Aubertin, 2013).



Figure 1.1 Configuration de halde inclinée avec couches de contrôle des écoulements (Aubertin, 2013)

Ainsi, pour contrôler l'infiltration d'eau et minimiser la contamination dans les haldes à stériles, une nouvelle méthode d'entreposage des stériles miniers utilisant des bancs compactés inclinés a été proposée. La configuration proposée repose sur la mise en place d'une couche de contrôle d'écoulement constituée de matériaux non réactifs compactés à grains fins qui contribuent à dévier l'eau vers le pied de la pile, constituée de stériles non réactifs (Aubertin et al., 2002, 2005, 2009; Aubertin, 2013; Bussière et al., 2015).

Pour évaluer la performance de cette approche dans les conditions du terrain, une halde à stériles expérimentale a été construite sur le site de la mine Lac Tio, près de HavreSaint-Pierre (Québec, Canada). Des tests en laboratoire (modèle physique et colonnes) ont également été mis en place afin d'évaluer cette nouvelle technique de prévention de la contamination des eaux de drainage.

1.8 Présentation du site d'étude et justification du projet

Le site de la mine Lac Tio est celui qui a été retenu pour la construction d'une halde expérimentale. Cette mine est située à 43 km au nord-est de Havre-Saint-Pierre, sur la Côte-Nord, au Québec. C'est une mine à ciel ouvert où la compagnie Rio Tinto Fer et Titane y exploite, depuis 1950, un gisement d'hématite-ilménite (Fe₂O₃ et FeTiO₃ respectivement) communément appelé hémo-ilménite. Le gisement Lac Tio est une large bande d'hémo-ilménite enfouie à l'intérieur d'un complexe anorthositique. La teneur de coupure du minerai acheminé à l'usine de transformation a été fixée à 82 % d'hémo-ilménite. À des teneurs plus faibles, le mélange hémo-ilménite et d'anorthosite est considéré comme de la roche stérile sans valeur économique et entreposé dans les haldes du site.

Les stériles de la mine Lac Tio sont composés en grande partie de gangue anorthositique et de minerai d'hémo-ilménite. L'hémo-ilménite et l'anorthosite (plagioclase calcique proche de la labradorite; Pepin, 2009) sont les principaux minéraux qui constituent les stériles. Ils sont aussi composés de chlorite, mica, pyroxène, sulfures et spinelle, en concentrations de l'ordre de traces à quelques % (Plante, 2010). Différents types de stériles sont entreposés dans les haldes du site. Ils diffèrent soit par leur concentration en minerai (hémo-ilménite) et en anorthosite, par leur degré d'oxydation (relatif principalement à leur durée d'entreposage), ou par leur provenance dans la mine. Certaines haldes à stériles génèrent un effluent contaminé en nickel dont la concentration est occasionnellement au-dessus de 0,50 mg/L, norme environnementale prescrite dans la Directive 019 (Plante, 2010; Bussière et al., 2011).

Une caractérisation détaillée au laboratoire des propriétés de stériles miniers considérés comme représentatifs des matériaux entreposés dans les haldes a été effectuée au cours d'études antérieures (Pépin, 2009; Plante, 2010). Ces dernières ont montré que le Ni est essentiellement associé aux sulfures (pyrite nickélifère et millérite), mais aussi en traces dans les silicates. Il a été aussi démontré que les sulfures sont généralement associés à l'hémo-ilménite, mais peuvent également être présents dans la gangue (Plante, 2010).

Le comportement géochimique des stériles de la mine Tio a été étudié par des essais cinétiques en laboratoire et sur les cellules expérimentales de terrain (Bussière et al, 2008; 2011; Pepin, 2009; Plante, 2010; Demers et al., 2013). Les essais cinétiques ont démontré que les stériles ne sont pas générateurs d'acide à long terme, l'acide étant neutralisé par une quantité suffisante de minéraux de la gangue (principalement un plagioclase calcique apparenté à la labradorite). Le pH des eaux de drainage se situe près de la neutralité et le nickel présent dans ces eaux est généré par l'oxydation des sulfures présents en traces dans les stériles et non par des silicates (Bussière et al, 2005, Pépin, 2009, Plante, 2010). Ces travaux ont aussi montré que le Ni généré lors l'oxydation des sulfures est plus sorbé sur les stériles fraichement produits que sur les stériles altérés, suggérant que le potentiel de rétention diminue avec l'altération (Pepin, 2009; Plante, 2010, 2011b). La différence de teneurs en Ni dans les eaux de drainage entre les stériles frais et altérés peut s'expliquer par le phénomène de sorption. Il a été démontré que le Ni est sorbé sur les surfaces des stériles sous forme d'hydroxyde de nickel Ni(OH)₂ et que l'hémo-ilménite et les plagioclases sont les principaux minéraux à l'origine du phénomène de sorption (Plante et al., 2011b). Le délai avant l'apparition du Ni dans les eaux de lixiviation peut s'expliquer par une saturation progressive des sites de sorption au fur et à mesure que le Ni est généré par l'oxydation des sulfures (Plante et al, 2011b; Demers et al., 2013). Les résultats ont également démontré une certaine proportionnalité entre les teneurs en sulfures et en Ni avec celle de l'hémoilménite dans les stériles. Plus les teneurs en hémo-ilménite sont élevées dans les stériles, plus ces derniers contiennent de sulfures et de nickel, et plus ils peuvent générer du DNC.

Les études antérieures (Bussiere et al., 2005; Pepin, 2009; Plante, 2010; Plante et al., 2011 a, b; Demers et al., 2011) ont permis d'appréhender des mécanismes de génération de DNC à la mine Lac Tio. L'évaluation des méthodes novatrices de construction des haldes à stériles visant à limiter la production des contaminants et le volume d'eau de drainage à gérer semble désormais possible et nécessaire. Plusieurs scénarios de déposition des stériles visant à minimiser l'infiltration et l'écoulement de l'eau à l'intérieur des haldes ont été ciblés suite aux modélisations numériques (Aubetin et al, 2013; Broda et al., 2013). La validation de telles approches par des modèles physiques de grande dimension est indispensable maintenant.

1.9 Objectifs et hypothèses de la thèse

L'objectif général du projet dans lequel s'inscrit cette thèse est d'étudier une nouvelle méthode de construction des haldes à stériles. Cette méthode vise à inclure dans la halde des couches inclinées formées de stériles non générateurs de DNC plus fins et compactés (couches de contrôle des écoulements ou CCE). À partir de cette disposition des couches, on vise à démontrer qu'il est possible de contrôler l'infiltration et l'écoulement de l'eau vers les zones non génératrices de DNC ou hors de la halde et de diminuer de façon considérable la génération du DNC.

L'objectif principal de cette étude est d'évaluer l'impact de la structure de la halde expérimentale sur le comportement géochimique des stériles.

L'aspect hydrogéologique sera étudié de façon approfondie dans une autre étude dont les résultats seront complémentaires à cette étude. Les objectifs spécifiques visés par ce projet de thèse peuvent se résumer à :

1. Vérifier si la mise en place d'une CCE a réellement un impact sur la génération de DNC;

2. Comprendre l'influence d'effet d'échelle sur différents facteurs qui affectent le comportement géochimique des stériles miniers;

3. Évaluer le comportement hydrogéochimique de la halde expérimentale construite avec une nouvelle approche de déposition des roches stériles;

4. Comprendre les mécanismes qui contrôlent la qualité d'eau.

Nos hypothèses s'énoncent comme suit :

- Les stériles miniers de la mine Lac Tio contenant de l'hémo-ilménite et du soufre sulfure (minéralisés) seraient potentiellement générateurs de DNC en Ni;

- Les stériles anorthositiques (pauvres en hémo-ilménite et en soufre) ne génèrent pas de DNC;

 L'utilisation des stériles non générateurs de DNC dans les couches de contrôle des écoulements (CCE) limiterait le contact entre l'eau et les stériles générateurs de DNC et pourrait permettre de contrôler la contamination des eaux.

1.10 La portée de la thèse

Pour atteindre les objectifs visés, cette thèse a été séparé en trois phases de recherche. La première phase a porté sur les essais cinétiques en colonnes au laboratoire. La deuxième phase a consisté à la conception, construction et au suivi hydrogéochimique d'un système expérimental à l'échelle intermédiaire de laboratoire (modèle physique) alors que la troisième phase s'est focalisée sur le suivi hydrogéochimique d'une halde expérimentale à l'échelle de terrain.

Essais cinétiques en colonnes au laboratoire

Les essais cinétiques en colonnes au laboratoire ont été réalisés pour simuler le comportement géochimique des stériles utilisés lors de la construction de la halde expérimentale. Ces essais cinétiques ont été effectués en laboratoire au moyen de quatre colonnes remplies de stériles d'anorthosite et d'hémo-ilménite. Les stériles ont été lixiviés en versant manuellement une quantité donnée d'eau désionisée une fois toutes les deux semaines au-dessus du sommet de chaque colonne, ouverte sur l'atmosphère. Ces essais cinétiques en colonnes ont ainsi impliqué plusieurs cycles mensuels de mouillage/séchage. Le lixiviat collecté au bas de chaque colonne a été analysé pour différents paramètres physico-chimiques tels que le pH, le potentiel d'oxydoréduction (Eh), la conductivité électrique (EC), l'acidité, l'alcalinité et des concentrations en éléments chimiques.

Système expérimental à l'échelle intermédiaire de laboratoire

Les tests d'infiltration en laboratoire ont été réalisés sur un système expérimental (modèle physique) afin de comprendre les facteurs qui influencent la performance de la halde expérimentale construite à la mine Lac Tio. Le modèle physique a été construit au laboratoire pour simuler la structure interne de la halde expérimentale. Ce modèle physique a été constitué d'une boîte (2,47 m (longueur) x 0,6 m (largeur) x 1,5 m (hauteur)) en acier et en plexiglas remplie avec trois couches de matériaux différents, dont une CCE (une couche d'anorthosite concassée compactée sur une couche de sable compactée) et une couche de matériaux grossiers (hémo-ilménite et stériles d'anorthosite). Les tests d'infiltration réalisés sur le modèle physique ont permis d'étudier l'impact de certains facteurs clés tels que l'angle d'inclinaison, ainsi que l'intensité des pluies sur la distribution et la qualité de l'eau infiltrée dans le système.

Essai de terrain

Une halde expérimentale à stériles a été construite sur le site de la mine Lac Tio entre l'été 2014 et l'automne 2015. La construction de la halde expérimentale est détaillée au chapitre 2. Aussi, une couche de contrôle des écoulements (CCE), légèrement inclinée, constituée de matériaux non réactifs compactés et à grain fin, a été placée à la surface de cette halde expérimentale. Les propriétés hydrogéologiques et géochimiques des matériaux utilisés lors de la construction de la halde expérimentale ont été caracterisées au laboratoire. Un suivi de la qualité du lixiviat et des débits d'eau collectée à la base de la halde expérimentale a été réalisé pendant trois ans. Les données recueillies ont été utilisées pour évaluer l'efficacité de cette nouvelle méthode de déposition des stériles utilisant des bancs compactés inclinés.

1.11 Structure de la thèse

La présente thèse comprend huit chapitres dont un chapitre d'introduction. Ce premier chapitre fournit les généralités sur les rejets miniers et le site d'étude, et présente la justification du projet de recherche, les objectifs et les hypothèses de ce projet. Le chapitre 2 décrit la conception et la construction de la halde expérimentale ainsi que la mise en place de l'instrumentation. Le chapitre 3 présente la description des deux modèles physiques de laboratoire utilisés dans cette étude (colonnes et le système expérimentale à 2D) ainsi que les techniques de caractérisation des matériaux utilisés dans les essais de laboratoire et de terrain. Les trois chapitres suivants (chapitres 4 à 6) sont rédigés sous forme d'articles de revues scientifiques avec comité de lecture, dont deux ont été publiés dans des journaux internationaux « Geochemical Exploration » (chapitre 4) et « Applied Geochemistry » (chapitre 5) et le dernier (chapitre 6) est en voie d'être soumis dans ces journaux. Le chapitre 4 traite des résultats des essais cinétiques en colonne au laboratoire et de la caractérisation des stériles utilisés. Le chapitre 5 présente les résultats sur l'analyse des paramètres (taux de précipitations et angle d'inclinaison) qui influencent la distribution de l'écoulement d'eau dans les matériaux et la qualité du lixiviat recueilli au bas du modèle physique. Le Chapitre 6 traite des résultats du suivi hydrogéochimique de la halde expérimentale construite sur le site de la mine Lac Tio. Les travaux présentés dans ce chapitre visent à évaluer le comportement hydrogéochimique de cette halde expérimentale. Ce chapitre met aussi l'accent sur l'évaluation de l'efficacité de la couche de contrôle des écoulement placée sur la halde expérimentale, notamment ses implications sur la quantité et qualité de l'effluent collecté à la base de ladite halde. Le chapitre 7 présente une comparaison des résultats obtenus au laboratoire (essais en colonnes et modèle physique) et sur le terrain (halde expérimentale). Enfin, le chapitre 8 présente les principales conclusions issues de cette thèse et quelques recommandations pour les futurs travaux de recherche.

1.12 Avancements et contributions scientifiques anticipées

Les travaux de recherche présentés dans cette thèse ont contribué au développement d'un nouveau concept d'entreposage des roches stériles visant à limiter ou prévenir la génération de DNC et à contribuer à la restauration progressive des haldes. De ce fait, les résultats obtenus permettront de vérifier la possibilité de contrôler l'infiltration d'eau et la génération de contaminants dans les eaux de drainage en plaçant une couche inclinée de matériel non-générateur fin et compacté (couche de contrôle des écoulements(CCE)) au-dessus des stériles générateurs de DNC. Ce travail de doctorat permettra donc d'améliorer des connaissances fondamentales sur le comportement hydrogéochimique d'une halde à stériles expérimentale instrumentée construite selon la configuration proposée. Ce nouveau concept de construction des haldes pourra être applicable à d'autres sites miniers ayant des stériles potentiellement générateurs de drainage contaminé.

D'autre part, les résulats des essais en colonnes permettront de cerner davantage le comportement hydrogéochimique des différents types de stériles de la mine Lac Tio (à prédominance anorthosite ou hémo-ilménite) séparément et juxtaposés. Les résultats des essais d'infiltration en laboratoire effectués dans le modèle physique permettront de comprendre les facteurs qui influencent la performance de la CCE de la halde expérimentale construite à la mine Lac Tio (Québec, Canada). Et enfin, les résultats obtenus à partir des essais de terrain (halde expérimentale) et de laboratoire (colonnes et modèle physique) permettront aussi de mieux comprendre les effets d'échelle dans les études de prédiction du comportement géochimique de stériles générateurs de DNC.

CHAPITRE 2

DESCRIPTION DU DESIGN ET DE LA CONSTRUCTION DE LA HALDE EXPÉRIMENTALE À STÉRILES

Dans ce chapitre, il y sera évoqué la raison du choix du site sur lequel a été construite la halde expérimentale. La conception et la construction de la halde expérimentale y seront aussi décrites ainsi que la mise en place de l'instrumentation.

2.1 Conception et instrumentalisation de la halde expérimentale à stériles

La conception se résume en une halde expérimentale d'une longueur de 60 m, d'une largeur de 10 m au sommet (et 35 m à la base) et d'une hauteur de 7 m, avec une pente de 5 %, construite sur six lysimètres de dimension 10 m x 10 m (surfaces de collecte des eaux de drainage) à la base. Le choix des dimensions de la halde expérimentale repose sur les études antérieures (Nichol et al., 2000, 2003, 2005; Blowes et al., 2006; Miller et al., 2003a,b, 2006; Andrina et al., 2003, 2006; Carazo Gallegos, 2007). Ces études ont mis en relief des dimensions qui conduisent aux résultats et observations qui sont représentatifs de ceux des haldes à grande échelle. Cette halde expérimentale est aussi constituée d'une rampe possédant une pente à 10 % permettant le déversement des stériles selon le mode de déversement avec épandage au butoir (push-dumping). Contenant plus de 5% d'hémo-ilménite (oxyde de fer et de titane), les stériles minéralisés générateurs de DNC constituent le cœur de la halde. L'extrémité de la halde est par contre occupée par de l'anorthosite non réactive (contenant moins de 5% d'hémo-ilménite et moins de 0.1% de soufre). La surface de la halde est surmontée de la couche de contrôle des écoulements (CCE) permettant de dévier l'eau latéralement vers le bas de la pente. Dans la conception initiale de la halde expérimentale, la CCE consistait en une couche de 1 m d'anorthosite concassée à moins de 10 mm. Cependant, il s'est imposé un problème de production de l'anorthosite concassée aux propriétés visées initialement. En raison de problèmes d'opération, le manque de matériel a été comblé par du sable aux propriétés adéquates. Ainsi, la CCE consiste maintenant en une couche de sable d'une épaisseur de 50 cm et une couche de 25 cm d'anorthosite concassée à moins de 10 mm (voir Figure 2.1).



Figure 2.1 Configuration de la halde expérimentale

Différents types d'instruments ont été installés dans la halde expérimentale afin de collecter des données spécifiques nécessaires à la compréhension des processus hydrologiques et géochimiques qui y contrôlent la qualité de l'eau. La Figure 2.1 présente la configuration de la halde expérimentale ainsi que l'instrumentation installée. L'instrumentation mise en place dans la halde visait à faire un suivi de la qualité et la quantité d'eau sortant de la base de cette halde. Six lysimètres ont été installés au fond de la halde expérimentale afin de collecter les eaux ayant percolé jusque là et de les acheminer vers six débimètres à auget installés à proximité. Chaque

débimètre installé a permis de mesurer les volumes d'eau recueillis à partir de chaque lysimètre. Les eaux collectées à la base de la halde expérimentale ont été échantillonnées pour en déterminer la composition chimique. La qualité des eaux de drainage a été donc déterminée selon la position de chaque lysimètre.

Plusieurs capteurs ont été installés à différentes profondeurs et emplacements de la halde expérimentale afin de suivre la distribution de la teneur en eau et évaluer les écoulements d'eau. L'instrumentation hydrogéologique, constituée des sondes de teneur eau GS3 (Decagon, 2016), des sondes de succion MPS-2 Decagon (capteur de température et du potentiel hydrique) et des câbles de mesure distribuée de la température DTS (distributed temperature sensing), a été installée près de la surface et à la base de la halde expérimentale (Figure 2.2). Au total, 42 sondes de teneur en eau GS3 (Decagon, 2017) ont été installées près de la surface de la halde expérimentale, de part et d'autre de l'interface entre la CCE et les stériles (30 capteurs) et à sa base (12 capteurs). Un total de 24 sondes de succion MPS-2 (Decagon, 2017) ont également été placées près de l'interface entre la CCE et les stériles (12 capteurs) et à la base de la halde expérimentale (12 capteurs). Après avoir été installées, ces sondes de teneur eau et de succion ont été connectées à des enregistreurs de données (Em50, Decagon Devices). Disposés en quatre rangées, plus de 1000 m de câbles DTS ont été enfouis, à trois profondeurs (à la base et en surface) dans les matériaux de la halde expérimentale. L'installation des câbles DTS dans la halde expérimentale visait à obtenir des informations sur la distribution de teneur en eau le long desdits câbles (Broda et al., 2013 et Wu et al., 2017). En vue de faire des investigations géophysiques, un total de 192 électrodes circulaires en acier inoxydable (1 cm d'épaisseur, 10 cm de diamètre) ont été installées dans la couche de sable de la CCE (96 électrodes) et dans la couche de sable à la base de la halde expérimentale (96 électrodes) (Dimech et al., 2017; Dimech, 2018; Dimech et al., 2019). L'instrumentation installée dans chaque lysimètre (sondes de teneurs en eau, des sondes de succion, sondes de géophysique et des câbles

DTS) a permis de recueillir des données susceptibes de servir à développer un modèle conceptuel des processus hydrogéochimiques qui contrôlent le relargage et l'atténuation du Ni dans les eaux de DNC de la mine Tio.



Figure 2.2 Débitmètre à auget (a), sonde de modèle GS3 (b) et sondes MPS-2 Decagon (c)

2.2 Choix du site de construction de la halde expérimentale et préparation

La mine Lac Tio a été choisie comme site de construction de la halde expérimentale du fait que les stériles miniers de ce site ont été largement caractérisés dans les études antérieures. En effet, les travaux de caractérisations minéralogiques, géochimiques et hydrogéologiques qui ont été réalisés sur les stériles de la mine Tio sont nombreux. Ces travaux ont permis de comprendre les mécanismes de génération de DNC en Ni

par les stériles de la mine Tio (p.ex. Bussière et al., 2008; 2011; Demers et al., 2011; Pepin et al., 2008; Plante et al., 2010; 2011, Peregoedova et al., 2013).

La préparation d'une surface (approximativement de 150 m de long et de 50 m de large) devant accueillir la halde expérimentale a débuté par la mise à niveau de celle-ci (la surface). Cette mise à niveau a été réalisée suite à une excavation allant jusqu'à 0,8 m dans certaines zones et un remblayage de stériles concassés d'autres zones creuses d'environ 1 m (Figure 2.3). Le nivellement de la surface a été suivi par la localisation des positions (arpentage) des six (6) lysimètres devant être construits à la base de la halde expérimentale.



Figure 2.3 Nivellement de la surface devant accueillir la halde expérimentale

2.3. Construction et instrumentation des lysimètres

La construction de la fondation de la halde expérimentale a débuté avec celle des six lysimètres de dimension 10 m x 10 m. Les six lysimètres ont été construits l'un après

l'autre dans la direction longitudinale de la halde expérimentale. Cette direction est aussi celle de l'écoulement des eaux de drainage sur la surface de la halde expérimentale suivant une pente de 5%. Ces lysimètres à la base de la halde expérimentale permettront de récolter des volumes d'eau qui percoleront à travers les matériaux stériles de cette halde.

2.3.1 Base des lysimètres et installation de la géomembrane

La construction du premier lysimètre (10 m x 10 m) a nécessité la mise en place d'une première couche de sable d'environ 100 tonnes constituant sa base (Figure 2.4).



Figure 2.4 Mise en place de la couche de sable de protection inférieur du lysimètre 1

Après la mise en place d'une première couche de sable sur une surface de 10 m x 10 m , un drain de collecte des eaux de drainage a été installé dans une tranchée d'environ 10 cm. La tranchée a été creusée dans la couche de sable qualifiée de protection inférieure du lysimètre (Figure 2.5).



Figure 2.5 Installation du drain de collecte des eaux dans un des six lysimètres

Le drain permettra de convoyer les eaux de drainage récoltées à partir du lysimètre vers un débitmètre. Après avoir installé le drain, la tranchée a été recouverte de sable et la couche de sable de protection inférieure a été compactée en utilisant un compacteur manuel (Figure 2.6). De cette manière, la surface de base (10 m x 10 m) de chacun des six lysimètres a été successivement construite sur une longueur totale de 60 m.



Figure 2.6 Compaction de la couche de sable de protection inférieure du lysimètre

Ensuite, une géomembrane en polyéthylène haute densité (PEHD) de 72 m de long et 10.5 m de large a été découpée en six panneaux de dimension légèrement supérieure à 10 m x 10 m (dimension de chaque lysimètre). Les six panneaux ont été placés l'un après l'autre sur chaque surface de base (couche de sable compactée) des six lysimètres de 10 m x 10 m, avec un chevauchement entre eux (Figure 2.7 a). Afin de faire passer un drain de collecte des eaux de drainage à travers chaque panneau de la géomembrane, ce dernier a été perforée d'une section cylindrique. Par la suite, chaque panneau de la géomembrane a été soigneusement raccordé au drain de collecte des eaux de drainage à l'aide d'un passe-paroi (Figure 2.7).



Figure 2.7 Mise en place de la géomembrane sur la couche de sable de protection inférieure du lysimètre 1 (a) et son raccordement au drain de collecte des eaux de drainage (b)

Une crépine a été également raccordée au passe-paroi du drain. Elle a été enveloppée par un géotextile afin d'éviter le colmatage du drain de collecte (Figure 2.8).



Figure 2.8 Mise en place de la crépine

La géomembrane installée à la base de la halde expérimentale permet de récolter et d'empêcher les eaux de drainage de pénétrer en dessous des lysimètres. L'installation de la géomembrane permet donc de rendre les lysimètres imperméables. Elle constitue une activité clé lors de la construction de la halde expérimentale car une fuite de la géomembrane pourrait avoir un impact significatif sur les résultats de l'étude. Aussi, des tests d'étanchéité ont été réalisés sur les drains des lysimètres (Figure 2.9). Les conditions d'étanchéité vérifiées par ces tests ont été satisfaisantes.



Figure 2.9 Test d'étanchéité des drains des lysimètres

2.3.2 Couche protectrice de la géomembrane

Au dessus de chaque panneau de géomembrane, une couche de sable de protection supérieure du lysimètre a été mise en place en utilisant une pelleteuse. Cette couche de sable a été ensuite compactée en utilisant un compacteur manuel. Cette couche de sable de protection supérieure du lysimètre permet principalement d'éviter un contact direct entre la géomembrane et les roches stériles qui seront placées sur chaque lysimètre. Cela empêche donc toute perforation de la géomembrane. Une tranchée d'environ 10 cm a été ensuite creusée dans la couche de sable de protection supérieure du lysimètre pour la mise en place de sondes de teneur en eau volumique et de succion (Figure 2.10).



Figure 2.10 Installation de la sonde de teneur en eau volumique '' Decagon GS3'' dans la couche de sable de protection supérieure



Figure 2.11 Compaction de la couche de sable de protection supérieur du lysimètre 1 à l'aide d'une plaque vibrante

Une fois la couche de sable de protection supérieur de lysimètre a été compactée (Figure 2.11), les électrodes de géophysique y ont été installées ainsi que leurs fils. Les fils sont placés sous les électrodes de géophysique pour réduire les risques de rupture de la jonction lors de la mise en place des stériles (Figure 2.12).



Figure 2.12 Installation des électrodes de géophysique et de leurs fils

Des tranchées d'environ 10 cm de profondeur ont ensuite été creusées dans la couche de sable compactée de protection supérieure du lysimètre pour permettre l'installation des câbles DTS (Figure 2.13). Ensuite, les câbles DTS ont été mis en place dans les tranchées puis recouvert avec du sable pour assurer leur protection.



Figure 2.13 Tranchées pour l'installation du câble DTS

Une nouvelle couche de sable a ensuite été mise en place pour protéger des fils des électrodes de géophysiques et les câbles DTS installés dans les lysimètres.

Une rampe d'accès aux camions a été également construite en amont du lysimètre 1 afin de permettre le transport et le dépôt des stériles sur les lysimètres. De ce fait, plusieurs camions remplis de stériles ont été utilisés pour déverser les matériaux sur la rampe. Avant la fin de la mise en place de la rampe d'accès, une couche de stériles minéralisés relativement fins pour la protection des câbles DTS et des fils des électrodes de géophysique, a été mise en place avec soin sur les lysimètres 1 à 5 en utilisant une excavatrice (Figure 2.14). Toutefois, dans cette couche, on note aussi la présence des roches stériles de l'ordre de 60 à 70 cm. Sur le lysimètres 6, c'est essentiellement une couche de protection de stériles anorthositiques, constituée en majorité de particules grossières (allant jusqu'à 70-80 cm), qui y a été mise en place. La couche de protection des stériles minéralisés et anorthositiques a été installée sur les lysimètres pour protéger l'instrumentation (cables DTS et fils des électrodes de géophysique) contre des dommages d'impact pouvant être occasionnés lors du déversement des stériles par les camions à partir de la rampe. En effet, durant ce déversement des stériles, des gros rochers ou de roches pointues vont basculer et rouler sur la surface des lysimètres.



Figure 2.14 Mise en place d'une couche de stériles minéralisés de protection sur les lysimètres à l'aide d'une excavatrice

2.3.3 Installation des débimètres à augets

Six débitmètres à bascule ont été installés pour mesurer le débit d'eau sortant des lysimètres. Pour installer ces six débimètres à auget, des tranchées ont été creusées au préalable à l'aide d'une pelle mécanique, au bas côté des lysimètres (lors de leur construction) (Figure 2.15).



Figure 2.15 Excavation pour l'installation des débitmètres

Les débimètres à auget (en acier) ont installées dans les tranchées et fixés sur des dalles de ciment pour permettre leur assise (Figure 2.16a). Ensuite, des débitmètres ont été recouverts avec des boîtiers de protection. Ces boîtiers de protection des lysimètres ont été connectés aux tuyaux de drainage (en PEHD de 5 cm de diamètre intérieur) issus des lysimètres (Figure 2.16b).



Figure 2.16 Installation d'un débitmètre à bascule

Après l'installation des débitmètres pour les six lysimètres, les fils des sondes de mesure des teneurs en eau et de succion installés dans les lysimètres ansi que ceux des débimètres ont été connectés à des modules d'enregistrement (dataloggers). Ces dataloggers permettent d'enregistrer de façon continue des données des sondes classiques (teneurs en eau et succion) et les débits à la sortie des lysimètres grâce aux débimètres à auget dont chaque basculement correspond à un volume d'eau de 1L. Afin de ne pas les exposer aux intempéries, ces dataloggers ont été mis dans des boîtes de protection installés sur poteau (Figure 2.17).





2.4. Construction de la halde expérimentale par la méthode de push-dumping

Le déversement des stériles du haut de la rampe d'accès au moyen des camions-bennes de 100 tonnes a commencé après la mise en place, au dessus des lysimètres, de la couche de protection de l'instrumentation constituée des stériles. Les stériles étaient déposés au sommet de la rampe d'accès par les camions-bennes, puis poussés par un bulldozer vers le bas de la pente de la halde expérimentale en construction (Pushdumping) (Figure 2.18). Les bermes latérales de sécurité pour les camions-bennes étaient également aménagées par le bulldozer au cours de la construction du cœur de la halde expérimentale. Lors du recouvrement progressif des lysimètres avec les stériles par push-dumping, la pente de la halde expérimentale en construction était souvent ajustée à 5 % au moyen d'un bulldozer sur la base des repères d'arpentage. Les stériles étaient généralement fins, avec des grosses particules de taille de l'ordre de 30 à 50 cm, allant jusqu'à 80-90 cm dans certains rares cas. Dans la mesure du possible, les grosses particules étaient en général envoyés par le bulldoser sur les côtés de la halde en construction. Les stériles utilisés provenaient d'une partie de la halde Petit-Pas située sur le site de la mine Tio.



Figure 2.18 Déversement de stériles du haut de la rampe d'accès à l'aide d'un camion de 100 tonnes (a) et utilisation d'un bulldozer pour les pousser vers le bas

Après le remblayage de l'ensemble de la surface de la halde expérimentale avec environ 30 cm de stériles, sa surface a été uniformisée et des repères (lignes) pour l'installation à venir des câbles DTS ont été indiquées (Fig 2.19a).



Figure 2.19 Repères sur la surface des stériles de la halde pour l'installation future des câble DTS (a) et mise en place du câble DTS dans les stériles (b)

Par la suite, une excavation des tranchées d'environ 30 cm de profondeur a été faite à l'aide d'un tracteur tout le long de la surface de la halde uniformisée afin d'installer des câbles DTS dans les stériles du haut de la halde (Fig 2.19b). Après la mise en place du câble dans les tranchées, ces dernières ont été remblayées avec des stériles à l'aide d'une pelleteuse et la surface de la halde a été nivelée au moyen d'un tracteur. Après le nivellement de la surface de la halde, des tranchées de 30 et 10 cm ont été creusées sur la surface nivellée des stériles, au centre, vis-à-vis des six lysimètres (Figure 2.20b). Puis, dix-huit (18) sondes de mesure de la teneur en eau volumique, de la température et de la conductivité électrique (GS3; Decagon Devices Inc., 2017a) et succion (MPS-2; Decagon Devices Inc., 2017b), raccordées à des fils, ont été installées dans ces tranchées (Figure 2.20b).



Figure 2.20 Tranchées creusées dans les stériles du haut de la halde (a) et installation des sondes de teneur en eau et de succion dans ces tranchées (b)

2.4.1 Construction des bermes

Deux bermes de 2 m de haut ont été érigées de part et d'autre (à gauche et à droite), le long de la surface de la halde expérimentale (du haut vers le bas de la pente) (Figure 21). Une autre berme de la même hauteur a été placée au bas de la pente de la halde (2.21a). Ces bermes ont été surélevées d'un mètre en prévision de la mise en place de la couche de contrôle des écoulements (CCE) sur la halde expérimentale. Hormis l'aspect sécuritaire, ces bermes permettent aussi de border la halde expérimentale, de circonscrire les eaux de ruissellement et de les diriger vers le bas de la pente.



Figure 2.21 Aperçu de la surface de la halde expérimentale bordée par les bermes de gauche, de droite et de l'avant (a) et mise en place des bermes de sécurité (b)

2.4.2 Construction des bermes

Une des bermes latérales de la halde expérimentale a également été utilisée comme un emplacement sur lesquel ont été posées des boîtes de protection des modules d'enregistrement des données de sondes conventionnelles. En effet, les sondes de teneur en eau volumique et de succion, installés vis-à-vis de chaque lysimètre dans les stériles mais aussi dans la CCE plus tard, ont été connectés à des dataloggers. Ces dataloggers ont été mis dans des boîtes de protection qui ont été installés le long de la berme latérale droite suivant la position des lysimètres (Figure 2.22).



Figure 2.22 Boîte de protection des modules d'enregistrement des données de sondes de teneur en eau et de succion, posée sur la berme latérale droite

2.5. Mise en place de la couche de contrôle des écoulements

Une couche de contrôle des écoulements (CCE) a été placée sur la surface de la halde expérimentale entre le 2 et 20 septembre 2015 afin de minimiser l'infiltration des eaux de pluie dans les stériles réactifs sous-jacents et de réduire la génération de DNC. Cette couche de contrôle des écoulements a été conçue de façon à être composée d'une couche de sable compacté d'une épaisseur de 60 cm d'épaisseur, recouverte d'une couche de 30 cm de stériles d'anorthosite concassée compactée (tamisée à <10 mm). La construction de la CCE a débuté avec la mise en place sur la surface de la halde expériementale, d'une première levée de sable provenant d'une sablière située à environ 40 km au sud de la mine Lac Tio. Ensuite, le nivellement et la compaction de cette première levée de sable ont été réalisés à l'aide d'une nivelleuse et d'un compacteur à rouleau, respectivement (Figue 2.23). Le sable étant humidifiée, cela a permis d'atteindre la compaction désirée soit une couche de sable compactée d'une épaisseur de 30 à 35 cm. Le degré de compaction de la couche de sable a été évalué régulièrement en cours de sa mise en place à l'aide d'un nucléodensimètre. Le

nivellement de la couche de sable permet l'ajustement de son épaisseur et de la pente de 5 % de sa surface grâce aux repères d'arpentage.



Figure 2.23 Nivellement (a) et compaction de la première levée de sable (b)

Lors du nivellement de la couche de sable, le surplus de sable a été envoyé sur les côtés afin de couvrir toute la surface de la halde jusqu'au niveau des bernes. Après la compaction de la couche de sable de la première levée, des tranchées d'une profondeur de 15 cm ont été creusées à sa surface afin d'y installer des sondes traditionnelles (sondes de teneur en eau et de succion) et le cable DTS (Figure 2.24).



Figure 2.24 Tranchées pour l'installation du câble DTS (a) et installation des sondes de teneur en eau et de succion (GS3 et MPS2 Decagon) (b)

Les tranchées creusées ont été ensuite remblayées avec du sable se trouvant à proximité après y avoir installé les sondes classiques (GS3 et MPS2 Decagon) et le câble DTS. Les surfaces des tranchées remblayées ont ensuite été compactées à l'aide du rouleau compresseur (sans vibrateur) ou de la plaque vibrante. Puis, le sable de la deuxième levée a été mis en place et compacté de façon à obtenir une couche d'une épaisseur de 20 cm (Figure 2.25). Après compaction de la couche de sable, six sondes GS3 y ont été installées à une profondeur de 15 cm.



Figure 2.25 Mise en place et compaction du sable de la deuxième levée

Ensuite, la mise en place de la couche de matériaux fins anorthositiques concassés (à moins de 10 mm) et compactée, d'une épaisseur de 25 cm, a débuté (Figure 2.26a). Considérés comme très peu ou non réactifs, ces matériaux fins anorthositiques placés à la surface de la halde sont des roches stériles d'anorthosite prelevées sur le site de la mine Lac Tio et concassées à une taille inférieure à 10 mm. Les électrodes de géophysique ont été installées à l'intérieur de cette couche d'anorthosite concassée au fur et a mesure de l'avancement de sa mise en place. Une fois que toute la surface de la halde a été complètement recouverte par la couche d'anorthosite concassée, cette dernière a été compactée (Figure 2.26b).



Figure 2.26 Début de la mise en place de la couche de matériaux fins anorthositiques concassés et sa compaction (surface finale de la halde expérimentale)

Une fois la construction de la halde expérimentale terminée, une rampe d'accès pour les travailleurs a été construite en utilisant les roches de stériles et du sable (Figure 2.27). Cette rampe a été construite sur le flanc droit de la halde expérimentale, au niveau du bas de sa pente (Figure 2.27). Cette rampe visait à permettre aux travailleurs se trouvant au pied de la halde d'accèder de façon sécuritaire à sa surface (Figure 28).



Figure 2.27 Construction d'une rampe d'accès pour les travailleurs


Figure 2.28 Halde expérimentale complétée

CHAPITRE 3

MODÈLES PHYSIQUES DE LABORATOIRE ET TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION

Dans ce chapitre sont décrits les deux types de modèles physiques de laboratoire qui ont été utilisés dans cette étude, à savoir un modèle unidimensionnel (colonnes) et un modèle bidimensionnel (modèle physique). Ce chapitre présente aussi les techniques qui ont été employées pour caractériser les propriétés physiques, minéralogiques et chimiques des matériaux étudiés.

3.1 Modèle physique unidimentionnelle : colonnes

Quatre colonnes remplies avec des stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite ont été mises en place afin de réaliser les essais cinétiques au laboratoire, à savoir : deux colonnes de contrôle remplies chacune avec un seul type de matériaux (anorthosite ou hémo-ilménite) et deux colonnes mixtes remplies avec les deux types de matériaux (Figure 3.1).



Figure 3.1 Configuration des colonnes mises en place au laboratoire (tiré de Poaty et al., 2018)

Les colonnes d'hémo-ilménite et d'anorthosite (respectivement Co-HI et Co-Anor) sont constituées d'un tube en PVC (chlorure de polyvinyle) de 1 m de hauteur et 14 cm de diamètre interne. Les deux autres colonnes (Co-AI et Co-Sandwich) sont constituées de tubes en PVC de 80 cm de hauteur et 30 cm de diamètre interne. Les caractéristiques des colonnes (Co HI, Co Anor, Co AI et Co Sandwich) sont détaillées dans le chapitre 4. Les stériles ont été placés directement dans les colonnes par couches de 5 à 10 cm. Au moyen d'un marteau Proctor avec masse constante et énergie uniforme, les stériles ont été compactés de manière à s'approcher des porosités souhaitées, proche de celles observées sur le terrain. Dans les couches des stériles d'hémo-ilménite, les valeurs de porosité variaient de 0,36 à 0,40 et elles étaient comprises entre 0,29 à 0,35 dans les couches de stériles d'anorthosite. La description détaillée du montage des colonnes se trouve également dans le chapitre 4.

3.2 Modèle physique incliné

Les essais d'infiltration en laboratoire ont été effectués à l'aide d'un modèle physique incliné, composé d'une boîte d'infiltration et d'un système de simulation des précipitations. La boîte d'infiltration faite en acier et en plexiglas a été remplie avec trois couches de matériaux différents (Figure 3.2). Le système de simulation des précipitations a été placé au-dessus de la boîte d'infiltration.





3.2.1 Description de la boîte d'infiltration

La boîte d'infiltration constituant le système expérimental est une structure monobloc soudée, partiellement en acier, de 2.47 m de longueur, 0.6 m de largeur et 1.5 m de hauteur. Cette boîte en forme d'un parallélépipède rectangle, aux arêtes métalliques (cadres en acier), est ouverte sur sa face supérieure. Elle est délimitée par cinq parois rectangulaires dont quatre sont des plaques en acier de 8 mm d'épaisseur (Figure 3.3a). Une des parois latérales est munie de quatre hublots rectangulaires transparents (en plexiglas) séparés par des cadres en acier (voir Figure 3.3b). Quelques trous ont été

percés à différents endroits, le long d'une paroi latérale en acier pour l'installation de l'instrumentation. La base du modèle physique a été perforée, à intervalles réguliers (0.25 m environ) de huit trous de 2 mm de diamètre pour permettre le drainage de l'eau. Les parois et cadres en acier de la boîte ont été recouverts avec de la peinture inoxydable. La boîte d'infiltration est emboitée dans un support permettant de la faire pivoter et de lui donner un angle d'inclinaison (voir Figure 3.3b).



Figure 3.3 Vue d'ensemble du modèle physique 2D avant (a) et au début de son remplissage avec les matériaux (b)

3.2.2 Échantillonnage des matériaux du modèle physique

Comme indiqué précédemment, la boîte a été remplie avec trois couches de matériaux différents : une couche de matériaux grossiers (stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite) sur laquelle ont été mises en place successivement une couche de sable compactée puis une couche d'anorthosite compactée concassée (Figure 3.2). Les deux couches de sable et d'anorthosite concassée constituent ensemble la couche de contrôle d'écoulement (CCE).

Constituant le reste des matériaux ayant servi à la construction de la halde expérimentale sur le site de la mine Lac Tio, les matériaux grossiers (stériles d'hémoilménite et d'anorthosite) ont été échantillonnés à proximité de la halde. Prélevés sur le même site, les stériles anorthositiques concassés à moins de 10 mm et le sable sont aussi des matériaux restants qui ont été utilisés dans la CCE de la halde expérimentale. Les échantillons de ces matériaux (stériles d'hémo-ilménite, d'anorthosite grossiers et concassés, mais aussi du sable) ont été stockés dans des barils de 45 gallons (170 litres), scellés hermétiquement et transportés au laboratoire de l'URSTM-UQAT.

3.2.3 Description de la boîte d'infiltration

Afin de remplir la boîte d'infiltration, une quantité significative de matériaux a été préparée, soit environ 2600 kg de stériles d'hémo-ilménite, 600 kg de stériles d'anorthosite non concassée (grossiers), 240 kg de stériles d'anorthosite concassée et 250 kg de sable. La préparation consistait à entreposer les matériaux humides (contenus dans des barils) sur le plancher et à les homogénéiser à l'aide d'une pelle (Figure 3.4).



Figure 3.4 Homogénéisation des stériles d'hémo-ilménites (a), d'anorthosite non concassée (b), d'anorthosite concassée (c) et du sable (d)

Avant de la mise en place des matériaux homogénisés dans la boîte, chaque drain situé à la base du modèle physique a été recouvert d'un géotextile de dimensions 4 cm x 4 cm afin d'empêcher la perte de particules fines lors des essais d'infiltration (Figure 3.5). Les trois types de matériaux différents (stériles d'hémo-ilménites, d'anorthosite et du sable) ont été utilisés pour installer le système de couverture à trois couches à l'intérieur de la boîte. Le diamètre maximal des particules entreposés dans le modèle physique de 0.6 m de largeur était d'environ 10 cm, soit 6 fois inférieure à la largeur de la boîte d'infiltration (selon la norme ASTM D5856 (2007)).



Figure 3.5 Installation des géotextiles à la base du modèle physique et compactage des matériaux

Avant de remplir le modèle physique, la masse des matériaux nécessaire pour la mise en place de chaque couche à la porosité désirée a été estimée. Les matériaux ont été placés directement dans le modèle physique par couches. La couche de matériaux grossiers (stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite non concassée ≤ 10 cm) d'une épaisseur de 0,8 m a été placée en premier dans le modèle physique. La mise en place de cette couche a impliqué que le modèle soit rempli section par section avec des stériles grossiers (Figure 3.6). Un total de quatre (4) sections de matériaux grossiers a été entreposé dans la boîte : les trois premières sections ont été constituées de stériles grossiers d'hémo-ilménite et la dernière section, des stériles grossiers d'anorthosite (Figures 3.2 et 3.6) . Au préalable, les contours de chaque section ont été dessinées sur la paroi latérale en plexiglas du modèle physique à l'aide d'un marqueur et d'une règle. L'installation de la couche de matériaux grossiers a débuté avec celle de la première section de stériles d'hémo-ilménite (Figure 3.6a).



Figure 3.6 Mise en place de la couche des matériaux grossiers, section par section, dans le modèle physique

Après avoir été homogéisés, les matériaux ont été chargés dans des chaudières (seaux en plastique) de 20 litres de capacité. Les chaudières remplies des matériaux ont été transportées jusqu'au modèle physique. Puis une échelle a été utilisée afin d'accéder à la face supérieure du modèle physique et d'y deverser les matériaux chargés dans chaque chaudière (Figure 3.5). La masse de chaque seau vide et rempli des matériaux ont été pesées au moyen d'une balance au plancher afin de déterminer la quantité exacte de matériaux déversés. Ces matériaux ont été compactés progressivement à l'aide d'un marteau Proctor avec masse constante de façon à approcher les porosités visées (Figure 3.5). Les matériaux déversés et compactés sur la surface plane (base du modèle physique) se sont amoncellés en amas dont la pente a été constante et d'envion 35 dégrés par rapport au plan horizontal (Figure 3.6a). Cependant, la base d'un amas de matériaux s'agrandit en général au fur et à mesure que les matériaux s'accumulent et sont compactés. Afin de délimiter la base de l'amas de matériaux et stabiliser la pente formé, un panneau en mousse rigide de polyuréthane a été placée temporairement sur la pente. Léger et facilement manipulable, ce panneau (d'environ 0,5 m de largeur et 1 m de long) a été rétiré après le début de la mise en place de la section suivante de matériaux. Les quatres sections de matériaux grossiers ont été déposées avec la même pente (35°) (Figure 3.2). Les stériles grossiers de chaque section ont donc été déposés par section dans la boîte avec un angle de déposition de 35° en imitant la technique « push-dumping » utilisée lors de la construction de la halde expérimentale sur le site de la mine Tio.

Après la mise en place de la couche de matériaux grossiers de 80 cm d'épaisseur, une couche de sable de 8 cm d'épaisseur et une couche de 10 cm d'épaisseur de stériles d'anorthosite concassée ont été installées successivement sur les stériles grossiers (Figure 3.7).



Figure 3.7 Modèle physique 2D après la mise en place des trois couches de différents matériaux

Les couches de sable et d'anorthosite concassée ont été mises en place en disposant successivement des sous-couches de 2 à 3 cm de ces matériaux, parallèlement à la couche des matériaux grossiers. Chaque sous-couche a été compactée avec un compacteur manuel à tête en acier.

Ce travail a permis la mise en place progressive et successive des couches de différents matériaux dans le modèle physique (Figures 3.5, 3.6 et 3.7). Afin d'effectuer des essais d'infiltration à l'intérieur de la boîte, le système de trois couches de différents matériaux à été soumis à des précipitations à l'aide d'un simulateur de pluie.

3.2.4 Système de simulation des précipitations

Composé de quatre arroseurs oscillants connectés ensemble, un simulateur des précipitations a été placé au-dessus de la boîte (Figure 3.8). Ce simulateur de pluie a

été connecté à un tuyau d'arrosage raccordé à un manomètre. Le manomètre a également été relié à une vanne d'arrêt connecté au réseau de distribution d'eau du laboratoire. La description détaillée du système de simulation des précipitations ainsi que sa calibration se trouvent dans le chapitre 5.



Figure 3.8 Simulateur des précipitations en dehors et au dessus du modèle physique

3.3 Méthode de caractérisation

Afin de mieux comprendre le comportement géochimique des matériaux étudiés, les propriétés physiques, chimiques et minéralogiques de ces matériaux ont été caractérisées au moyen de différentes méthodes. Ces différentes méthodes de caractérisation physique, chimique et minéralogique utilisées aussi bien pour les matériaux solides que pour les eaux de percolation, sont présentées dans cette partie.

3.3.1 Caractérisation physique

La caractérisation physique réalisée sur les échantillons de matériaux (stériles et sable) utilisés dans la halde expérimentale, le modèle physique et les colonnes, inclut la distribution granulométrique, la densité relative des grains et la surface spécifique. La surface spécifique a été estimée par calcul (voir chapitre 7) en raison de la grosseur des roches stériles dont l'évaluation n'est pas possible au moyen d'un appareil de mesure de ce paramètre (surface spécifique).

3.3.1.1 Distribution granulométrique

La granulométrie est l'une des propriétés importantes des stériles miniers du point de vue environnemental car elle permet de déterminer la distribution de la taille des matériaux solides et par conséquent d'avoir une idée sur les surfaces de minéraux exposées à l'oxydation. L'analyse de la distribution granulométrique des stériles miniers a été réalisée par tamisage selon la norme D422 (ASTM, 2007).

3.3.1.2 Densité relative des grains solides (D_r)

La densité relative des grains solides a été déterminée à l'aide d'un pycnomètre à hélium Micromeritics Accupyc 1330 selon la norme D550-06 (ASTM, 2006). Les échantillons des matériaux à caractériser ont été préalablement broyés à une taille des grains inférieure à 500 μ m.

3.3.2 Caractérisation chimique

3.3.2.1 Échantillons solides

La caractérisation chimique des échantillons de stériles miniers vise à déterminer leur composition chimique à l'aide de différentes méthodes d'analyse telles que la fluorescence de rayons X (FRX), la spectrométrie d'émission atomique au plasma à

couplage inductif (ICP-AES) et le four à induction. Les analyses chimiques utilisées fournissent une précision d'environ 5%.

En effet, les échantillons solides issus de la halde expérimentale, du modèle physique et des colonnes ont été soumis à une caractérisation chimique en utilisant l'analyseur portable de fluorescence de rayons X (Thermo ScientificTM NitonTM XL3t). La FRX founit la concentration des éléments majeurs (>1% p/p) et mineurs (entre 0,1 et 1% p/p) avec environ 2 g d'échantillon. L'analyseur portable FRX fournit les résultats de la composition chimique des échantillons solides en quelques secondes pour plus de 20 éléments.

La composition chimique des échantillons solides a aussi été analysée par ICP-AES avec un appareil Perkin Elmer Optima 3100 RL. L'ICP-AES fournit la concentration des éléments traces (ppm). Les échantillons solides ont préalablement été soumis à une digestion acide (HNO₃-Br₂-HF-HCl).

La teneur en soufre total et en carbone de ces mêmes échantillons solides a été déterminée par analyse au four à induction (ELTRA CS-2000).

3.3.2.2 Échantillons liquides

Les échantillons de lixiviat prélevés à partir des lysimètres de la halde expérimentale et ceux d'eaux de rinçage du modèle physique et des colonnes ont été analysés pour plusieurs paramètres géochimiques: pH, conductivité électrique à l'aide des sondes, acidité et alcalinité avec un titreur automatique (870 KF Titrino Plus-Metrohm), et les concentrations en métaux dissous par ICP-AES (Al, As, Ba, Be, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Mg, Mn, Mo, Ni, Pb, Stotal, Sb, Se, Si, Ti, Zn), avec une précision de 5 à 10%.

3.3.3 Caractérisation minéralogique

La caractérisation minéralogique des échantillons de stériles a été réalisée à l'aide de la diffraction des rayons X (DRX), du microscope optique (MO) et du microscope électronique à balayage (MEB) couplée à une microanalyse en spectroscopie de dispersion des énergies (EDS).

Les échantillons de stériles miniers ont été analysés par DRX à l'aide d'un appareil Bruker A.X.S. Advance D8 (rayons-X produits par un tube en cuivre). Les minéraux ont été identifiés à l'aide du logiciel EVA et quantifiés en utilisant la méthode Rietveld avec le logiciel TOPAS (Rietveld, 1993). La DRX ne permet pas l'identification des minéraux mineurs ou en trace en raison de sa limite de détection qui est de l'ordre de 0,5 à 1% p/p. Pour compléter la DRX, les microscopies optique et électronique sont souvent utilisés dans ce cas.

Afin d'améliorer la précision de la quantification des minéraux dans les échantillons soumis aux analyses DRX, les stériles ont été au préalable finement broyés jusqu'à une taille de grains inférieure à 10 µm à l'aide d'un pulvérisateur McCrone Micronizing Mill.

Une minéralogie plus précise est finalement obtenue grâce à la réconciliation des données émanant de la DRX, de la MO, du MEB-EDS et de la chimie totale (composition chimique déterminée par ICP-AES/MS, FRX et four à induction) de l'échantillon.

CHAPITRE 4

A COLUMN STUDY OF THE IMPACT OF LAYERING THE DIFFERENT LAC TIO MINE WASTE ROCK LITHOLOGIES ON DRAINAGE WATER QUALITY

<u>Préambule</u> : cet article a été publié dans la revue *Journal of Geochemical Exploration* le 8 juin 2021.

Poaty, B., B. Plante, B. Bussière, M. Benzaazoua, and M. Thériault. 2021. A column study of the impact of layering the different Lac Tio mine waste rock lithologies on drainage water quality. Journal of Geochemical Exploration:106823.

Résumé

Dans l'industrie minière, l'extraction de stériles miniers dépourvus de valeur économique, est nécessaire pour accéder aux gisements de minerai. La quantité de stériles miniers est très importante dans le cas des mines à ciel ouvert. Ils sont généralement stockés en surface dans des haldes à stériles. La présence de minéraux réactifs tels que les sulfures dans les stériles miniers peut entraîner la contamination des eaux de drainage qui sortent de ces haldes à stériles. Afin de limiter la production de contaminants et le volume des eaux de drainage, une méthode novatrice de construction de haldes à stériles a été développée. Dans ce contexte, une halde à stériles expérimentale a été construite à la mine Lac Tio près de Havre-Saint-Pierre (Québec, Canada) afin d'évaluer la performance de cette approche en conditions de terrain. Pour comprendre le mélange géochimique entre le lixiviat des couches de stériles d'hémoilménite et d'anorthosite constituant cette halde expérimentale, des essais utilisant des colonnes de laboratoire remplies de couches de ces deux types de matériaux ont été réalisés. Les stériles d'anorthosite et d'hémo-ilménite soumis aux essais en colonne ont généré un drainage dont le pH est près de la neutralité (pH ~7) contenant jusqu'à 4,5 mg/l de nickel et 1500 mg/l de sulfate. Les taux de génération de nickel et de sulfate varient de un à deux ordres de grandeur selon le type de stériles et leur configuration (purs ou mélangés entre eux). La qualité de l'eau de drainage a été affectée par les changements de volume d'eau de rinçage, par la précipitation/dissolution de minéraux secondaires et par la sorption de Ni dans les stériles anorthosite. Cette étude démontre que le stockage de stériles d'hémo-ilménite sur des stériles d'anorthosite est un moyen efficace de réduire les niveaux de Ni dans les eaux de drainage des matériaux de la mine Lac Tio.

Mots-clés : drainage neutre contaminé, essais cinétiques, nickel, sorption

Abstract

In the mining industry, the extraction of waste rocks (WR), without economic value, is needed to access ore deposits. The amount of WR are very large in the case of open pit mines. They are usually stored at the surface in waste rock piles. The presence of reactive minerals such as sulphides in waste rock can lead to the contamination of drainage water that come out from these waste rock piles. In order to limit the production of contaminants and the volume of drainage water, an innovative method of construction of waste rock piles has been developed. In this context, an experimental waste rock pile was constructed at the Lac Tio mine near Havre-Saint-Pierre (Quebec, Canada) to evaluate the performance of this approach in field conditions. To understand the geochemical mixing between the leachate from the hemo-ilmenite and anorthosite waste rock layers constituting this experimental pile, tests using lab columns that were filled with layers of these two types of materials were run. The anorthosite and hemoilmenite waste rock subjected to column tests generated near-neutral drainage (pH ~7) containing up to 4.5 mg/l of nickel, and 1500 mg/l of sulphate. The nickel and sulphate release rates varied from one to two orders of magnitude depending on the type of waste rocks and their configuration (pure or mixed with each other). The drainage water quality was affected by changes in the volume of rinsing water, by the precipitation/dissolution of secondary minerals, and by Ni sorption within anorthosite waste rock. This study demonstrates that the storage of hemo-ilmenite waste rock over anorthosite waste rock is an effective way to reduce Ni levels in drainage waters from the Lac Tio mine materials.

Keywords: contaminated neutral drainage, kinetic testing, nickel, sorption

4.1 Introduction

When, exposed to water and oxygen in the atmosphere, reactive minerals present in mine wastes such as sulphides (e.g. pyrite, pyrrhotite), can oxidize and potentially generate acid mine drainage (AMD) waters. This can lead to the contamination of neighbouring surface and groundwaters close to these mine wastes. These AMD waters are characterized by an acidic pH (generally less than 5) and high concentrations of metals and sulphates (e.g. Lefebvre et al., 2001, Ritchie 2003, Blowes et al 2014). Contaminated Neutral Drainage (CND) conditions are characterized by the presence of a sufficient amount of neutralizing minerals that could buffer the pH at near-neutral values, but containing metal at levels above those allowable by regulatory standards (e.g. Nicholson, 2004; Bussière et al, 2008; Plante et al. 2011b). CND problems from waste rock were observed in different mines. This is the case in particular at the Lac Tio mine site, where some waste rock piles generate a contaminated nickel effluent whose concentration occasionally exceeds the allowed criteria (0.50 mg/L, Bussière et al., 2011, Plante et al., 2011b) and require treatment before its release to the environment.

A detailed characterization of the waste rocks sampled at the Lac Tio mine was carried out in previous studies (e.g., Pepin et al., 2008; Bussière et al., 2008, 2011; Plante et al., 2010, 2011a,b; Demers et al., 2011; Peregoedova et al., 2013). These mineralogical, geochemical and hydrogeological characterization studies aimed to understand the mechanisms of Ni-CND generation from the Tio Lac mine waste rock. These waste rocks are largely composed of hemo-ilmenite and anorthosite gangue (calcic plagioclase near that of labradorite; Pepin, 2009). The gangue is also composed of chlorite, mica, pyroxenes, and sulphides as pyrite (FeS₂) and traces of millerite (NiS) (Plante, 2010). Stored in piles, waste rock from the Lac Tio mine can contain up to 76% hemo-ilmenite and may have undergone several decades of weathering in these waste rock piles. Thus, waste rocks from the Lac Tio mine differ in their hemo-ilmenite and

anorthosite contents but also in their degree of weathering (relative mainly to their storage time). The characterization of these waste rocks showed that sulphides were generally associated with hemo-ilmenite, but could also be disseminated within the anorthositic gangue minerals. It has been also shown that Ni was essentially associated with sulphides (Ni-bearing pyrite Fe(Ni)S₂ and millerite NiS) but it is also in traces within silicates (Plante, 2010). The geochemical behavior of waste rock from the Lac Tio mine was thoroughly studied using kinetic tests in the laboratory and in situ experimental field cells (Bussière et al., 2008, 2011, Pepin 2009; Plante 2010; Demers et al., 2011). These kinetic tests demonstrated that the waste rocks do not generate AMD in the long term, the weak acidity produced being neutralized by abundant quantity of gangue minerals (mainly by calcic plagioclase). The pH of the drainage waters was close to neutral and the nickel present in these waters was generated by the oxidation of the sulphides (e.g pyrite) present in traces within the waste rock (Bussière et al, 2005, Pépin, 2009, Plante et al., 2011b). Previous studies showed that Ni concentrations in drainage waters are controlled mainly by sorption phenomena (Plante et al. 2010, 2011a, Demers et al., 2011, 2013). Indeed, Ni generated in drainage waters is sorbed in the form of nickel hydroxide Ni (OH)₂ on the surfaces of the waste rock. The main minerals at the origin of the sorption phenomenon are the residual hemoilmenite and anorthosite (Plante et al., 2011a). Ni is retained on these minerals (hemoilmenite and anorthosite) through the main sorption sites consist of oxides and oxyhydroxides of Fe and Mn (during the oxidation of pyrite) (Plante et al. 2011a, b). The sorption sites onto freshly produced waste rock are gradually saturated as the rock weathers, which leaves more Ni in drainage waters and explains the decades long delay before development of CND conditions (Plante et al. 2010, 2011a, Demers et al., 2011, 2013).

The major geochemical processes that control water quality in the Lac Tio waste rocks are presented in Table 4.1. These geochemical processes involve reactions of pyrite

oxidation (FeS₂) and other sulphides like millerite and dissolution of the two main gangue minerals, plagioclase (labradorite) and pyroxenes (enstatite). The dissolution reaction of labradorite in the presence of acid leads to the precipitation of kaolinite or aluminum hydroxide (Plante et al., 2011b). The kaolinite formed can be subjected to dissolution (Plante et al., 2011b) as shown in Table 4.1.

Tableau 4.1 Major geochemical processes that control water quality in the Lac Tio waste rock

Process	Stoichiometry	Ref
Pyrite oxidation	$Fe(Ni)S_2 + 15/4O_2 + 7/2H_2O \rightarrow 4H^+ + 2 SO_4^{2-} + Fe(Ni)(OH)_3(s)$	a,b
Millerite oxidation	$NiS + 2O_2 (aq) \rightarrow Ni^{2+} + SO_4^{2-}$	
Labradorite weathering	$Ca_{0.6}Na_{0.4}Al_{1.6}Si_{2.4}O_8(S) + 1.6H^+ + 2.4H_2O \rightarrow$	
	$0.8Al_2Si_2O_5(OH)_4 + 0.8H_4SiO_4(aq) + 0.4Na^+ + 0.6Ca^+$	
	$Ca_{0.6}Na_{0.4}Al_{1.6}Si_{2.4}O_8(S) + 1.6H^+ + 6.4H_2O \rightarrow$	c
	$1.6Al(OH)_3 + 2.4H_4SiO_4(aq) + 0.4Na^+ + 0.6Ca^+$	
Enstatite weathering	$MgSiO_3 + 2H^+ + 2H_2O \rightarrow Mg^{2+} + H_4SiO_4$	d,e
Ilmenite weathering	$FeTiO_3 + 2H^+ + 1/2O_2 \rightarrow Fe_2Ti_3O_9 + Fe^{2+} + H_2O$	c
	$Fe_2Ti_3O_9 + 4H^+ \rightarrow 3TiO_2 + 2Fe^{2+} + 2H_2O + 1/2O_2$	
Oxidation and hydrolysis	$2Fe^{2+} + 1/4O_2 + H^+ \rightarrow Fe^{3+} + 1/2H_2O$	с
of FeII iron	$Fe^{3+} + 3H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + 3H^+$	c
Formation of Ni hydroxide	$Ni^{2+} + 2OH^- \rightarrow Ni(OH)_2$	f
Kaolinite dissolution	$Al_2Si_2O_5(OH)_4 + 6H^+ \rightarrow 2Al^{3+} + 2H_4SiO_4 + 2H_2O$	g
	$Al_2Si_2O_5(OH)_4 + 5H_2O \rightarrow 2Al(OH)_3 + 2H_4SiO_4$	g
Ni sorption	$=S-OH + Ni^{2+} + 2H_2O \leftrightarrow =S-O-Ni(OH)_2 + 2H^+$	h

References: a. Evangelou, 1995; b. Blowes et al., 2003; c. Plante et al., 2011b; d. Oelkers and Schott, 2001; e. Stefansson, 2001; g. Cama et al., 2002; h. Bradbury and Baeyens, 2009; i. Younger et al., 2002).

Other reactions such as the dissolution of ilmenite, oxidation and hydrolysis of iron released by the weathering of ilmenite, as well as the formation of the Ni hydroxide

and Ni sorption, are also significant geochemical processes controlling the water quality from the Lac Tio waste rock (Plante et al., 2010; see Table 4.1).

Previous studies demonstrated that the anorthosite waste rocks are not CND-generating and could be used to reduce contamination problems from the CND-generating hemoilmenite waste rocks (Plante et al., 2011b). Therefore, this study aims to understand the hydrogeochemical behavior of the different types of waste rock from the Lac Tio mine (predominantly anorthosite or hemo-ilmenite) separately and juxtaposed. The specific objectives are as follows:

- To assess the influence of a layer of anorthosite waste rock placed over or/and under a layer of hemo-ilmenite waste rock on the quality of the effluent;
- To assess the influence of water regimes (volumes of flushing water) on the quality of the effluent;
- To understand the main geochemical processes that affect the quality of drainage water based on the different configurations in which the types of waste rock are stored.

Since it is challenging to understand the hydrogeochemical phenomena that may take place at the field scale, a smaller scale assessment (laboratory columns) of the hydrogeochemical behavior of the waste rock in different configurations is required.

4.2 Materials and methods

4.2.1 Sampling and waste rock properties

The waste rock used in the column tests was sampled from the Lac Tio mine site. Two types of waste rock were selected for sampling: hemo-ilmenite (HI) and crushed anorthosite waste rock. Hemo-ilmenite (HI) waste rock (> 5% hemo-ilmenite), made of coarse particle size (<50 mm), were taken directly at the Lac Tio mine site (Poaty et al., 2018). Anorthosite waste rock (<5% hemo-ilmenite and <0.1% sulphur) was collected from a crushed anorthosite waste rock pile (sieved to <10 mm); this material was produced to be tested as cover material in a field experimental waste rock pile (see Martin et al. 2017 for more details on this experiment). The HI and crushed anorthosite waste rock samples were transported to the URSTM-UQAT laboratory for homogenization and characterization as described in Poaty et al. (2018). The initial water content values of hemo-ilmenite and anorthosite samples determined by oven drying at 105° C (AFNOR, 1994) were about 1.3 and 4.8%, respectively (see Poaty et al., 2018).

4.2.2 Physico-chemical properties of materials

A physical, chemical and mineralogical characterization of the samples of both lithologies was performed. Particle size analyzes were carried out on the samples of HI and crushed anorthosite waste rock previously homogenized. The mass of waste rock samples taken to determine particle size ranged from 5 to 10 kg. The grain size distribution of the waste rock was analyzed by sieving for the fractions between 20 cm and 90 μ m, according to ASTM D422 (2007). The specific gravity (Gs) of the waste rock pulverized previously (<100 μ m) was measured using a Micromeritics Accupyc 1330 helium pycnometer, according to the ASTM D-550-06 standard. In order to determine their S and C content, different particle size fractions (20, 10, 5, 2.5, 1.25, 0.625, 0.315, and 0.08 mm, and <0.08 mm) of the HI and crushed anorthosite samples were pulverized to less than 100 μ m using a Fritsch planetary ball mill. The S and C content of each of these particle size fractions was determined using an induction furnace analyzer (ELTRA CS-2000). The chemical composition of the waste rock was determined by digestion in HNO₃/HCI/HF/Br, followed by ICP-AES/MS analyses for over 20 elements. The mineralogical characterization of the waste rock samples was

carried out by X-ray diffraction (XRD) analysis and quantified by using the Rietveld method with the TOPAS software (Rietveld, 1993).

4.2.3 Column kinetic tests

Kinetic column tests were conducted in the laboratory on waste rocks from the Lac Tio mine. In order to assess the potential release of chemical constituents from solid materials, kinetic column are generally used because they allow to better simulate real conditions in the laboratory (Plante, 2010). Four laboratory kinetic tests were performed in columns (with two different diameters) filled with anorthosite and HI waste rock (Fig.1). The waste rock was placed in the columns by layers. During the columns set up, waste rock was compacted so as to have the targeted porosity, close to that observed in the field. Porosity values ranged from 0.36 to 0.40 in the HI waste rock layers and from 0.29 to 0.35 in the anorthosite waste rock layers (see Poaty et al., 2018). The first two columns (HI and Anor columns) consist of PVC pipes with an inside diameter of 14 cm and a height of 100 cm. These were control columns packed with 36.1 kg of HI (HI column or Co-HI) and with 23.0 kg of anorthosite (Anor column or Co-Anor).



Figure 4.1 Configuration of the laboratory column set up (adapted from Poaty et al., 2018)

The other two columns (Co-AI and Co-Sandwich) contained two types of waste rock (anorthosite and HI) and consist in PVC tubes with an internal diameter (ID) of 30 cm and a height of 80 cm. AI Column (Co-AI) was filled with 132.9 kg of HI (61 cm thick) and a 9 cm top layer of anorthosite (13.1 kg). This configuration aims to verify whether an anorthosite layer over HI waste rocks can improve the water quality of the leachates. The sandwich column (Co-Sandwich) was filled with a layer of 71.8 kg of HI (34 cm thick) placed between two anorthosite layers of 51.5 kg (a thickness of 18 cm each). In Co-Sandwich, a funnel-shaped lysimeter covered with a geotextile (to prevent loss of fine particles) was installed and connected to a 12 mm ID tube for leachate sampling (labelled port 1, or P1; Fig. 1) at the center of the HI layer. The final leachates were also collected through ports installed at the bottom of each of the four columns where a geotextile filter was placed to retain fine particles. This configuration allows to assess water contamination inside the HI waste rocks and the improvement of water quality associated with the presence of the base layer of anorthosite waste rock. With the

column tops open to the atmosphere, the waste rock was subjected to bi-monthly wetting/drying cycles. A total of 38 cycles (over 500 days) were carried out during the testing period.

Rainfalls were simulated by manually pouring deionized water once every two weeks above the top of each column: 1.8 L for 14 cm diameter columns (HI and Anor columns) and 8.4 L for 30 cm diameter columns (AI and Sandwich columns). These rainfalls were qualified as "normal" because they were representative of the monthly rainfalls in the Havre-Saint-Pierre region (see Pepin, 2009) where the Tio mine is located. Periods of high and low rainfalls were also simulated by flushing with respectively twice and half of the deionized water volumes used for normal rainfalls. However, the capacity of 30 cm diameter columns (AI and Sandwich columns) being limited, the volume of deionized water corresponding to that of high rainfalls was 12 liters instead of 16.8 liters (for more information see Poaty et al., 2018). After 3 hours of contact time between the rinsing water and the materials contained in the columns, the bottom valve was opened, enabling the leachate to drain. The volume of leachate collected from each column was measured and sampled for chemical analysis. A small part of the leachate taken out was analyzed for pH, redox potential (Eh), electrical conductivity (EC), acidity, and alkalinity with an automatic titrator (870 KF Titrino Plus-Metrohm). Another aliquot was used to analyze the main dissolved elements of interest using ICP-AES, after being acidified with 2% concentrated nitric acid (HNO₃) and filtered through 0.45 µm cellulose filters.

4.2.4 Geochemical equilibrium modeling

The quality of drainage water from the columns is influenced by the precipitation or dissolution of secondary minerals. In order to assess the saturation indexes of secondary minerals, geochemical equilibrium calculation was performed using Visual Minteq (Felmy et al., 1984), a Windows version of the MINTEQA2 ver.3.1 database

(USEPA, 1999). For SI = 0, the solid phase and the solution are in equilibrium; for SI < 0 corresponds to undersaturation and finally for SI > 0 oversaturation. Undersaturation involves dissolution of the solid phase and oversaturation suggests that precipitation could be possible under the conditions of the study.

4.3 Resultats and discussion

4.3.1 Waste rock characterization

Differences in the physical, chemical and mineralogical characteristics of the waste rock types used in the column tests can influence oxidation reactions and modify the release rates of the elements (Langman et al., 2014). Therefore, the waste rock samples used in the column tests were subjected to physical, chemical and mineralogical characterizations.

4.3.1.1 Chemical characterization

Table 4.2 presents the chemical composition (only the main elements of interest) of the HI and anorthosite waste rock samples, obtained by X-ray fluorescence (XRF) analysis.

The chemical composition of waste rock obtained by XRF show that the anorthosite waste rock contained less than 0.1% sulphur (0.003wt.%) while the HI waste rock contained up to 0.33wt.% sulphur; sulphur expressed as sulphide and occurring mainly as pyrite FeS_2 .

Low sulphur and HI (mainly iron and Ti) contents in the crushed anorthosite waste rock used in the column tests confirm its properties for being used as cover material (see Poaty et al., 2018).

	HI waste rock	Crushed anorthosite
Fe (%)	30.5	2.9
Ti (%)	16.7	1.4
S (%)	0.33	0.003
Ni (mg/kg)	560	<100
Si (%)	7.6	24.7
Ca (%)	1.6	5.7
Al (%)	7.6	13.2

Table 4.2 Chemical characterization of the hemo-ilmenite and anorthosite waste rock samples from columns (from Poaty et al., 2018)

4.3.1.2 Particle size distribution

The particle size distributions of the two materials used in the columns are illustrated in Fig.4.2 and related characteristics are presented in Table 4.3. The crushed anorthosite had a relatively uniform particle size distribution and a grain size between 0.09 and 4 mm (Fig. 4.2). With a coefficient of uniformity (C_U) of 18.8 and a coefficient of curvature (C_C) of 1.3, crushed anorthosite was classified as a well-graded sand with some silt and gravel, in accordance with results of Dubuc (2018). Fig.4.2 shows that 60% of HI waste rock corresponds to particle sizes between 4 and 20 mm. The waste rock had a C_U of 13.7 and a C_C of 2.4, corresponding to a widely-graded material (Fig. 4.2 and Table 4.3).



Figure 4.2 Grain-size distribution of materials used in columns

Material type	Hemo- Ilmenite	Crushed anorthosite
Relative density (g/cm ³) Grain size distribution	4.24	2.8
D ₆₀ (mm)	4.1	1.5
D ₃₀ (mm)	1.7	0.39
D ₁₀ (mm)	0.3	0.080
Coefficient of uniformity, Cu	13.66	18.75
Coefficient of curvature, Cc	2.35	1.27

Tableau 4.3 Features of waste rocks used in columns

4.3.1.3 Relationship between particle size, sulphur content and oxidation/neutralization-related elements

Figure 4.3 shows the sulphur (pyrite) and other elements (Ni, Si, Ca and Al) distribution for discrete particle sizes fraction of HI samples. A decrease in the S content (wt.%) was observed when the particle size of the HI samples increased (Fig. 4.3a). Indeed, Fig. 4.3a shows that the highest S content was found in the smaller size fractions (<710 μ m) whose S content was between 0.40 and 0.70 wt.%. In the coarser size fractions (>1250 μ m), the sulphur content was about 0.12 wt.%. These results suggest that smaller size fractions would be more reactive, consistent with previous results obtained by Lapakko (2006); Smith et al. (2013) and Elghali et al. (2018).

This decrease is less pronounced for Ni in comparison with S (Figure 4.3b). Indeed, the size fraction (315-2500 μ m) of the HI samples had a Ni content between 0.049 and 0.036 wt%. There is also a decrease in the content of Si, Ca and Al (wt.%) with increasing particle size for hemo-ilmenite samples (Fig.4.3c and 4.3d).



Figure 4.3 Sulphur and others elements (Ni, Si, Ca and Al) distribution for discrete particle sizes of hemo-ilmenite samples

4.3.1.4 Mineralogical characterization

A good understanding of the mineralogy of the waste rock samples used in the columns can help to better understand the geochemical processes of the different columns. The main results of the mineralogical characterization of these waste rock samples by XRD are presented in Table 4.4. The anorthosite waste rock sample consisted mainly of plagioclase, represented by albite (79.1%) in the diffractogram (the XRD patterns of albite and anorthite being very similar, both can be used in diffractogram interpretations without significant effects on quantification, even though the specific

plagioclase composition in the Lac Tio waste rocks lies in between the two minerals). The minor minerals are represented by ilmenite (6.0%), hematite (3.1%), diopside (5.4%), rutile (3.4%) and sulphides (pyrite, chalcopyrite and pyrrhotite) as traces. The HI waste rock sample contained ilmenite (53.6%) and hematite (24.1%) but also albite (22.3%). The other minerals were not detectable by X-ray diffraction because they were below the detection limit. Since waste rocks from the Lac Tio mine was extensively characterized by different techniques (XRD, Optical and scanning electron microscope, etc.) in previous studies (Pepin 2009, Plante et al., 2010; 2011a,b), it was deemed unnecessary to carry out deeper mineralogical characterization of these materials in the present study because their mineralogy is already well known.

Tableau 4.4 Mineralogical compositions by x-ray diffraction of waste rock (wt%) used in columns

Minerals	Formula	Crushed anorthosite	Ilmenite
Ilmenite	FeTiO ₃	6.0	53.6
Hematite	Fe_2O_3	3.1	24.1
Diopside	CaMgSi ₂ O ₆	5.4	
Rutile	TiO ₂	3.4	
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	79.1	22.3

4.3.2 Column test results

The geochemical monitoring of the columns enable to study the impact of an anorthosite layer placed over a HI layer on the quality of the effluent (Co-AI), but also the effect of an anorthosite layer located under a layer of HI (Co-Sandwich). Within the HI layer of Co-Sandwich, interstitial water is intercepted and sampled through the port 1 (sampling port 1 or P1), before it passes through the underlying anorthosite layer to be collected then at sampling port 2 or P2.

4.3.2.1 Changes in effluent alkalinity and concentrations of dominant dissolved constituents from the columns

The chemical composition of the effluent from the columns (Fig. 4.4) generally showed that the highest concentrations of dissolved elements were obtained in the flushes at the beginning of the column tests. This period corresponds to the start of the rainy season on the field, where redissolution of previously accumulated precipitates occurs (Benzaazoua et al., 2004; Nordstrom et al., 2009, 2011; Vriens et al., 2019).

Figure 4.4 also show strong variations characterized by distinct oscillations of several orders of magnitude, in particular for the concentrations of the chemical elements Si, Ca, Mg, Co, Zn, Ni and SO₄. These significant variations resulted mainly from the variability of the water volumes used during simulations of rainfall and flow through the waste rock. Indeed, the concentrations of dominant dissolved elements (Si, Ca, Mg, Co, Zn, Ni and SO₄) decreased by nearly 50% when the columns were rinsed with a volume of water higher than the normal flushes, whereas the concentrations of these dissolved elements almost doubled when the volume of rinsing water was halved compared to normal. This suggests that the leachate quality is influenced by external factors such as rainfall and infiltration (Neuner et al., 2013; Vriens et al., 2019). It also suggests that relative liquid-solid ratios of a given flush event have a significant impact on water quality, as shown by previous results obtained at different scales on waste rock from the Lac Tio mine (Plante et al., 2014).

For some parameters such as alkalinity, a large variation was noticed only when the flushing water volumes were doubled compared to normal, especially for the Co-Anor and Co-Sandwich-P2 samples (Fig. 4.4a), but for the pH, no such variation was observed, as pH values remained fairly constant over time (Poaty et al., 2018). The highest pH values (pH \approx 8) were those of the effluent from the anorthosite control column (Co Anor), while the lowest pH values (pH \approx 6.5-7) were those of leachates

collected from the HI control column (Co-HI). Effluent from the other two columns (Co-AI and Co-Sandwich) had pH values between 6 and 8 (see Poaty et al., 2018).

These near-neutral pH and the alkalinity values suggest that the acid generated by sulphide oxidation was consumed by the dissolution of silicate minerals (plagioclase and pyroxene) contained in the waste rock (Plante et al., 2010; 2011b).



Figure 4.4 Evolution of effluent alkalinity and dominant dissolved constituents from the columns over time (adapted from Poaty et al., (2018))





Figure 4.4 Continued

The highest releases of alkalinity and Si came from Co-Anor and Co-Sandwich-P2 (Fig. 4.4a and 4.4b) compared to other columns (Co-HI and Co-AI) and seems to be related to the anorthosite content of waste rock in these columns. Indeed, anorthosite waste rock contained mainly in Co-Anor had the highest levels of neutralizing Siminerals (see the composition of the elements and the mineralogy data in Tables 4.2 and 4.4 respectively). This demonstrates that anorthosite waste rock constituting the layer of materials at the bottom of Co-Sandwich influences the quality of the final leachate collected at port 2. Similarly, the most important releases of Ni, Co and Zn came from the HI and AI columns (Co-HI and Co-AI) compared to the other two columns (Co-Anor and Co-Sandwich), and seems to be related to S contents. This probably resulted from relatively high levels of these elements and their source minerals (sulphides) in the HI waste rock (see Table 4.1 and 4.3). In the case of the AI-column, the water quality was therefore mainly influenced by the HI layer placed under the anorthosite layer, which demonstrates that placing anorthosite waste rock on top of HI waste rocks does not improve the water quality.

The lowest concentrations of sulphide oxidation products such as Ni and SO₄ were released by Co-Anor and port 2 of Co-Sandwich; this demonstrates that the anorthosite waste rock generates the least contaminated drainage water. The results also show that, in the Co-Sandwich, the nickel generated by the overlying HI waste rock was intercepted by the lower anorthosite layer, most likely by sorption phenomena, as it was demonstrated in previous studies (Bussière et al., 2011, Plante et al., 2010, 2011a).

4.3.2.2 Estimation of release rates

The estimation of element release rate enables to compare the results of the columns taking into account the different waste rock masses and collected leachate volumes from the column tests. The release rate can be defined as the rate at which an element or species is released from a unit mass of rock, per unit time (Sapsford et al., 2009; Plante et al., 2011b). Figure 4.5 shows the cumulative normalized loadings for oxidation- and neutralization-related elements leached from the column tests over time. The cumulative normalized loadings of each element of interest from the columns over time was calculated as the product of the concentrations of each element and collected leachate volumes, divided by the total mass of waste contained in each column. Two significant variations in the slope of the cumulative loadings curves of nickel and sulphate (coming from sulphide oxidation) from P1 of the Co-Sandwich are observed

in Figs. 4.5a and 4.5b. Indeed, there is a significant increase in Ni and SO₄ loadings when the leaching water volumes were increased (between 196 and 238 days) and an important decrease when the leaching water volumes were reduced (between 322 and 322 days). However, the slopes of these curves (and thus the release rates) are similar when normal flush water volumes were used.

These slope variations are not observed for the other columns, as well as for Ca, Mg and Si (see Figures 4.5c, 4.5d and 4.5e). This could be explained by different preferential flow paths when leaching volumes changed (especially when the leaching water volume was halved) resulting in a decrease in the fraction of water volume intercepted by the funnel installed inside Co-Sandwich (P1). When the leaching water volume increased, larger areas of the waste rock minerals were probably leached, leading to an increase of Ni and SO₄ release from sulphide oxidation. This also suggests that cumulative normalized loadings of certain elements (e.g. Ni and SO₄ from HI) may be influenced by water regimes, unlike other elements (e.g. Ca and Mg from anorthosite) which do not seem to be affected as much by the intensity of the flush. The slope variations of the cumulative loading curves of Ni and SO₄ could also be related to the size of the diameter of the virtual column connected to port 1. Indeed, the P1 leachate is collected from a 4.5cm diameter funnel-shaped lysimeter installed at the center of the HI layer of Co-Sandwich. However, the funnel diameter (4.5cm) is less than 6 times greater than that of the largest particle of materials (approx. 2 cm) inside the column, which is the rule of thumb used to avoid the effect of preferential flow paths in other tests such as hydraulic conductivity and water retention curves measurements (ASTM D5856, 2007). This could therefore lead to an apparent change in the geochemical behavior of the materials contained in the virtual column over the lysimeter, not respecting the rule of the thumb. Figures 4.5a and 4.5b show that the cumulative nickel and sulphate loadings have very similar shapes. This suggests that Ni and SO₄ loadings are controlled by the same phenomena (e.g. sulphide oxidation)
and that the influence of Ni attenuation phenomena (sorption or precipitation) does not significantly change in the virtual column over the Port 1 lysimeter.

Table 4.5 shows the release rates of elements of interest (Ca, Ni and SO₄) that were determined from the cumulative normalized loadings by calculating the slope of the curves shown in Figure 4.5. The highest element release rates from column leachates were those of Ca and SO₄ (0.02–0.19 and 0.29–2.31 mg/kg/d, respectively; Table 4.5). The highest release rates of sulphate and calcium compared to other elements suggest that the oxidation of sulphides and the dissolution of plagioclase (in response to acidity generated by this oxidation) are the main reactions controlling the water quality, consistent with previous studies (Plante et al., 2011a, b). The Ca release rates (0.14-0.19 mg/kg/d) were almost similar in leachates from all columns except those from P1 of the Co-Sandwich. However, these Ca release rates are proportional to those of sulphates; the Ca release rates from the columns being related to the plagioclase alteration rate in response to sulphide oxidation, as demonstrated in prior studies (e.g., Plante et al., 2011b).

The SO₄ release rates in water samples collected from Co-HI, Co-AI, and from P2 of the Co-Sandwich are similar. However, the precipitation of sulfate-bearing secondary minerals was suggested by thermodynamic equilibrium calculation for these column tests (see section 4.3). Therefore, the SO₄ release rates might not indicate the whole sulphide oxidation reaction rates (defined as the mass in mg of SO₄ produced by sulphide oxidation per unit mass in kg of solid material per unit of time in days), as some sulphate may have precipitated in the column. Therefore, if secondary sulphate minerals do precipitate in these three columns, sulphide oxidation and dissolution of secondary sulphate minerals seem to occur at similar relative rates (P2 of Co-Sandwich, Co-HI and Co-AI). The release rates of Ni and SO₄ from Co-HI and Co-AI were almost similar (2.19.10⁻³-3.50.10⁻³ and 0.50-0.58 mg/kg/d, respectively).

This suggest that the presence of the top anorthosite layer in the Co-AI does not significantly affect the release of Ni and SO₄ from the underlying hemo-ilmenite. Therefore, the upper anorthosite layer in the Co-Al column does not appear to be an effective barrier to the diffusion of oxygen to the underlying mineralized waste rock. The Ni release rate from leachates calculated for P1 of Co-Sandwich ($1.62.10^{-2}$ mg/kg/d) is the highest of all columns, while that from leachates collected via P2 is the lowest ($2.51.10^{-5}$ mg/kg/d). This also suggests that in the Co-Sandwich, the Ni release rate from the HI layer was not affected by the presence of the anorthosite top layer (as for Co-AI). The results also demonstrate that the Ni released by the HI layer was removed from the solution by the underlying anorthosite layer. This is also confirmed by comparing the release rate from P2 of Co-Sandwich (0.48 mg/kg/d) was almost identical to that from Co-HI (0.50 mg/kg/d), the Ni release rates differed by two orders of magnitude ($2.19.10^{-3}$ and $2.51.10^{-5} \text{ mg/kg/d}$ for Co-HI and P2-Co Sandwich, respectively).





Figure 4.5 Cumulative normalized loadings for oxidation/neutralization-related elements over time in the column tests (adapted from Poaty et al., 2018)

Columns	Ca	Ni	SO_4
Co-Hi	0.14	2.19E-03	0.50
Co-Anor	0.19	1.59E-05	0.29
Co-AI	0.17	3.50E-03	0.58
Co-Sandwich-P1	0.02	1.62E-02	2.31
Co-Sandwich-P2	0.17	2.51E-05	0.48

4.3.2.3 Relationship between S and Ni from leachates collected during column tests

Tableau 4.5 Release rates of Ca, Ni, and SO4 (mg/kg/day) during column tests (>500 days)

Releases of direct sulphide oxidation products such as sulphate and nickel are generally proportional to the oxidation of sulphides, but their release rates can also be influenced by the precipitation of secondary minerals as well as the sorption phenomena (Kempton et al., 2009). The Ni/SO₄ ratio in the leachates could therefore provide valuable information on the relationship between nickel leaching and sulphide oxidation. Figure 4.6 shows the evolution of the ratio of Ni/SO₄ cumulative loadings from the column leachates over the time. A strong correlation between SO₄ and Ni in leachates from the columns is observed (Fig.4.6). This suggests the release of Ni with sulphide oxidation that produces S as sulphates (Langman et al., 2015; Nordstrom et al., 2011). It also suggests that one sulphide mineral could be the main source of nickel (Nordstrom et al., 2011) or that this element is released by more than one sulphide (pyrite, pyrrhotite and millerite) but at a constant rate during their oxidation. Figure 4.6 also shows that the cumulative Ni/SO₄ ratios from P1 of Co-Sandwich vary significantly than for the other columns, although they all show a general increasing trend. A possible explanation for the Ni/SO₄ ratio increase with time is the gradual decrease of Ni attenuation phenomena, due to either sorption or secondary precipitation, given that the sulphide oxidation should remain relatively constant. This suggests that, in addition to the sulphide oxidation in the HI waste rock, one or more Ni attenuation phenomena, such as secondary mineral precipitation or sorption have occurred and controlled the Ni release (Alpers et al., 1993; Gray,1998; Canovas et al., 2008; Nordstrom et al., 2009). The change in the cumulative Ni/SO₄ ratio could also be related to the variation of the liquid/solid ratio (Alpers et al., 1994; Gray, 1998; Canovas et al., 2008), especially for P1 of Co-Sandwich, where HI waste rock might have been subjected to varying leaching due to preferential flow paths within the column. The Ni/SO₄ ratios from Co-Anor and P2 of Co-Sandwich are almost zero (Fig.6) because they contain weakly reactive materials that leach almost no detectable Ni in the case of Co-Anor, and because the Ni is intercepted by the bottom anorthosite layer in Co-Sandwich P2.



Figure 4.6 Variation of the Ni/SO4 cumulative loading ratios over time within column leachates

4.3.3 Geochemical equilibrium modeling results

To examine the phases controlling the non-conservative behavior of elements from the column waste rock, saturation indices (SI) were calculated using the Visual Minteq modeling program (Felmy et al., 1984), a Windows version of MINTEQA2 ver.3.1

database (USEPA, 1999). Table 6 shows the SI values calculated for selected mineral phases formed from a representative water quality during column tests (flush 10).

Geochemical equilibrium calculations showed that certain oxyhydroxides of iron (e.g. ferrihydrite [FeOOH]) and aluminum (e.g. gibbsite $[Al(OH)_3]$), as well as aluminum hydroxysulfates (e.g. alunite $[KAl_3(SO_4)_2(OH)_6]$) were sometimes supersaturated in materials. This suggests that sulphate concentrations (and therefore sulphate release rates) could be affected by these secondary minerals formation. However, the leachate samples collected from the columns were systematically undersaturated with respect to gypsum (CaSO₄.2H₂O) (Fig.4.7). The supersaturation of certain iron and aluminum oxyhydroxides may be due to the presence of colloids of Fe and Al in the leachate from the columns (Nordstrom, 2011). Indeed, these colloids of Fe and Al (<0.45 μ m) could have passed through the filter, exaggerating the so-called "dissolved" concentrations, and possibly distorting the thermodynamic calculations. These results of the geochemical equilibrium calculations should therefore be considered with caution, especially since none of these secondary precipitates were detected by XRD in previous work on the waste rock from the Lac Tio mine (Plante et al., 2011).



Figure 4.7 Modeled saturation index for gypsum (CaSO4.2H2O) in effluents from columns

The secondary Ni hydroxides are undersaturated for all columns, suggesting that they are not involved in controlling Ni release in the column leachates (Table 4.6). Therefore, sorption phenomena most probably exerts the main control over the Ni release, in accordance with previous studies (e.g. Plante et al., 2010, 2011a).

Columns	Co HI	Co Anor	Co AI	Co Sandwich-P1	Co Sandwich-P2
рН	6.69	7.32	7	6.91	7.27
Gypsum (CaSO ₄ :2H ₂ O)	-1.44	-1.77	-1.39	-2.32	-1.30
Goethite (FeOOH)	5.55	6.27	5.99	7.54	6.20
Ferrihydrite (FeOOH)	2.84	3.57	3.28	4.83	3.49
Hematite (Fe ₂ O ₃)	13.49	14.95	14.38	17.48	14.80
Diaspore (AlOOH)	2.97	3.01	2.57	4.62	3.31
Gibbsite (Al(OH) ₃)	2.10	2.15	1.70	3.76	2.44
Alunite (KAl ₃ (SO ₄) ₂ (OH) ₆)	0.82	-1.59	-1.25	3.79	0.19
Kaolinite (Al ₂ Si ₂ O ₅ (OH) ₄)	3.71	4.26	2.94	7.07	4.79
Jarosite-K (KFe ₃ (SO ₄) ₂ (OH) ₆)	-0.99	-1.35	-0.52	2.99	-0.68
Barite (BaSO ₄)	0.18	-1.24	0.33	-0.40	-0.67
Basaluminite (Al ₄ (OH) ₁₀ SO ₄)	0.36	-1.05	-1.84	6.00	0.58
Ni hydroxide (Ni(OH) ₂ (am))	-4.59	-5.87	-4.02	-4.34	-5.49
Ni hydroxide (Ni(OH) ₂ (C))	-2.49	-3.77	-1.92	-2.24	-3.39

Tableau 4.6 Calculated saturation indices with Vminteq for selected mineral phases formed during representative water quality column tests (flush 10)

4.4 Summary and conclusion

This study presents the results of column tests performed in the laboratory to understand the hydrogeochemical behavior of the different types of Lac Tio mine waste rocks (anorthosite or hemo-ilmenite dominated) taken separately or interbedded. Columns were filled with layers of these two types of materials simulating several configurations. The column test results showed that the water quality is largely influenced by the liquid-solid ratio of a given flush event. Indeed, the concentrations of contaminants in the drainage water from the columns were influenced by changes in the volume of leaching water. The results also show that nickel and sulphate generated by a layer of CND-generating hemo-ilmenite waste rock are not affected by an overlying anorthosite layer. However, the results revealed the removal of nickel generated from hemo-ilmenite waste rock by an underlying anorthosite layer. This suggests that nickel levels in the column effluent may in some cases be strongly influenced by the retention of Ni due to its sorption on anorthosite waste rock. This study demonstrates clearly that the layering the hemo-ilmenite and anorthosite waste rock can significantly improve the quality of the drainage water, emphasizing the fact that waste rock management scenarios can be engineered to improve/minimize the generation of contaminated mine water. Further research should be conducted to determine the range of anorthosite to hemo-ilmenite ratio that enables to control Ni release to acceptable levels.

4.5 Acknowledgments

The authors would like to acknowledge the financial support from NSERC and the industrial partners of the Research Institute on Mines and the Environment (http://irme.ca/).

CHAPITRE 5

ASSESSMENT OF HYDROGEOCHEMICAL BEHAVIOR OF LAYERED WASTE ROCK STOCKPILES: A MESO-SCALE LABORATORY EXPERIMENT

<u>Préambule</u> : cet article a été publié dans la revue *Journal of Applied Geochemistry* le 30 novembre 2021.

Poaty, B., B. Plante, B. Bussière, and M. Benzaazoua. 2021. Assessment of hydrogeochemical behavior of layered waste rock stockpiles: a meso-scale laboratory experiment. Applied Geochemistry 136 (2022): 105154.

Résumé

De grandes quantités de stériles miniers sont déblayées lors de l'extraction du minerai, en particulier dans les mines à ciel ouvert, et entreposées en surface sous formes des haldes à stériles. Lorsque ces matériaux contiennent des minéraux réactifs et sont exposés à des conditions environnementales de surface, ils peuvent générer un drainage minier contaminé. Une nouvelle approche de construction des haldes à stériles à l'aide de bancs compactés inclinés a été développée afin de contrôler l'infiltration d'eau et de minimiser la contamination. Une halde à stériles expérimentale a été construite sur le site de la mine Lac Tio afin d'évaluer la performance de cette approche dans des conditions de terrain. Pour répondre à toutes les préoccupations liées à la limitation de l'essai de terrain, des essais d'infiltration en laboratoire ont été effectués à l'intérieur d'une boîte en acier et plexiglas remplie de trois couches de matériaux différents dont une couche de contrôle d'écoulement (constituée de deux sous-couches de sable compacté et d'anorthosite concassé) et une couche de matériaux plus grossiers (stériles d'hémo-ilménite contenant des sulfures et stériles d'anorthosite non réactifs). Ces essais d'infiltration ont été réalisés en testant différents taux de précipitations (8 mm/jour, 17 mm/jour et 27 mm/jour) à différentes pentes (0, 3, 5 et 7%). Les effets du taux de précipitation et de la pente de la boîte sur le débit et la qualité de l'eau infiltrée dans le système ont été étudiés en détail. Les résultats montrent que l'angle d'inclinaison de la boîte et le taux de précipitations appliqués régissent en grande partie la déviation de l'eau vers le bas de la pente de la boîte d'infiltration. Les résultats montrent également que la distribution de l'infiltration au sein du système dépend de l'intensité des précipitations. Sur la base des résultats des essais d'infiltration, il a été constaté que les charges de nickel et de sulfate sont influencées par les taux de précipitations appliqués et qu'une meilleure déviation de l'eau par la couche de contrôle des écoulements améliore la qualité de l'eau de drainage. Ces résultats suggèrent que les charges de nickel et de sulfate sont principalement contrôlées par les effets de barrière capillaire, les voies d'écoulement et le débit. Les résultats sont utiles pour améliorer l'utilisation

d'une couche de contrôle des écoulements comme méthode de gestion et de restauration des haldes à stériles.

Mots clés : Drainage neutre contaminé, Modèle physique, Nouvelle méthode de gestion des stériles miniers, Mine Lac Tio.

Abstract

Large quantities of waste rocks are removed during ore extraction particularly in open pit mining and stored at the surface in piles. When these materials contain reactive minerals and are exposed to surface environmental conditions, they can generate contaminated mine drainage. A new approach of construction of waste rock piles using inclined compacted benches was developed in order to control water infiltration and minimize contamination. An experimental waste rock pile was built on the Lake Tio mine site to evaluate the performance of this approach under field conditions. To address all concerns related to the limitation of the field experiment, laboratory infiltration tests were conducted inside a steel and plexiglass box filled with three layers of different materials including a flow control layer (consisting of two compacted sand and crushed anorthosite sub-layers) and a layer of coarser materials (hemo-ilmenite waste rock containing sulphides and the non-reactive anorthosite waste rock). These infiltration tests were carried out testing different rates of precipitation (8 mm/day, 17 mm/day and 27 mm/day) at different slopes (0, 3, 5 and 7%). The effects of precipitation rate and box slope on the flow and quality of the infiltrated water in the system were studied in detail. Results show that the inclination angle of the box and the applied rainfall rate largely govern the diversion of water down the slope of the infiltration box. The results also show that the distribution of infiltration within the system was dependent on rainfall intensity. Based on the results of infiltration tests, it was found that nickel and sulfate loadings are influenced by the applied rainfall rates and a better diversion of water by the flow control layer improves the drainage water quality. These results suggest that nickel and sulfate loadings are mainly controlled by the capillary barrier effects (CBEs), flow paths and the flow rate. The findings are useful for improving the use of a flow control layer as a waste rock management and reclamation method.

Keywords: Contaminated neutral drainage, Physical model, Novel waste rock management method, Lac Tio mine.

5.1 Introduction

Mining operations, in particular open pit exploitation, generate significant quantities of waste rocks in order to access the orebody. These waste rocks are stored in large piles that can reach several hundred meters high and cover thousands of hectares areas (McCarter, 1990; Morin et al., 1991; Fala, 2002; Aubertin et al., 2008). In general, waste rocks from hard rock mines are stored on the surface using two conventional deposition methods, namely push-dumping and end-dumping (Morin et al., 1991; Fala, 2002; Aubertin et al., 2002, 2008). Exposed to water and oxygen of the atmosphere, these waste rocks, which may contain sulphide minerals (pyrite, pyrrhotite, etc.), can oxidize and generate acid drainage waters loaded with sulphates and soluble metals, resulting in the production of acid mine drainage (AMD) (e.g. Lefebvre et al., 2001; Ritchie, 2003; Blowes et al. 2014; Elghali et al., 2018,2019; Plante et al., 2020). When sufficient buffering capacity from gangue minerals are present in the waste rock, contaminated neutral drainage (CND) can be generated, characterized by a near neutral pH containing soluble metals, which concentrations can be sometimes over regulated limits (e.g. Nicholson, 2004), as observed at the Lac Tio mine site (Québec, Canada; Plante et al. 2011). The Lac Tio mine extracts a rich-hematite/ilmenite orebody and produces two types of waste rocks, namely anorthosite and hemo-ilmenite waste rocks. Hemo-ilmenite waste rock contains small proportion of pyrite, responsible for the generation of Ni-bearing CND. The latter, if not treated, could sporadically exceeds 0.5 mg/L, an environmental standard prescribed by the Directive 019 of the Quebec province and the Canadian Metal and Diamond Mining Effluent Regulations (Plante, 2010; Bussière et al., 2011).

To limit the contamination of drainage waters, a new method for the construction of waste rock piles was proposed (Aubertin et al., 2005). The aim of the method is to minimize the infiltration of water into the reactive portion of piles, and therefore to reduce the production of contaminated drainage using inclined flow control layers

(FCLs) which can divert water laterally; in the case of Lac Tio mine, the goal is to divert water to avoid possible infiltration into the core of the pile made of the reactive hemo-ilmenite (Broda et al., 2013, 2017; Dawood and Aubertin, 2009; Fala et al., 2005). These FCLs consist of fine and dense material that can develop capillary barrier effects when placed over the underlying coarser waste rocks. The diversion capacity of the FCL depends on its hydrogeological properties, thickness, and slope angle, and also on the precipitation rate applied at the top (e.g., Ross, 1990; Bussière et al., 2007; Aubertin et al., 2009). To assess the performance of this new method at the field scale, an experimental waste rock pile was built at the Lac Tio mine site (Bussière et al., 2015; Martin et al., 2017).

However, the impact of some important factors, including thickness, slope of the material layer and the rainfall rate, on the effectiveness of the FCL is difficult to assess in the field due to the difficulties to control all parameters at the large scale. Many uncertainties can be elucidated by the use of an experimental model in the laboratory (Bussière et al., 2003; Tami et al., 2004) such as the comprehension of physical and geochemical processes, the influence of boundary conditions (ex. precipitation) and geometry. This explains the large number of laboratory infiltration studies using physical models to investigate these factors (thickness, slope angle and the rate of precipitation) influencing the performance of cover systems.

Miyazaki (1988, 1993) conducted several infiltration tests using infiltration boxes filled with a fine-grained layer covering coarse-grained material, to better understand water movement in a capillary barrier system. The author noticed that the water flow from the fine-grained layer to the coarse-grained layer was diverted laterally along the interface. Bussière (1999) designed and used an inclined box to study the influence of angle and precipitation rate on the unsaturated behavior of a bilayer cover system (sand and gravel) as well as a three-layered cover system (gravel/sand/gravel). The results

showed that the distribution of water varied with location along the inclined stratified system. In these tests, desaturation occurred near the top of the slope in the finer grained material. Tami et al. (2004) conducted a series of experiments to investigate the mechanism and effectiveness of a capillary barrier model consisting of a fine sand over gravelly sand. The authors placed each 200 mm in thickness of the cover with a slope angle of 30° under different initial conditions and different precipitation rates. The results of the experiments show that the performance of the capillary barrier under the influence of high precipitation rates is mainly controlled by the storage capacity. Qian et al. (2009) have conducted laboratory infiltration tests using a glass box, filled with fine-grained quartz sand where an interlayer of coarse-grained quartz sand was emplaced horizontally or at various slopes (10° and 20°). The results show that the thickness of the underlying coarse-grained layer directly impacts the efficiency of the capillary barrier to divert water. The efficiency of capillary barrier increases with increasing thickness and/or slope of the coarse interlayer. Therefore, more water is diverted laterally but this efficiency decreases with increasing sprinkling intensity. Ng et al. (2015) designed a physical model to investigate the effectiveness of a three-layer capillary barrier cover system in minimizing rainfall infiltration. This three-layer cover system consisted of a compacted clay layer lying beneath a conventional cover with capillary barrier effects (CCBE), itself composed of a silt layer sitting on top of a gravelly sand layer. The cover system was inclined at a slope angle of 10° and subjected to extreme rainfall followed by evaporation. Results show an insignificant percolation of water into the three-layer capillary barrier cover system because of the role of clayey layer enabling lateral diversion in the gravelly sand layer above. This means that the gravelly sand layer, which was a capillary barrier in a conventional CCBE cover system, became a lateral deviation passage due to the presence of the clay layer.

This paper describes laboratory infiltration tests that were carried out in a physical model to understand the factors that influence the performance of the FCL that was

built at the Lac Tio mine (Québec, Canada). These laboratory infiltration tests were conducted inside a steel and plexiglass box filled with coarse materials (hemo-ilmenite and anorthosite waste rock) over which a FCL made of 2 sub-layers (a compacted sand layer and a compacted crushed anorthosite layer) was installed. These infiltration tests aimed to study the impact of slope angle and rainfall intensity on the flow and quality of water infiltrated in the system.

5.2 Description of the experimental system

5.2.1 Infiltration box

The experimental set-up consisted of an infiltration box, equipped with a rainfall simulation system. The box measured 2.47m (length) x 0.6m (width) x 1.5m (height) and is shown in Fig.5.1. The box frame and its side walls consist of 8mm-thick steel plates. One of the side walls was made of four rectangular transparent windows (Plexiglass®) separated by steel frames (see Fig.5.1a), allowing to observe the wetting front during infiltration. Eight (8) drains (1 cm in diameter) were installed along the base of the box. These drains are equipped with tubes to lead the drainage water into the collection buckets (see Fig.5.1a and b). Eight drains are located at different distances along the bottom of the box, namely: 15.5 cm (drain 1), 45.5 cm (drain 2), 75 cm (drain 3), 107 cm (drain 4), 135 cm (drain 5), 160.7 cm (drain 6), 195.2 cm (drain 7) and 225.7 cm (drain 8). The drains were installed in the center of the box to allow free drainage (without affecting the flow which was essentially one dimensional) and collection of effluent in the buckets through the tubes. Prior to filling the box with the materials, the surface of each drain located at the bottom of the physical model was covered with a geotextile of dimensions 4 cm x 4 cm in order to prevent the loss of fine particles during infiltration tests. To simulate an inclined cover system, an elevator was used to lift the box from its left end.



Figure 5.1 Photos illustrating the experimental set-up and related accessories

5.2.2 Rainfall system, measuring devices and acquisition data

A rainfall simulation system was placed above the box (Fig 5.1d). It has been designed to create precipitation of constant intensity. For the detailed description of the rainfall system and its calibration see supplementary materials.

Sixteen 20L buckets were used to collect infiltrated water. These buckets were connected in pairs to each outlet drain using a pipe. The mass of water collected in each bucket was measured using an electronic balance. At the end of each infiltration test, a water sample was taken from the buckets. Before sampling, the water collected in the buckets was previously stirred to ensure homogeneity. Each sample of the water collected from the buckets was analyzed for geochemical parameters such as pH, electrical conductivity (EC), acidity and alkalinity. An aliquote of this water sample

was acidified to 2% with nitric acid (HNO₃), filtered at 0.45µm, and analyzed by ICP-AES to determine the concentrations of soluble metals and sulphates.

5.2.3 Waste rock characterization and installation

The physical model was specially designed to mimic the internal structure of the experimental pile, covered with a flow control layer (FCL), which was built at the Lac Tio mine (Martin et al., 2017). The materials used in the physical model were sampled at the Lac Tio mine site during the construction of the field experimental pile. The Lac Tio waste rocks have been extensively characterized in previous studies (e.g., Bussière et al., 2008, 2011; Demers et al., 2011; Pépin et al., 2008; Plante et al., 2010, 2011; Peregoedova et al., 2013).

The waste rocks were installed in the box at a deposition angle of 35° by mimicking the push-dumping technique used in the construction of the Lac Tio waste rock piles. A total of four sections of coarse material was placed one after the other in the box (Fig. 5.2). The first three sections consisted of hemo-ilmenite waste rock (>5% hemo-ilmenite), while the fourth section consisted of anorthosite waste rock (<5% hemo-ilmenite and <0.1% sulfur).

As in the experimental pile, a FCL made up of two layers of fine and compacted materials (sand and crushed anorthosite), was placed above the waste rock filled in the box. Indeed, a 8 cm thick sand layer and a 10 cm thick layer of crushed anorthosite waste rock were set up successively over the coarse waste rocks. Even though the properties of the sand and crushed anorthosite (e.g., air entry value, porosity) are different, these two layers together constitute the FCL, and this design should promote the development of a capillary barrier effect at the base of the sand layer. The materials used in the FCL were placed using successive 2 to 3 cm layers parallel to the flat surface of the box. Each sub-layer was compacted with a manual steel head compactor.

The hemo-ilmenite waste rock (HI-S1, HI-S2 and HI-S3) and uncrushed anorthosite (Anorthosite-S4) were sampled during installation of the physical model and characterized. The materials were oven dried at about 60°C for 48 h. The gravimetric water content of each sample was determined, and the results were used in the calculation of the porosity. The specific gravity (G_s) of the materials was evaluated in the laboratory using a Micromeritics Accupyc 1330 helium pycnometer, according to ASTM D-550-06. The particle size distribution of the materials was determined by conventional sieving, according to ASTM D422. Analysis of whole rock samples was obtained by X-ray fluorescence spectrometry (XRF; Thermo Scientific Niton XL3t). The total sulfur (S) present in these materials was determined using an ELTRAS CS-2000 induction furnace.





The mineralogy of the waste rock placed in the infiltration box was determined by Xray diffraction (XRD; Bruker AXS Advance D8). The saturated hydraulic conductivities (k_{sat}) of sand and crushed anorthosite were estimated using a flexiblewalled permeameter in the laboratory (Breard Lanoix, 2017). k_{sat} of hemo-ilmenite waste was determined using constant or variable head permeability tests, in large columns (Peregoedova, 2012).

5.2.4 Test procedures in the infiltration box

A series of experiments was conducted to study the hydrogeochemical behavior (e.g., water movement and quality) of the system under different inclination angles and precipitation events (see Table 5.1). Preliminary tests were first performed to adjust the experimental protocol.

Infiltratio	ration tests $\begin{array}{ccc} Rainfall \\ events \end{array} \begin{array}{ccc} Slope \ \alpha \\ volume \end{array} \begin{array}{c} Applied \\ water \\ volume \end{array} Watering \\ duration \end{array}$		Watering duration	Collected water volume	Percentage of collected volume				
Name	Order	mm/day	%	L	min	L	%		
8A	6		0	80,3	5,7			75,8	94,3
8B	3	o	3	87,6		78	89,1		
8C	9	8	5	80,3		73,7	91,7		
8D	12		7	87,6		78,3	89,4		
17A	4	17	0	178,2	11,5	164,9	92,5		
17B	1		3	185,6		164,7	88,7		
17C	7		5	170,9		155,6	91,1		
17D	10		7	185,6		183,6	98,9		
27A	5		0	289,8		274,4	94,7		
27B	2	27	3	289,8	10.5	280	96,6		
27C	8	21	5	277,3	19,5	270,5	97,6		
27D	11		7	277,3		275,2	99,2		

Tableau 5.1 Detailed experimental conditions and amounts of water collected at the bottom of the physical model

Then, a total of 13 infiltration experiments were carried out, which encompassed combinations of four slopes (0, 3, 5, and 7%) and three rainfall events (8, 17, and 27 mm/day). These simulated rainfall events fell within minutes (see Table 5.1), while making sure to avoid runoff, not over a whole day. Therefore, the nomenclature used in the paper to describe the rainfall events (8, 17, and 27 mm/day) do not necessarily correspond to the actual precipitation rates that might fall in one day in the field.

The order of the infiltration tests is shown in Table 5.1, each infiltration test having been carried out one week after the previous one, except test 17D which was achieved six weeks after the previous test (see Table 5.1). The experiments indicated in Table 1 were carried out by successively applying the rainfall events of 17, 27 and 8 mm/day to the FCL surface for each angle of inclination (0, 3, 5, and 7%). The system was not flushed between each infiltration test. However, to flush the oxidation products likely to be present in the materials and to test the infiltration procedures, the FCL surface was first subjected to successive rainfall events (17, 27 and 8 mm/day) at 5% inclination. After each rainfall event (infiltration test), the FCL surface was left exposed to laboratory conditions $(20 \pm 2^{\circ}C)$ for 7 days except for the infiltration test 17D carried out at 7% for an infiltration event of 17 mm/day where the drying period was six times longer. However, the other two 7% infiltration tests (performed at of 27 and 8 mm/day successively after the 17 mm/day one) were subjected to the same 7 day drying period. The duration of drainage of the infiltrated water collected at the bottom of the physical model through the 20 L buckets was generally between 48 h and 120 h for all the infiltration tests. Table 5.1 provides the detailed experimental conditions.

5.3 Results and discussion

5.3.1 Materials characterization

The particle size distributions of the different materials used in the infiltration box are shown in Figure 5.3 while Table 5.2 summaries the properties of these materials. Fig. 5.3 shows that the sand has a relatively uniform particle size distribution with more than 90% of particles having a diameter between 0.08 and 1.25mm. The coefficients of uniformity (C_U) are equal to 3.1 and 24.4 and those of curvature (C_C) are 1.21 and 1.52, for sand and crushed anorthosite, respectively. The particle size analysis of crushed anorthosite (Figure 5.3 and Table 5.2) classify it as well graded sand with some silt (SW-SM) according to the USCS classification (McCarthy, 2007).



Figure 5.3 Grain-size distribution of the materials used in the three-layer system

Figure 5.3 also shows that more than 60% of the hemo-ilmenite (HI-S1, HI-S2 and HI-S3) and uncrushed anorthosite (Anorthosite S4) waste rock had a particle size distribution between 2 and 20mm. The uniformity coefficient C_U varies between 6 and 64, which classifies the material as a well-graded material.

The masses of dry materials, the initial water content values and measured and average values of the specific gravity (G_s) of the materials placed in the infiltration box are shown in Table 5.2, which also provides the porosity of the material layers. The average and measured values of G_s were 2.68, 2.68 and 4.16 for sand, anorthosite and ilmenite waste rock, respectively. The high G_s values of ilmenite waste rock samples are correlated with the hemo-ilmenite proportion in the sampled materials. The porosity was between 0.35 and 0.58 for the hemo-ilmenite and uncrushed anorthosite, and equal to 0.37 and 0.29 for the layers of sand and crushed anorthosite, respectively.

Tableau 5.2 Features of materials from each section and layer of experimental system (AEV: air entry value; ksat: saturated hydraulic conductivity; θ r: residual volumetric water content; ψ r: residual suction)

Material type	Sand	Crushed	HI		Anorthosite	Ref	
	??	Anorthosite	S 1	S2	S 3	S4	-
Dry mass (kg)	245.1	228.8	818.6	892.1	789.1	587.9	
Specific gravity G _s	2.68	2.70	4.14	4.26	4.09	2.66	
Porosity n	0.37	0.29	0.39	0.55	0.58	0.35	
Initial water content (%)	5.5	2.8	0.5	0.5	0.5	1.7	
Grain size distribution							
D ₆₀ (mm)	0.28	2	2.8	4.9	6.8	5	
D ₃₀ (mm)	0.175	0.5	0.85	1.6	3.2	0.43	
D ₁₀ (mm)	0.090	0.082	0.152	0.2	1.1	0.078	
Uniformity coefficient, C _U	3.11	24.39	18.42	24.5	6.18	64.10	
Coefficient of curvature, C _C	1.21	1.52	1.69	2.61	1.37	0.47	
Porosity n	0.37	0.31			0.21		a,b,c
$\theta_{\rm r}$	0.03	0.08			0.05		a,b,c
AEV (kPa)	3.8	0.5			0.1		a,b,c
ψ _r (kPa)	10.2	2			1.5		a,b,c
k_{sat} (m/s)	7.10-6	5.10-6			1.10-3		a,b,c

References: a. Bréard Lanoix, 2017; b. Peregoedova, 2012; c. Dubuc, 2018.

The other hydrogeological properties of the materials (measured in the laboratory) used in the physical model, from other studies (Bréard Lanoix et al., 2017, Martin et al., 2017 and Dubuc, 2018), are also shown in Table 5.2.

The results of the chemical characterization by X-ray fluorescence analysis (XRF) of the materials placed in the infiltration box are presented in Table 5.3. Only some elements of interest are shown, where it is worthwhile to mention that the chemical compositions of the hemo-ilmenite waste rocks from the first three sections (S1, S2 and S3) are similar. Therefore, the chemical composition of the hemo-ilmenite waste rock placed in the physical model is considered homogeneous in these first three sections.

Anorthosite waste rock from the upper part of the FCL and those from section 4 (S4) of the coarse material layer contain less than 0.1% sulfur and low hemo-ilmenite content, similar to that of the experimental pile (Poaty et al., 2018). The hemo-ilmenite waste rock of the infiltration box contains more than 30% iron and 16% Ti (Table 5.3), which corresponds to a hemo-ilmenite content of 67%.

The mineralogical composition of the waste rock samples placed in the infiltration box obtained by X-ray diffraction (XRD) is presented in Table 5.4. Mineralogical composition showed that anorthosite waste rocks were mainly composed of silicates (labradorite and enstatite). Anorthosite waste rocks also contains labradorite, pigeonnite, orthoclase, rutile, magnetite, orthoclase and quartz. The mineralogical data showed that only minerals such as ilmenite intimately linked to hematite as intergrowths, labradorite, spinel and quartz were detected in the hemo-ilmenite waste rock by XRD. The main minerals occurring in the waste rock were ilmenite (between 40 and 60 wt%) and hematite (between 20 and 40 wt%), called hemo-ilmenite, because

they occur under form of exsolution lamellae in the Tio mine deposit (Plante et al., 2011).

		Crushed				
Element	Sand	anorthosite		HI		Anorthosite
			S 1	S2	S 3	S4
Fe (%)	3.3	2.3	32.1	34.2	31.6	0.74
Ti (%)	0.40	0.81	16.7	18.3	16.4	0.09
S (%)	-	0.025	0.18	0.24	0.18	0.001
Ni (mg/kg)	-	<100	368.9	420.4	268.8	<100
Si (%)	12.2	9.0	2.1	1.2	2.1	9.2
Ca (%)	2.2	5.3	1.3	0.89	1.25	5.3
Al (%)	1.45	2.35	1.6	1.3	1.5	2.3

Tableau 5.3 Chemical characterization of materials from each section and layer of the physical model

According to the work of Plante et al. (2010), most heavy metals (Co, Cr, Mn, Ni) are associated with hemo-ilmenite and precisely its sulphide content, although sulphide minerals were below the XRD detection limit. The results also show that the mineralized waste rock also contained between 20 and 40 wt% of labradorite.

No carbonate mineral was detected by XRD in the hemo-ilmenite and the anorthosite waste rocks. Therefore, only the silicate minerals (in particular labradorite) are responsible for the neutralization of the acid resulting from the sulphides oxidation (Plante et al., 2011).

Tableau 5.4 XRD results from the physical model samples. A phase more than 80 wt% is indicated by xxxx, that between 40 and 60 wt% is indicated by xxx, xx indicates a phase present between 20 and 40 wt%, and x is a phase present at <10 wt%

Minerals	Formula	Crushed anorthosite	HI			Anorthosite
		?	S 1	S2	S 3	S4
Labradorite	(Ca,Na)(Si,Al) ₄ O ₈	XXXX	XX	xx	XX	XXXX
Ilménite	FeTiO ₃	Х	XXX	XXX	xxx	х
Hématite	Fe ₂ O ₃	Х	XX	XX	XX	Х
Spinel	MgAl ₂ O ₄			х	х	
Magnetite	Fe_3O_4					Х
Pigeonite	(Ca,Mg,Fe)(Mg,Fe)Si ₂ O ₆					х
Orthoclase	KAlSi ₃ O ₈	Х				Х
Rutile	TiO_2	Х				х
Enstatite	MgSiO ₃	Х				Х
Quartz	SiO ₂	Х			х	Х

5.3.2 Results of water flow behavior

5.3.2.1 Water balance analysis

The average total quantities of water used to simulate the rainfall (watering), namely 85 L/5 min, 178 L/11.5 min and 285 L/19.5 min, correspond to precipitation rates of 8, 17, and 27 mm/day, respectively. During infiltration tests, watering received at the surface of the cover system can infiltrate, runoff depending of the slope, or evaporate. In order to account for the movement of water in the cover system, a water balance has been established for the physical model. The water balance can be expressed as follows (Tami et al., 2004b):

 $V_{Preci} = V_{perc} + V_{Runoff} + V_{evap} + V_{stor}$ (Eq 1)

Where V_{preci} is the total volume of precipitation (L), V_{perc} is the total percolation (L), V_{runoff} is the total volume of runoff (L), V_{evap} is the total evaporation (L) and V_{stor} is the total change in water storage (L). The total volume of precipitation is the total amount of water added above the cover system. The total percolation can be defined as the amount of water that has infiltrated into the cover system materials and has been transported to the base to be collected in the buckets. Thus, total percolation is calculated as the sum of the amounts of water from each drain located at the bottom of the box and is presented as a proportion of the added water that fell on the surface of the cover system during an infiltration test (see Table 5.1). Evaporation is considered negligible (therefore $V_{\text{evap}}=0$) because water was collected quickly at the bottom of the infiltration box. Surface runoff is also considered zero ($V_{\text{Runoff}} = 0$) because water accumulates at the bottom of the slope, then seeps in and is collected at drain 8 (see Fig. 5.2). Therefore, Eq 1 can be reduced to the following relation:

 $V_{Preci} = V_{perc} + V_{stor}$ (Eq 2)

The total change in water storage, Vstor, is generally evaluated with volumetric water content probes. Vstor can also be obtained by subtracting the total volume of the watering cycle by the total percolating water recovered from the drains (Eq 1). As the total volume of flushing water, the total percolation was measured during the tests. Water balance components measured during the tests are presented in Fig. 5.5d and Table 5.1. The total percolation recorded at the bottom of the coverage system ranged from 81.0% to 99.2% which correspond to a water storage at the end of each experimental run between 19% and 0.8%, respectively (see Table 5.1). The test results show that a higher precipitation rate produced higher total percolation. For example,

the precipitation rate of 27 mm/day applied during the test 27D (with a slope of 7%) led to a percolation of 99.2% of the rainfall, higher than that generated by the precipitation rate of 8mm/day (89.4% of the rainfall) applied during test 8D (with also a slope of 7%). Similar results were found for tests 27C vs 8C and 27B vs 8B. As discussed previously, larger rainfall results in increased water storage (water accumulation) in the sand layer (layer of fine material) during precipitation. As a result, the accumulation of water in the sand layer, therefore the storage of the capillary barrier, is affected by the significant infiltration of water at a given point (Down Dip Limit or DDL point; Ross, 1990). Thus, during rainfall, water infiltration within the cover system is influenced by the rate of precipitation. At the end of a given test, the change in water storage of the FCL can be considered to be related to the more or less rapid desaturation of the FCL layers relative to the slope of the box: a steeper slope probably results in faster desaturation of the FCL. Therefore, the difference in water storage between tests is caused by insufficient time to reach the equilibrium saturation of the FCL at the end of a test.

5.3.2.2 Effect of rate watering and inclination angle on measured outflow

The cumulative water volumes collected along the bottom of the box at different inclination angles and at different infiltration rates are shown in Figure 5.4.

These cumulative water volumes were obtained by successively combining the amounts of leachate collected from each drain (from drain 1 to drain 8). To better represent the cumulative water volumes, the eight drains located at the base of the box were combined in pairs (drain 1 with drain 2, 3 with 4, 5 with 6 and 7 with 8), thus giving four outlets, namely: outlet 1 (45.5 cm), outlet 2 (107 cm), outlet 3 (160.7 cm) and outlet 4 (225.7 cm).



Figure 5.4 Cumulative water volume collected along the bottom of the box at 8 (a), 17 (b) and 27mm/day (c), respectively, as well as the total applied and collected water (d)

At a watering rate of 8 mm/day, the proportion of water collected at 45.5 cm (outlet 1) was between 0 and 0.6% for all inclination angles. Therefore, there was almost no infiltration towards outlet 1. This could be due to lower porosity of the S1 section (n = 39) of the waste in comparison to S2 (n = 0.55) and S3 (n = 0.58).

At an applied watering rate of 8 mm/day, about 80% of the cumulative water volume was collected at 160.7 cm (outlet 3) when the physical model was in horizontal position (0%) (see Fig 4a). However, at this same watering rate (8mm/day), only about 30-40% of cumulative water volume was collected at this same distance (160.7 cm) when the box was inclined to 3, 5 and 7% (see Fig 6a). Therefore, about 60-70% of cumulative

water volume was laterally deflected and collected at the bottom of the slope when the inclination angle of the box is 3, 5 or 7%. This shows that the diversion of the water was influenced by the inclination angle.

By applying a watering rate of 17 mm/day to the physical model placed horizontally, approximately 20% of water was collected at the base of the box, at 45.5 cm. With the same precipitation rate (17 mm /day) and angles of 3 to 7%, only about 0.5 to 4% of water was collected at the base at 45.5 cm. Therefore, the inclination of the box minimizes the infiltration of water at the top of the slope. The percentage of cumulative water volume collected at the bottom, at 160.7 cm, decreased with the increase of the slope angle of the inclined model (78.1, 71.9 and 58.4% of cumulative water volume collected at the outlet 3 for inclination angles of 0, 3 and 7%, respectively, and 42% of cumulative water volume for a slope of 5%). Therefore, the water infiltration is further minimized by an increase in the inclination angle of the box.

To simulate heavy rainfall, the surface of the three-layer cover system was subjected to a precipitation rate of 27 mm/day. The results obtained at the bottom of the model, show almost the same trends as for 17 mm/day for the different inclination angles. These results demonstrate that the inclination angle of the model and the applied rate of watering largely govern the diversion of water down the slope of the three-layer cover system.

These tests were performed for transient conditions with relatively low precipitation rates. Other tests were carried at higher rates until steady state is reached (see Raymond et al. 2020). The results showed the limitations of the infiltration box with water accumulation at the bottom of the system due to the drainage capacity of the system which was less than the precipitation rate.

5.3.3 Results of geochemical behavior

5.3.3.1 Electrical conductivity and pH measurement

As part of the geochemical analysis, electrical conductivity (EC) and pH measurements were performed on samples of water collected in the buckets through the drains located at the bottom of the infiltration box. The measured pH values of the leachates ranged from 6.4 to 7.6, similar to those obtained in the field (e.g., Plante et al., 2014; Bussière et al., 2015; Martin et al., 2017; Poaty et al., 2018, 2021). The EC measured in the water collected in the buckets at the base of the physical model can be useful for understanding the flow mechanisms occurring in the materials of the cover system, since EC is correlated to the total ions in solution (Momeyer, 2014), which is controlled by the material reactivity, the water residence time, and the residual pore water loading. Figure 5.6 shows the EC values measured in the leachates for the different rainfall simulation rates and various inclination angles of the physical model (0, 3, 5 and 7%). The lowest measured EC values are obtained at drains 7 and 8, which are mostly below anorthosite materials (less reactive one). These EC values indicate that the water flowing through the anorthosite waste rock is less contaminated (Poaty et al., 2018). This could be due to the combined effect of anorthosite (weakly reactive material) and the volume of water (more water at the bottom of the slope). The drains 1 to 6 located under hemo-ilmenite materials, generated waters with the highest ECs values.

By comparing the ECs values obtained when the box was placed horizontally and at various slopes (3, 5 and 7%), it is noted that the ECs values vary more between the different drains (from drain 1 to drain 8). Indeed, ECs values of the leachate collected from each drain vary little when the box is in horizontal position (0%) whereas with the slope (3, 5 and 7%), the variation is more significant from one drain to another (see Figure 5.5).



Figure 5.5 Electrical conductivity measured in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 2500 µS/cm in c) compared to 1200 µS/cm in a) and b))

This can be explained by the drainage rates of water collected at the different drains. Indeed, the low and high EC values of water collected from the drains located under hemo-ilmenite material could be related to small and large water infiltrations, respectively (see Fig. 5.4a, b and c). Therefore, greater water infiltration would favor a greater contact between water, mineralized waste rock material and its residual porewater. This significant water infiltration may be related to the preferential flowpaths that occur in certain areas because of the presence of interconnected macropores or obstacles that concentrate the flow in some pathways (Bay, 2009). The higher porosity of ilmenite waste rock in section S2 (n = 0.55) than in section S1 (n = 0.39) (see Table 5.2) probably could favor a preferential flowpath along the angle of deposition towards the center of the box. This could therefore explain the high EC

117

values recorded at drain 4 (see Fig. 5.5) located at the bottom of the slope of the densest material section (S1; see Fig. 5.2). The water that percolates along the bottom of the box after hitting this bottom during its infiltration, could also contribute to significant volumes of leachate collected from some drains. However, Figure 5.5 also shows that the ECs values are significantly affected when increasing the sprinkling rate.

5.3.3.2 Nickel and sulfate concentrations

Figures 5.6 and 5.7 show the nickel and sulfates concentrations measured in leachates collected from the drains 1 to 8 located at the box bottom (see Figure 5.8).



Figure 5.6 Measured concentrations of nickel in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 7 mg/L in c) compared to 4 mg/L in a) and b))



Figure 5.7 Measured concentrations of sulfates in water collected along the bottom of the box (Y_{max} is 1800 mg/L in c) compared to 800 mg/L in a) and b))

For the three applied rainfall rates (8, 17 and 27 mm/day) when the box was successively inclined at 3, 5 and 7%, Figures 6 and 7 generally show a gradual decreasing trend in the nickel and sulfates concentrations from the top to the bottom of the box slope, with a few exceptions (with an inclination angle of 7%). The lowest nickel and sulfate concentrations (0.026 and 67.5 mg/L, respectively) were obtained at the bottom of the box slope, which is consistent with the EC values measured (§ 3.3.1). Therefore, the water passing through the uncrushed anorthosite is less contaminated than that flowing through the hemo-ilmenite waste rock. As explained previously, this could be due to the combined effect of the weakly reactive material (anorthosite) and

119
the significant volume of water collected at the bottom of the slope. The highest nickel and sulfate concentrations are generally obtained in the water collected through the drains located at the upper-slope (drains 1, 2 and 3). Therefore, Ni and SO₄ concentrations are controlled by the leachate volumes because the higher concentrations are recorded in the drainage waters collected from the drains (1, 2 and 3) which generate the lower volume of leachate (see Fig. 5.4a, b and c). Similar results were reported by Wu et al. (2007).

The sequence and timing of the experiments (see Table 5.1) do not seem to affect the obtained results. Water quality is mainly influenced by the liquid-solid ratio of a given flush event as demonstrated by Poaty et al. (2021) in column tests on the same materials. However, oxidation products accumulated between each infiltration test, which get rinsed during subsequent infiltration events, can significantly impact water quality. Indeed, Ni and sulfate high concentrations (up to 3.5 and 780 mg/L, respectively) were observed during the infiltration test at 7% inclination for an infiltration event of 17 mm/day (test 17D), achieved six weeks after the previous test (see order of tests; Table 5.1). The drying period (intervening in the drying-wetting cycle) of test 17D was six times longer than the previous tests (see order of tests; Table 5.1). This probably led to a greater accumulation of soluble secondary minerals (Benzaazoua et al., 2004; Nordstrom et al., 2009, 2011; Vriens et al., 2019), which accentuated the higher Ni and sulfate concentrations generated in this and subsequent events (see order of tests; Table 5.1).

The results obtained with infiltration tests at 7% could also indicate that the concentrations of contaminants (Ni and sulfate) increase at a steeper slope (7%) (as observed also by Sirjani and Mahmoodabadi, 2014). Indeed, with an inclination angle of 7%, Ni and SO₄ concentrations collected from the box doubled or even tripled for some drains (between 0.42 and 6.30 mg/L, and 127 and 1665 mg/L, respectively),

compared to the other slopes (between 0.026 and 1.41 mg/L, and 67.5 and 570 mg/L, for 0, 3, and 5%, respectively). Therefore, a steeper slope could lead to a greater water desaturation of materials, promoting the release of higher concentrations of the oxidation products (Ni and SO₄).

Ni and SO₄ concentrations obtained at the scale of the physical model (up to 6.30 mg/L Ni and up to 1665 mg/L SO₄) are similar to those obtained at other scales, in particular columns (up to 4.5 mg/L Ni and up to 1500 mg/L SO₄ reported in Poaty et al., 2021), field cells (0.1-3.2 mg/L Ni and 30-165 mg/L SO₄ reported in Plante et al., 2014) and experimental waste rock pile (up to 8.8 mg/L Ni and up to about 3500 mg/L SO₄ reported in Poaty et al., 2018).

5.3.3.3 The nickel and sulfate loadings

In order to understand the contribution of the leachate from the preferential flow paths and the slope of the box to the total loading of contaminants, the cumulative nickel and sulfate loadings generated by the materials contained in the box when subjected to rainfall simulations, were determined. To calculate the cumulative loadings of these contaminants (Ni and SO₄), the infiltration box was virtually separated in eight compartments as shown in Figure 8. The cumulative nickel or sulfate loading from each drain was estimated by multiplying the concentration of this chemical element and the volume of collected leachate, divided by the estimated total mass of materials contained in each virtual compartment.



Figure 5.8 Representation of the physical model in virtual compartments



Figure 5.9 Nickel loadings from drains located along the bottom of the box (a, b, c) and from the whole physical model (d)

Figures 5.9 and 5.10 show respectively the nickel and sulfates loadings from the drains along the bottom of the box and from the whole physical model when it is successively inclined at an angle of 0, 3, 5 and 7% for different precipitation rates (8, 17 and 27 mm/day). Figures 9d and 10d show respectively that the highest cumulative nickel and sulfate loadings are caused by the highest applied watering rates, and therefore by the largest water volumes.

The large volumes of water collected from some drains are generated by the part of the water diverted along the slope (as shown by Raymond et al., 2020 via numerical

123

simulations of the same physical model). The conceptual flow paths in a FCL placed on waste rock are shown in Figure 5.11. Indeed, preferential flow paths developed due to capillary barrier effects (CBEs) between the FCL and coarse materials. Following a rainfall event, the water that arrives at the interface between sand and HI material is diverted along the slope. There is accumulation of water at the bottom of the sand along the interface with the coarse materials. The accumulation of water in the sand layer becomes large enough so that at DDL point, the pressure at the interface reaches the water entry value WEV (or water entry pressure) of HI material (as shown by Bussière et al., 1998). Then, there is a significant infiltration of water in this location or zone (DDL point).

The large volumes collected from certain drains are also due to the internal rerouting of flow paths due to secondary CBEs developed between the HI material and the uncrushed anorthosite layer (see the results of numerical simulations from Raymond et al., 2020). Indeed, the results from Raymond et al. (2020) showed the formation of a water table at the bottom of the box, bringing up part of the drainage water towards the left from the uncrushed anorthosite layer to within the HI material, thus contributing to the higher volumes collected from certain drains (see Figure 5.11).

Therefore, the infiltrated water flow paths could be long and allow the water to become loaded with a higher amount of the dissolved contaminants along the paths. Indeed, the water-rock interaction and subsequent geochemical evolution is controlled by two types of flow: preferential flow through the coarse-sized fraction (macropore flow), and matrix flow through finer-grained materials (Nicol et al., 2005; Blackmore et al., 2014, Amos et al., 2015). Macropore flow can be activated under intense watering, resulting in higher discharge rates (as shown by Bay (2009)). Therefore, preferential flow paths generating higher loadings of contaminants are favored by high watering rates applied and CBEs. However, the impact of larger cobbles, boulders and

macropores on the characteristics of the flow path and water-solid surface area contact in waste rock piles cannot be captured here.

The results also show that total loadings of contaminants generated from the 7% slope are higher than those obtained from the smaller ones (0, 3 and 5%) (see Figure 9d). This could be explained by the fact that the DDL point tends to move down the slope (Bussière, 1999) with increasing angle of inclination, inducing lateral flows, with higher residence times. Therefore, the nickel and sulfate loadings in the drainage waters collected at the base of the box are mainly controlled by the CBEs, flow paths, and the flow rate.

The results also indicate that the contaminant loadings are lower at the top of the slope due to the low water flows (see Figures 5.9 and 5.10 a, b and c). Figures 9 and 10a, b and c show, with few exceptions, that nickel and sulfate loadings from drain 8 were generally lower than those from the other drains. This is due to the low sulphide content of anorthosite (Bussière et al., 2011, Plante et al., 2010, 2011, Poaty et al., 2018, 2021) over drain 8. Although the virtual compartment related to the drain 7 contained a thick layer of anorthosite over a thin layer of hemo-ilmenite, the results show that the Ni generated by the hemo-ilmenite layer was not influenced by the presence of an anorthosite layer at the top, consistent with column tests done on a separate study (Poaty et al., 2018, 2021). When different watering rates (8, 17 and 27 mm /day) were applied, the largest nickel and sulfate loadings (highest reactivity) exited through drains 4, 6, and 7.



Figure 5.10 Sulfate loadings from drains located along the bottom of the box (a, b, c) and from the whole physical model (d)

These high nickel and sulfate loadings from exiting the drains 4, 6, and 7 have therefore been generated by large volumes of water passing through the hemo-ilmenite waste rock contained in the virtual compartments concerned.



Figure 5.11 Conceptual flow paths in a flow control layer (consisting of two compacted sand and crushed anorthosite inclined sub-layers), placed on a coarse-grained material (waste rock)

5.4 Summary and conclusion

A series of infiltration tests were conducted in the laboratory by using a physical model consisting of a box filled with three layers of different materials, namely a crushed compacted anorthosite layer on a compacted sand layer (both constituting the flow control layer) over an underlying layer of coarse material (hemo-ilmenite and anorthosite). These infiltration tests were carried out with a box placed horizontally or inclined at different slopes (3, 5 and 7%) and subjected to different rainfall (8, 17, and 27mm/day). These infiltration tests aimed to understand the factors that influence the performance of the cover system that was built at the Lac Tio mine (Québec, Canada). Based on the results, the following conclusions may be drawn from this study:

- The inclination angle of the box and the applied rainfall rate largely govern the diversion of water down the slope of the three-layer cover system.
- 2) The lowest nickel and sulfate concentrations (0.026 and 67.5 mg/L, respectively) were recorded at the bottom of the box slope where water is flowing into the anorthosite material, which is consistent with the EC values measured.
- 3) Nickel and sulfate loadings are influenced by the applied rainfall rates.
- 4) Nickel and sulfate loadings are mainly controlled by the CBEs, flow paths, and the flow rate.
- 5) The slope effect on the total loading of contaminants is greater for a steep slope (at 7%) than for smaller slopes (0, 3 and 5%).
- 6) The contaminant loadings are lower at the top of the slope due to the low water flows.

This study showed that the FCL allows to limit the infiltration of water into the reactive waste rock (hemo-ilmenite) and to direct it down the slope (consisting of waste rock that does not generate DNC). This allows an attenuation of the contamination of the water collected at the bottom of the box.

5.5 Acknowledgments

The authors would like to acknowledge the financial support from NSERC and the industrial partners of the Research Institute on Mines and the Environment (<u>http://irme.ca/</u>).

5.6 Supplementary material

Rainfall simulation system and its calibration

A rainfall simulation system was placed above the box (Fig 5.1d). It has been designed to create precipitation of constant intensity. This simulator consists of four oscillating sprinklers connected together, then connect directly to a garden hose. This garden hose was in turn connected to a pressure regulator, which is also linked to a shut-off valve connected to the water distribution network of the URSTM laboratory. Precipitation intensity was controlled using the pressure regulator. The sprinklers were calibrated before the tests. To achieve the desired rainfall rates, the water shutoff valve was opened so as to obtain a pressure of 30 to 42 psi. Fig. 5.1c shows the arrangement of the four oscillating sprinklers connected to each other, and the assembly being connected to a garden hose.

The rainfall simulation system used in this study was calibrated before the infiltration tests were performed. The calibration of this rainfall simulator was done using four plastic bags to collect high pressure water jets from the four oscillating sprinklers (Figure 5.11). Each oscillating sprinkler was hooked and wrapped by a plastic bag inside the infiltration box. Different intensities were applied for a 2 minute simulation and the amount of water collected in each plastic bag was measured. This allowed to check the uniformity of water volumes applied to each portion of the surface of the three-layer cover system. Several calibration tests were thus performed to determine the water volume corresponding to a given water pressure. Figure 5.12 shows the calibration curve of rainfall simulation system.



Figure 5.12 Calibration of rainfall simulation system using four plastic bags to collect high pressure water jets from the four oscillating sprinklers



Figure 5.13 Calibration curve of rainfall simulation system

CHAPITRE 6

ASSESSMENT OF HYDROGEOCHEMICAL BEHAVIOR OF AN EXPERIMENTAL WASTE ROCK PILE

Poaty, B., B. Plante, B. Bussière, M. Benzaazoua, T. Pabst, and M. Martin. 2021. Assessment of hydrogeochemical behavior of an experimental waste rock pile. En préparation.

Résumé

L'un des principaux problèmes environnementaux associés à l'exploitation minière est dû au stockage des stériles en surface sous forme des haldes à stériles. Exposés à l'air et à l'eau, les stériles miniers contenant des minéraux réactifs (notamment des sulfures) peuvent générer des eaux de drainage contaminé. Une halde à stériles expérimentale, mesurant 60 m × 10 m (au sommet) × 7 m, avec une pente de 5 % et recouverte d'une couche de contrôle d'écoulement (CCE), a été construite à la mine Lac Tio (Québec, Canada) pour valider une nouvelle méthode de stockage des stériles miniers. Cette méthode utilise des bancs compacts inclinés pour contrôler l'infiltration d'eau et minimiser la contamination dans les haldes de stériles. Cet article vise à évaluer l'impact de la structure de la halde à stériles expérimentale sur la qualité des eaux de drainage.

Les données hydrogéochimiques avant et après l'installation de la CCE sur la halde à stériles expérimentale ont été comparées afin d'évaluer l'efficacité de la CCE. Les résultats suggèrent que la variabilité de la porosité et de la perméabilité avant l'installation de la CCE a entraîné des quantités variables de charges d'eau, de nickel et de sulfate au fond de la halde, d'un lysimètre à l'autre. Cependant, les résultats montrent que la mise en place de la CCE à la surface de la halde à stériles expérimentale a entraîné une diminution de l'infiltration d'eau dans les matériaux réactifs et une déviation de l'eau vers le pied de la halde, constituée de stériles miniers non réactifs. Après l'installation de la CCE, les résultats obtenus suggèrent que les charges de nickel et de sulfate dans les eaux de drainage collectées à partir des lysimètres sont principalement contrôlées par les effets de barrière capillaire, les voies d'écoulement et le débit.

Les taux de libération en nickel ont été du même ordre de grandeur avant la mise en place de la CCE (6.92.10⁻⁶ mg/kg/j en 2015) et après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale $(6.17.10^{-6} \text{ mg/kg/j en } 2016 \text{ et } 9.60.10^{-5} \text{ mg/kg/j en } 2017)$. La faible différence dans les taux de libération en nickel obtenus avant et après la mise en place de la CCE pourrait s'expliquer partiellement par la libération de Ni dans les eaux de drainage en raison d'une diminution de la capacité de sorption de Ni des stériles au fil du temps. En conséquence, l'efficacité de la CCE a été affectée. Cela pourrait également s'expliquer par la faible infiltration d'eau dans les stériles réactifs entraînant une libération lente et graduelle de produits d'oxydation tels que le nickel et les sulfates (comme le montre Bailey (2013)), par rapport à avant l'installation de la CCE. Les taux de libération en sulfate avant l'installation de la CCE (4,79.10⁻¹ mg/kg/j en 2015) sont également proches de ceux obtenus après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale $(4.57.10^{-1} \text{ mg/kg/j en } 2016, \text{ et } 3.74.10^{-1} \text{ mg/kg/j en } 2017)$. Ceci suggère que la réactivité des stériles reste similaire avant et après la mise en place de la CCE mais que leur capacité de sorption en nickel diminue avec le temps. Cela pourrait également suggérer que le SO₄ est contrôlé par les précipitations minérales secondaires.

Cependant, la qualité de l'eau de drainage pourrait être considérablement améliorée par l'inclusion de plusieurs CCE dans une grande halde à stériles.

Mots-clés : Couche de contrôle des écoulements, Drainage neutre contaminé, Halde expérimentale, Nouvelle méthode de gestion des stériles

Abstract

One of the main environmental problems associated with mining is due to the storage of waste rocks on the surface as piles. Exposed to air and water, waste rocks containing reactive minerals (especially sulphides) can generate contaminated drainage water. An experimental waste rock pile, measuring 60 m \times 10 m (at the top) \times 7 m, with a slope of 5% and covered with a flow control layer (FCL), was constructed at the Lac Tio mine (QC, Canada) to validate a new method of waste rock storage. This method uses inclined compact benches to control water infiltration and minimize contamination in waste rock piles. This article aims to assess the impact of the structure of the experimental waste rock pile on the quality of the drainage water.

The hydrogeochemical data before and after FCL installation on the experimental waste rock pile were compared in order to assess the FCL effectiveness. The results suggest that the variability of porosity and permeability before FCL installation resulted in more variable amounts of water, nickel and sulphate loadings at the bottom of the pile, from one lysimeter to another. However, the results show that the FCL placement on the surface of the experimental waste rock pile led to a decrease of water infiltration into the reactive materials and a deviation of the water towards the toe of the pile, made of non-reactive waste rock. After FCL placement, the results obtained suggest that nickel and sulfate loadings in drainage waters collected from lysimeters are mainly controlled by capillary barrier effects (CBE), flow paths and flow rate.

Nickel release rates were of the same order of magnitude before the FCL placement (6.92.10⁻⁶ mg/kg/d in 2015) and after the FCL placement on the experimental pile (6.17. 10^{-6} mg/kg/d in 2016 and 9.60. 10^{-5} mg/kg/d in 2017). The small difference in nickel release rates obtained before and after FCL placement could be partly explained

by the release of Ni in drainage waters due to a decrease in the Ni sorption capacity of waste rock over time. As a result, the effectiveness of FCL is affected. This could also be explained by the low infiltration of water into the reactive waste rock resulting in a slow and gradual release of oxidation products such as nickel and sulphates (as shown by Bailey (2013)), compared to before the installation of the CCE. Sulphate release rates before the FCL placement (4.79.10⁻¹ mg/kg/d in 2015) were also close to those obtained after the FCL placement on the experimental pile (4.57.10⁻¹ mg/kg/d in 2016, and 3.74.10⁻¹ mg/kg/d in 2017). This suggests that the reactivity of the waste rock remains similar before and after FCL placement but their nickel sorption capacity decreases over time. This could also suggest that SO₄ is controlled by secondary mineral precipitation.

However, drainage water quality could be significantly improved by the inclusion of several FCLs in a large waste rock pile.

Keywords: Flow control layer, contaminated neutral drainage, test pile, novel waste rock management method

6.1 Introduction

Significant quantities of mine wastes such as waste rocks and tailings are generated during mining operations. Tailings are finely grinded rocks generated from the ore treatment process. Waste rocks represent the extracted rocks with grades below the economic value, their extraction is necessary to access the orebody. These waste rocks are usually stored at the surface in infrastructures called waste rocks piles (Fala et al., 2005; Aubertin et al., 2002; Plante, 2010).

The management of the produced large quantities of waste rocks is a major challenge for the mining industry, especially because of their heterogeneity and their wide grain size distribution that favors fluid (air and water) movement (e.g. Aubertin et al., 2002; Fala et al., 2005; Amos et al., 2015). Indeed, these facilities (waste rock piles) are subjected to geochemical instability associated with the oxidation of certain minerals (such as pyrite) when they are in contact with air and water. This geochemical instability can lead to the generation of contaminated drainage (neutral or acidic). Acid mine drainage (AMD) is characterized by low pH and high concentrations of metals and sulphates (eg Blowes et al., 2014). In the presence of sufficient neutralizing minerals (such as carbonates), contaminated neutral drainage (CND) conditions can arise, characterized by a near neutral pH and metal concentrations that remain above the allowed limits (eg Nicholson 2004; Plante et al 2011a).

One of the solutions to reduce the generation of contaminated drainage waters is to reduce the infiltration of water into waste rock piles. A novel waste rock disposal method using inclined compacted benches was proposed to control water infiltration and minimize contamination of waste rock piles (Aubertin et al., 2005; Fala et al., 2005). The proposed configuration is based on a slightly inclined flow control layer (FCL) consisting of finer-grained, compacted non-reactive materials, placed above the coarser waste rock to create capillary barrier effects (Aubertin et al., 2002, 2005, 2009;

Aubertin, 2013; Bussière et al., 2015). The water infiltration is preferentially retained and moved in the FCL because of the capillary barrier effects caused by the contrast between the hydrogeological properties of the two materials (Fala et al., 2005; Aubertin et al., 2002). Thus, the FCL makes it possible to divert water towards the edge of waste rock piles, and if these are made of waste rocks that do not generate contaminated drainage waters, this approach would enable to avoid sulphide reactivity and subsequently water contamination. The FCL can divert water over a distance that depends on its hydrogeological properties, its thickness and inclination angle, as well as the rainfall rate (Aubertin et al., 2005; Aubertin, 2013). Inclusion of multiple FCLs into a large scale waste rock pile can significantly reduce the moisture content and flows of water within the core of the pile (made of non-reactive waste rock) (Aubertin, 2013). Numerical modeling and laboratory physical models have previously validated the potential of this approach which would limit the infiltration of water in the waste rock piles (Bussière, 1999; Fala et al, 2002, 2005; Aubertin, 2013; Broda et al., 2014).

An experimental waste rock pile was built between 2014 and 2015 at the Lac Tio mine site (near Havre-Saint-Pierre, Quebec, Canada) to assess the effectiveness of this method at the scale of a bench of a waste rock pile (Figure 2). The main objective of the research project involving this study is to validate the FCL concept presented earlier at a more realistic scale. This research project related to the construction of the experimental pile involved several aspects that are:

- Characterization of hydrogeological properties of FCL materials (Breard Lanoix et al., 2017);
- Study of the hydrogeological behavior of the FCL (Dubuc et al., 2017);

- Monitoring the flow of water in the experimental dump using 3D resistivity tomography imaging (Dimech et al., 2017; 2019);
- Characterization of the flow of water by the use of active Fiber Optic Distributed Temperature Sensing (aFO-DTS) (Wu et al., 2020);
- Monitoring the quality of the drainage water of the experimental pile.

The main objective of this article is to assess the impact of the structure of the experimental pile on the quality of the drainage water.

6.2 Materials and methods

6.2.1 Description of the site study

The Lac Tio mine is the site that was selected for the construction of an experimental waste rock pile. This mine is located 43 km northeast of Havre-Saint-Pierre, Quebec (Canada). Since 1950, this open pit mine has been the largest source of massive hemoilmenite (a mixture of hematite and ilmenite) in the world. At the Lac Tio mine site, there are two types of waste rocks with different mineralogical compositions: hemoilmenite (mineralized waste rock) and anorthosite (non-mineralized waste rock). The anorthosite waste rock is considered non-reactive because it contains low levels of sulphide minerals and does not generate contaminants (e.g., Plante et al., 2010). However, the hemo-ilmenite waste rock is considered reactive because of the occurrence of sulphides (generally <1%). Oxidation of these low sulfide levels leads to the generation of CND from some of the waste rock piles, with nickel concentration occasionally above the provincial and federal 0.50 mg/L criteria (Plante, 2010; Bussière et al., 2011). In addition, the nickel concentration in the effluent depends on the degree of waste rock alteration. Indeed, Plante et al. (2011b) demonstrated that the decades-long delay before the generation of Ni-CND was caused by the gradual saturation of sorption sites in the waste rocks.

6.2.2 Test pile construction and instrumentation

An experimental waste rock pile measuring 70 m long, 10 m wide at the top (and 35 m at the base) and a maximum height of 7 m, inclined with a slope of 5%, was built by push-dumping at the Tio mine site between summer 2014 and autumn 2015. Six adjacent 10 m x 10 m lysimeters (Lys 1 to Lys 6) were installed at the base of the pile to collect the water that seeps into these areas. These lysimeters consist of a geomembrane protected by a layer of compacted sand on both sides of the membrane. Automated flow meters connected to the lysimeters via drains make it possible to quantify the water collected. The choice of these pile dimensions is based on previous studies (Fala et al., 2005, 2013; Broda et al., 2014). This pile (see Fig.1) consists of hemo-ilmenite waste rocks (> 5% hemo-ilmenite) placed over the first five lysimeters (located upstream of the slope) and anorthosite waste rocks (<5% hemo-ilmenite and <0.1% sulphur) above the sixth and last lysimeter (at the bottom of the slope).



Figure 6.1 Design of the experimental waste rock pile, showing instrumentation location

Above these waste rocks (hemo-ilmenite and anorthosite) was placed in septembre 2015 a flow control layer (FCL) made of a 0.6 m layer of compacted sand covered by a 0.25 m layer of compacted crushed anorthosite (sieved to <10 mm). Several hydrogeological and geophysical sensors were installed at different depths in the experimental pile to monitor the water content distribution and to assess water flows in the waste rock and the FCL (Figure 6.1). The experimental waste rock pile was also instrumented with aFo-DTS cables installed at three different elevations to assess moisture content and water fluxes (Broda et al. 2013; Wu et al. 2021)). The hydrogeological and geochemical properties of the waste rock used for the construction of the experimental waste rock pile were characterized in previous studies (e.g., Bussière et al., 2008, 2011; Demers et al., 2011; Pépin et al., 2008; Plante et al., 2010, 2011a,b; Peregoedova et al., 2013; Bréard Lanoix et al., 2017).

6.2.3 Sampling and geochemical of the test pile

Nearly thirty samples of hemo-ilmenite and anorthosite waste rocks were collected during the construction of the experimental pile at locations directly above each lysimeter at the crest, at mid-slope, and at the toe of the advancing face of the pile. These waste rock samples of approximately 10 kg of <20 cm waste rock were stored in plastic bags, hermetically sealed and transported to the USTM-UQAT laboratory. These waste rock samples were then analyzed in the laboratory to determine their physical and chemical properties.

Using tipping bucket flowmeters, the volumes of water collected from each lysimeter were recorded continuously between the spring and autumn of each year, and converted into flow rates. Manual measurements of flow rates from each lysimeter were also sometimes realized, one to three times daily, by measuring the collected volume of water over a given time. The water samples collected from each lysimeter were analyzed for their geochemical parameters immediately in the field for pH, electrical conductivity (EC), and redox potential (Eh), as well as in the laboratory (acidity, alkalinity and concentrations of chemical species).

6.2.4 Physical, chemical and mineralogical characterization methods

The waste rock samples collected during the construction of the experimental pile were homogenized, pulverized and characterized for different parameters such as specific gravity, elemental composition, and mineralogy. The specific gravity (Gs) of the waste rock samples was measured using a Micromeritics helium pycnometer. The elemental composition of these waste rock samples was determined using ICP-AES and ICP-MS analyses following digestion in HNO₃/HCl/HF/Br. A whole-rock analysis of major elements present in waste rock samples was carried out by X-ray fluorescence (XRF). The waste rock samples were also analyzed for their sulphur and carbon content using

an induction furnace (Eltra CS-2000). The primary crystalline phases in the waste rock samples were identified by Bruker D8 Advance X-ray diffractometer (XRD) and Eva software and quantified by the Rietveld method with the TOPAS software (Rietveld, 1993).

6.2.5 Geochemical modeling

The geochemical equilibrium calculation of aqueous drainage chemistry was performed with Visual Minteq (Felmy et al., 1984), a Windows version of the MINTEQA2 version 4.0 database (USEPA, 1999). Visual Minteq was used to calculate the saturation index (SI) of potential secondary minerals in lysimeters leachates, using the elemental concentrations in solution, as well as pH and Eh values.

6.2.6 Rainfall data

Rainfalls are recorded by a weather station located at the Lac Tio mine site, localized approximately 2 km from the test pile. The Lac Tio mine has a subpolar climate, characterized by long winters and generally short, cool and mild summers. Annual rainfall was 830 and 876 mm, in 2014 and 2015, respectively (Table 6.1). During the months when water flows out of the lysimeters (approx. between May 1 and October 31), the total rainfall was 573, 641 and 606 mm in 2014, 2015 and 2016, respectively, with a daily average of about 3.1 to 3.5 mm (Table 6.1). Average air temperatures during this period were 12.3, 11.1, and 11.5 °C in 2014, 2015 and 2016, respectively.

Rainfall (mm)			Temperature (°C)		
Year	annual	May 1 to October 31			
	Total	Total	daily average		
2014	830	573,2	3,1	12,3	
2015	876,2	641,4	3,5	11,1	
2016		606,2	3,3	11,5	

Tableau 6.1 Rainfall and temperatures at the Lac Tio mine site recorded by the weather station during 2014, 2015 and 2016

6.2.7 Applied rainfall

In order to study the responses to low, medium and high intensity rainfall events, several infiltration tests were carried out on the surface of the experimental pile using a tank-truck. The infiltration tests simulated rainfall events using sprinklers placed at the back of the tank-truck (for more information, see Dubuc, 2018; Dubuc et al., 2017; Martin et al., 2017). Several buckets (18.9 L) were placed on the surface of the experimental pile during infiltration tests to gauge the applied rainfall. At the end of each infiltration test, the volume of water collected in each bucket was measured to estimate the amount of water applied to the surface of the whole pile. A total of five infiltration tests (A, B, C, D and E) were applied to the surface of the experimental pile between 2016 and 2017 except the winter season. The infiltration tests (A, B, C, D and E) were equivalent to about 8.6, 6.4, 28, 16.8 and 12 m^3 of water applied to the surface of the pile in 90, 62, 334, 304 and 120 minutes, respectively. These amounts of water applied to the surface of the pile corresponded to rainfall events of approximately 14, 11, 47, 28 and 20 mm, respectively (Dubuc, 2018). During the first four infiltration tests (A, B, C and D), there was no natural rainfall, while during the last infiltration test (E), there was a light natural rainfall occurring simultaneously. In order to carry out a test following initial dry conditions, the surface of the experimental pile was covered with a plastic sheeting and then removed four days before the last infiltration test (E) was conducted.

6.3 Results and discussion

6.3.1 Material characterization

The materials (waste rocks and sand) were sampled during construction of the experimental pile. The samples were subjected to physical, chemical and mineralogical characterizations in the laboratory.

Table 6.2 summarizes properties of the materials used in the FCL (sand and crushed anorthosite) and the core of the experimental pile (waste rock). Particle size analysis classified the studied sand as clean sand with few fines (8% fine particles <80 μ m) and relatively little spread. It also indicated that the crushed waste rock corresponded to well graded sand with some silt and gravel (about 10% fine particles <80 μ m) and the hemo-ilmenite waste rock to a widely-graded material (Poaty et al., 2021). During the construction of the experimental pile, it was observed that coarse particles of waste rock were generally about 40 to 50 cm on average with a maximum diameter of up to 1 m. The average specific gravity (Gs) for sand, crushed anorthosite and hemo-ilmenite waste rock was 2.68, 2.7 and 4.24, respectively (Poaty et al., 2021). The other hydrogeological properties of the materials (measured in the laboratory) constituting the FCL and core of the experimental pile, from other studies (Bréard Lanoix et al., 2017, Martin et al., 2017, Dubuc, 2018; Lévesque, 2015; Peregoedova, 2012), are also summarized in table 6.2.

Material type	Sable	Crushed anorthosite	Waste rock	Ref
Grain size distribution				
D ₆₀ (mm)	0.28	2	4.1	а
D ₃₀ (mm)	0.175	0.5	1.7	а
D ₁₀ (mm)	0.090	0.082	0.3	а
Coefficient of uniformity, Cu	3.11	24.39	13.66	а
Coefficient of curvature, C _c	1.21	1.52	2.35	а
Fine content (< 0,080 mm; %)	8	10		а
Void ratio, e	0.41-0.53	0.34-0.49		b
Specific gravity	2.68	2.70	4.24	а
k_{sat} (m/s)	7×10^{-6}	5×10^{-6}	1×10^{-3}	b,c,d,e
$\Theta_{\rm s}$	0,37	0,31	0,21	b,c,d,e
$\Theta_{\rm r}$	0,03	0,08	0,05	b,c,d,e
AEV (kPa)	3,8	0,5	0,1	b,c,d,e
$\Psi_{\rm r}$ (kPa)	10,2	2	1,5	b,c,d,e

Tableau 6.2 Properties of the materials used in the waste rock test pile

References: a. Poaty et al., 2020; b. Bréard Lanoix, 2017; c. Peregoedova, 2012; d. Dubuc, 2018; e. Lévesque, 2015.

Several samples (n = 27) of waste rock collected during the construction of the test pile were subjected to chemical characterization by XRF analysis of more than 20 elements. The elemental composition of waste rock samples determined by XRF is presented in Table 6.3 (mean values of 27 samples) where only some elements of interest were taken into account.

[? P]	HI waste rock	Anorthosite
Fe (%)	31.1	2.9
Ti (%)	14.1	1.4
S (%)	0.40	0.003
Ni (mg/kg)	633	<100
Si (%)	7.8	24.7
Ca (%)	2.0	5.7
Al (%)	5.1	13.2

Tableau 6.3 Chemical characterization of samples from the experimental waste rock pile (mean values of 27 samples) (adapted from Poaty et al., 2018)

Less than 0.1% sulphur and a low hemo-ilmenite content are contained in the sampled anorthosite waste rock, which is in agreement with what was targeted for the test pile construction. More than 30% iron and 14% Ti are contained in the mineralized waste rock sampled, suggesting high levels of hemo-ilmenite (HI) (over 45% ilmenite).

Modal mineral composition of materials was determined by a reconciliation between the results of the analysis of the X-ray diffraction (XRD) and those of X-ray fluorescence (XRF), and chemical analyzes (ICP-MS and S/C). Only the mineralogical composition results of the samples collected during the construction of the lysimeter 1 (Lysimeter beginning 1- top pile (LB1); Middle lysimeter 1 -top pile (ML1); Junction lysimeter 1 and 2 - top pile (JL12); Surface of the pile (SP); Protective layer lysimeter 1 @ 5 m (PLL1)) are presented in Table 6.4 because these samples seem more reactive (drainage water from lysimeter 1 appears to be very contaminated). However, these results are representative of the mineralogical composition of the reactive rock waste used in the experimental pile. The main minerals occuring in these waste rocks were labradorite, ilmenite and hematite. Enstatite, biotite, chlorite and pyrite were present at very small quantities.

Tableau 6.4 Mineralogical compositions of waste rock (wt%) from the experimental pile

Minerals	Formula	LB1	ML1	JL12	SP	PLL1
Ilménite	FeTiO ₃	29.92	50.13	47.48	47.41	47.82
Hématite	Fe ₂ O ₃	14.65	21.22	20.85	21.79	20.42
Labradorite	(Ca,Na)(Si,Al) ₄ O ₈	36.78	17.64	16.78	18.01	24.33
Biotite	$K(Mg,Fe^{2+})_{3}(Al,Fe^{3+})Si_{3}O_{10}(OH,F)_{2}$	4.80	1.69	1.85	2.11	2.02
Chlorite	$(Mg,Fe,Al)_6(Si,Al)_4O_{10}(OH)_8$	7.00	6.54	5.71	5.74	1.57
Spinel	MgAl ₂ O ₄					0.20
Pigeonite	(Ca,Mg,Fe)(Mg,Fe)Si ₂ O ₆	0.10			0.10	0.24
Rutile	TiO ₂					
Enstatite	MgSiO ₃	1.20		4.69	0.10	1.41
Quartz	SiO_2	4.69	2.03	2.01	3.86	0.78
Pyrite	FeS_2	0.67	0.74	0.74	0.85	0.66
Chalcopyrite	CuFeS ₂	0.10				0.20
Sphalerite	ZnS	0.10	0.01			

6.3.2 Hydrological response of the test pile

An evaluation of the hydrological behavior of the experimental pile was conducted before and after FCL placement on its surface. Although the drainage waters were sampled, the daily flow rates were not measured for the lysimeters in 2018 (the flowmeters were being dismantled). Figure 6.2 shows the contribution of each lysimeter to total outflow before FCL placement (2015) and after (2016 and 2017). Prior to FCL placement, the highest amount of leachate, about 23% of the total outflow, was collected from Lysimeter 6 (Fig. 6.2). This may be due to the combination of several factors: lower height, greater particle size and greater void ratio (therefore

greater hydraulic conductivity) but also the low water runoff from the top to the bottom of the slope. Indeed, the flow path was shorter in this part of the experimental waste rock pile, therefore the storage capacity was also reduced as shown by Williams and Rohde (2008). Indeed, the vertical distance between each lysimeter and the surface of the experimental waste rock pile was 5% lower from one lysimeter to another, in the direction from top to bottom of the slope.

The percentage of total outflow recorded from lysimeters 1, 2, 4 and 5 was about 16%, 20%, 17% and 19%, respectively. Lysimeter 3 collected the smallest amount of leachate, about 5% of the total flow (Fig.6.2). The different amounts of leachate collected from the lysimeters prior to FCL placement suggest the presence of heterogeneity within the experimental pile, which makes some areas of this experimental waste rock pile more permeable than others (as reported by Andrina (2009)). After FCL placement over the surface of the experimental pile, the contributions of lysimeters 3, 4 and 6 to total outflow increased from about 5% to 14%, 17% to 18%, and 23% to 27%, respectively (in 2016). The increase in the amount of water collected from lysimeters 3, 4 and 6 (see Fig.6.2) after placement of FCL could be caused by a lateral flow in this FCL as shown by Poaty et al. (2021b) with the infiltration tests carried out in a laboratory model. Indeed, Poaty et al. (2021b) showed that the large volumes of water drainage from certain drains of the laboratory model (having a configuration of the structure internal identical to that of the experimental waste rock pile) were generated by the part of the water diverted along the slope. This also was shown by Raymond et al. (2020) via numerical simulations of the same laboratory model. Therefore, the increase in the amount of water collected from these lysimeters (3, 4 and 6) was favored by the preferential flow paths developed due to capillary barrier effects (CBE) between FCL and coarse waste rocks as shown by Raymond et al. (2020) and Poaty et al. (2021b). Indeed, a lateral flow was probably favored in the FCL by the likely presence of a capillary barrier created during the

placement of the FCL (composed of compacted fine-grained materials) on the coarse waste rock (Fala et al., 2005, Aubertin et al., 2002, 2009). This lateral flow in the FCL probably led to a change in the distribution of the water infiltrated into the waste pile and the amount of water collected at the lysimeters. The reorientation of the water towards the bottom of the slope was also shown by a significant decrease in the percentage of water collected in lysimeter 1 (located at the top of the slope) from 16% to 5% (Fig.6.2).



Figure 6.2 Contribution of each lysimeter to total outflow before FCL placement (2015) and after (2016 and 2017); 2015 and 2016 data from flowmeters, 2017 data from manual flow measurement

The flow rates from lysimeters were also measured manually from September 14 to October 20, 2017 in order to compare them to those provided by the tipping bucket flowmeters. The volume of water collected from lysimeters 5 (12.6%) and 6 (37.1%) accounted for a total of 49.7% of the effluents, while lysimeters 1, 2, 3 and 4 represented 2.8, 13.3, 19.6 and 14.7%, respectively (Fig. 6.2). Thus, following the inclined profile of the FCL, the water appears to flow laterally, due to the capillary forces of the fine material (sand) that retains water (Fala et al., 2005, Aubertin et al., 2002, 2009). This was also confirmed via 3D resistivity tomography imaging, which

showed that the water from the top of the FCL slope was laterally diverted down the test pile (Dimech et al., 2019). There was therefore development of a preferential flow in the FCL.

6.3.3 Geochemical response of the test pile

The water samples collected from the lysimeters of the experimental pile were analyzed for various geochemical parameters including pH, electrical conductivity, acidity, alkalinity, cations, anions, and dissolved metals. However, only the key parameters that allow characterizing the contaminant generation process in the experimental waste rock pile such as pH and electrical conductivity (analyzed in the field only in 2016), but also nickel and sulphate concentrations (sulphide oxidation products) are presented here (Figure 6.3). Mass loadings and release rates of SO₄ and Ni were also determined to better evaluate and compare the drainage quality in the leachates from the six lysimeters of the experimental waste rock pile.

6.3.3.1 Trends in pH, electrical conductivity, nickel and sulphate concentrations

Figure 6.3a shows the evolution of pH in leachates from lysimeters 1-6 of the test pile. Throughout the monitoring period, the pH values of all lysimeter leachates along the monitoring period ranged between 6.5 and 7.5 (Figure 6.3a). This range is consistent with neutral drainage.

The highest electrical conductivity values (between 1300 and 2600 μ S) were those measured in the effluent from the lysimeters 1 to 5, whereas from the lysimeter 6, the leachate had much lower values (between 250 and 400 μ S) (Figure 6.3b). Trends in sulphate and nickel concentrations in leachates collected from the six lysimeters of the experimental pile during the monitoring years are shown in Figures 6.3c and 6.3d, respectively. In general, nickel and sulphate concentrations were higher in effluents from lysimeters 1 to 5 than in that from lysimeter 6 which was located in the anorthositic part of the test pile (Fig. 6.1). These results suggest that the water passing through the anorthosite waste rock is less contaminated because they are almost free of sulphides and they have important potential of Ni sorption (Plante et al., 2010).



Figure 6.3 Evolution of the main geochemical parameters from lysimeters 1 to 6 over time (adapted from Poaty et al., 2018)

Fig. 6.3d show that the highest sulphate concentrations were obtained in the leachate in June 2016 (at the start of the monitoring period of the targeted year) at lysimeter 1 (3630 mg/L SO₄) and lysimeter 2 (2358 mg/L SO₄) after the period of thaw (in spring). These high sulphate concentrations released in early June (spring period) could be

explained by a combination of leachate residence time and the accumulation of oxidation products over the winter (as observed by Sinclair et al., 2015). Therefore, the oxidation products (SO₄ in particular) were released with frozen water that remained trapped in the experimental pile. During this period (early June), the highest sulphate concentrations were obtained mainly from lysimeters 1 and 2 because the time-dependent thaw was less advanced in this part of the pile (where more materials are stored). As a result, only small amounts of drainage water (concentrated in SO₄) flowed from these two lysimeters compared to other lysimeters, during this period. A decrease in the sulphate concentration at these two lysimeters (1 and 2) was noted after the initial flush (As shown by Sinclair et al., 2015; Poaty et al., 2021).

Unlike sulphates, low nickel concentrations were obtained in early June due to sorption phenomena, a part of the nickel in frozen water being sorbed on the waste rock as the hydroxide Ni(OH)₂ (Plante et al., 2010, Demers et al., 2011). However, between June and September 2016, there is a significant increase in nickel concentrations in the leachates from different lysimeters, from 0.11 to 7.5 mg/L, to reach 14.4 mg/L in november 2018 (Fig. 6.3c). This could be partly explained by the decrease in the Ni sorption capacity of waste rock over time due to the progressive saturation of the sorption sites in these materials (as shown by Plante et al., 2011a).

Ni and SO₄ concentrations obtained from experimental waste rock pile (up to 14.4 mg/L Ni and up to 3630 mg/L SO₄) are close to those obtained from other scales, in particular from the laboratory model (up to 6.30 mg/L Ni and up to 1665 mg/L SO₄ reported in Poaty et al., 2021b), columns (up to 4.5 mg/L Ni and up to 1500 mg/L SO₄ reported in Poaty et al., 2021a), field cells (up to 3.2 mg/L Ni and up to 165 mg/L SO₄ reported in Plante et al., 2014).

However, the quality of the drainage water collected from the lysimeters could be significantly improved by the superposition of several FCLs in a large waste rock pile as shown by Poaty et al (2021b). Indeed, Poaty et al (2021b) showed that the storage of hemo-ilmenite waste rock over anorthosite waste rock can reduce the levels of Ni in the drainage water from the Lac Tio mine materials.

6.3.3.2 Solute mass loading and estimation of release rates

In order to understand and to predict the release capacity of a given chemical element from a waste rock environment, it is essential to determine its mass loading (e.g., Bay, 2009). The solute mass loading was estimated by multiplying the solute concentration by the collected leachate volume and then divided it by the waste rock mass directly above the 10 x 10 m base lysimeter. Solute mass loading was estimated assuming that the solute was generated only by the mass of waste rock just above the surface of each lysimeter.

Figure 6.4 shows the evolution of nickel and sulphate cumulative loadings from lysimeters 1 to 6 before (2015) and after (2016 and 2017) FCL placement on the surface of the pile. Only the cumulative nickel and sulphate loadings estimated for the periods from from June 12 to 28, 2015 and June 29 to July 29, 2016 (when tipping bucket flowmeters were working well), but also from September 14 to October 20, 2017 (when flow rates were measured manually), are shown in Figure 6.4. Both before and after FCL placement, the lowest cumulative sulphate and nickel loadings were obtained from lysimeter 6 (Fig.6.4). This was also observed between Spring and Autumn 2016 (see Poaty et al., 2018). Thus, the lower Ni and SO₄ concentrations from lysimeter 6 are not associated with dilution caused by the largest amounts of water collected at this location (lysimeter 6), but are attributed to high sorption potential of anorthosite (located at the end of the experimental pile) and to its low sulphide contents (see Table 6.3; Bussière et al., 2011; Plante et al., 2010, 2011).



Figure 6.4 Cumulative normalized nickel and sulphate loadings from lysimeters 1 to 6 in 2015, 2016 and 2017

The differences between the nickel and sulphate loadings obtained from lysimeters 1 to 6 (see Fig.6.4) could be due to physical heterogeneities (particle sizes ranging from silt to boulders) and geochemical variations (geochemical composition, variable particle reactivity and sorption potential) of the experimental pile (as shown by Smith (2009)). These results suggest that the quality of leachate collected from the lysimeters is not only affected by the amount of infiltrated water but also by the solid liquid ratio as shown by Poaty et al (2021a) with the column tests (columns filled with the waste rock sampled during the construction of the experimental pile). Similar results were also reported by Andrina (2009) in a geochemical mixing study in layered mine rocks conducted in the laboratory using three meso-scale panels with varying dimensions. This also suggests that the variation in cumulative nickel loading from the lysimeters could also be controlled by changes in Ni concentrations related to sorption phenomena as discussed previously.

Fig. 6.4 also shows that nickel and sulphate cumulative loadings in the drainage waters collected from lysimeters differ in 2015, 2016 and 2017. In addition to natural rainfall events (see Table 6.1), these results can be influenced by simulated rainfall applied to the surface of the experimental waste rock pile during infiltration tests (see § 6.2.7). Indeed, the nickel and sulphate loadings can be influenced by the intensity of the precipitation events applied to the surface of the experimental waste rock pile as shown by Poaty et al (2021b) with the infiltration tests carried out in a laboratory model. As in the case of the laboratory model (Poaty et al., 2021b), Ni and SO4 loadings in leachates collected from lysimeters are mainly controlled by capillary barrier effects (CBE), flow paths and flow rate.

From the cumulative normalized loading curves of sulphate and nickel (Fig.6.4), it was possible to determine the release rates of the elements representing the sulphide reactivity and contamination (SO₄ and Ni respectively) before and after FCL placement,
by linear regression. Estimated values for different lysimeters were added to obtain the nickel and sulphate release rates at the base of the experimental pile. These nickel and sulphate release rates at the base of the experimental pile before and after FCL placement are presented in Table 6.5.

Nickel release rates were of the same order of magnitude before the FCL placement $(6.92 \times 10^{-6} \text{ mg/kg/d in } 2015)$ and after the FCL placement on the experimental pile $(6.17 \times 10^{-6} \text{ mg/kg/d in } 2016 \text{ and } 9.60 \times 10^{-5} \text{ mg/kg/d in } 2017)$. The lack of significant difference in nickel release rates before and after FCL placement is partly explained by sorption phenomena. Indeed, a probable decrease in nickel release rates after FCL installation could be masked by the release of Ni occurring following gradual saturation of the sorption sites as explained previously. This release of Ni in drainage waters is due to a decrease in the sorption capacity of waste rock over time, therefore to the time delay before the appearance of Ni in leaching waters related to the nickel sorption phenomenon (Plante et al, 2011a; Demers et al., 2013). As a result, the FCL effectiveness is affected. This could also be explained by the low infiltration of water into the reactive waste rock resulting in a slow and gradual release of oxidation products such as nickel and sulphates (as shown by Bailey (2013)), compared to before the installation of the CCE.

Sulphates release rates before FCL placement (4.79×10^{-1} mg/kg/d in 2015) were of the same order as after FCL placement (4.57×10^{-1} mg/kg/d in 2016 and 3.74×10^{-1} mg/kg/d in 2017). This suggests that the reactivity of the waste rock remains similar before and after FCL placement but their sorption capacity decreases over time. This could also suggest that SO₄ is controlled by secondary mineral precipitation.

			Release rate (mg/kg/day)						
	Before FCI	_ placement	After FCL placement						
Lysimeters	20	15	20	16	2017				
	Ni	SO_4	Ni	SO ₄	Ni	SO_4			
Lys 1	1.11×10^{-6}	1.34×10^{-1}	1.36×10^{-6}	4.61×10^{-2}	7.74×10^{-5}	3.23×10^{-2}			
Lys 2	2.10×10^{-6}	1.63×10^{-1}	1.27×10^{-6}	1.54×10^{-1}	4.15×10^{-6}	9.72×10^{-2}			
Lys 3	4.08×10^{-7}	2.48×10^{-2}	1.41×10^{-6}	7.20×10^{-2}	1.02×10^{-5}	8.53×10^{-2}			
Lys 4	9.30×10^{-7}	7.94×10^{-2}	6.93×10^{-7}	9.62×10^{-2}	1.18×10^{-6}	8.02×10^{-2}			
Lys 5	2.01×10^{-6}	6.71×10^{-2}	1.06×10^{-6}	4.26×10^{-2}	1.93×10^{-6}	5.62×10^{-2}			
Lys 6	3.60×10^{-7}	9.88×10^{-3}	3.81×10^{-7}	4.64×10^{-2}	1.17×10^{-6}	2.27×10^{-2}			
Pile	6.92×10^{-6}	4.79×10^{-1}	6.17×10^{-6}	4.57×10^{-1}	9.60×10^{-5}	3.74×10^{-1}			

Tableau 6.5 Nickel and sulphate release rates before and after FCL placement

6.3.3.3 Geochemical equilibrium calculation results.

Figure 6.5a shows the activity of Ca^{2+} and SO_4^{2-} in the lysimeter leachates. These results show that, for lysimeter 6 leachates, the activities are much below the saturation line of gypsum (CaSO₄. 2H₂O) (solubility product constant of the gypsum).



Figure 6.5 Log activity of Ca^{2+} versus log activity of SO_4^{2-} (a) and modeled saturation index for gypsum (CaSO₄.2H₂O) (b) in water samples from lysimeters

However, for leachates from lysimeters 1 to 5, it is on or slightly below this line. This indicates that a reaction between Ca^{2+} and SO_4^{2-} can control their solubility in leachates from lysimeters 1 to 6 (Zhang et al., 2016). Figure 6.5b shows the evolution of the gypsum saturation index obtained with Vminteq using water chemistry data from test pile lysimeters. Figure 6.5b shows that water samples collected from lysimeters 1-5 have gypsum saturation indices close to or sometimes greater than 0 all through the monitoring of the leachate quality, suggesting that the sulphate and calcium concentrations could be controlled by equilibrium with gypsum.

Tableau 6.6 Saturation indices calculated with Vminteq for certain mineral phases formed in representative water samples from lysimeters

Lysimeters	Lys 1	Lys 2	Lys 3	Lys 4	Lys 5	Lys 6
pH	7.10	7.40	7.02	6.95	7.25	7.40
Gypsum (CaSO ₄ .2H ₂ O)	0.02	0.01	-0.07	-0.14	-0.50	-1.67
Goethite (FeOOH)	6.36	6.62	6.24	6.11	6.00	6.76
Ferrihydrite (FeOOH)	3.65	3.91	3.53	3.40	3.29	4.05
Hematite (Fe ₂ O ₃)	15.13	15.64	14.88	14.61	14.39	15.91
Diaspore (AlOOH)	2.55	2.43	2.21	2.27	2.77	3.13
Gibbsite (Al(OH) ₃)	1.69	1.57	1.35	1.40	1.90	2.27
Alunite (KAl ₃ (SO ₄) ₂ (OH) ₆)	0.09	-1.17	-0.90	-0.60	-0.27	-1.59
Kaolinite (Al ₂ Si ₂ O ₅ (OH) ₄)	2.71	1.75	1.77	1.63	2.60	3.21
Jarosite-K (KFe ₃ (SO ₄) ₂ (OH) ₆)	1.97	1.85	1.64	1.36	-0.13	-0.26
Basaluminite (Al ₄ (OH) ₁₀ SO ₄)	-1.43	-2.52	-2.71	-2.36	-1.14	-0.72
Ni hydroxide (Ni(OH) ₂ (am))	-3.11	-4.76	-4.76	-6.09	-5.16	-5.25
Ni hydroxide (Ni(OH) ₂ (C))	-1.01	-2.66	-2.66	-3.99	-3.06	-3.15

Secondary mineral phases that may enable to understand the composition of the drainage were noted in the Table 6.6. The saturation index calculations suggest that other secondary mineral phases were formed in the experimental pile.

Indeed, saturation index values for various (oxy)hydroxides of Fe (goethite, ferrihydrite and hematite) were high, indicating a strong oversaturation (Table 6.6) in all water samples from the experimental pile lysimeters. Geochemical modeling suggests that the precipitation of the secondary mineral phases of (oxy)hydroxides of Fe (III) could control dissolved Fe concentrations in water from lysimeters 1 to 6. Indeed, during the monitoring of the experimental pile (between 2015 and 2018), the average concentrations of dissolved Fe remained low (<1.0 mg/L) in the drainage water. The thermodynamical equilibrium calculation suggests that SO₄ concentrations in drainage water from lysimeters could be controlled not only by gypsum [CaSO₄.2H₂O], but also from alunite [KAl₃(SO₄)₂(OH)₆] and jarosite [KFe₃(SO₄)₂(OH)₆].

Thermodynamic equilibrium calculations also showed that mine drainage water from all lysimeters was undersaturation for amorphous or crystalline nickel hydroxide [Ni(OH)₂] (Table 6.6). This suggests that Ni concentrations in these waters are not controlled by Ni(OH)₂.

6.4 Conclusion

This study presents the results from an experimental waste rock pile whose effluent was monitored during three years after that this pile was built on the Lac Tio mine site. It aims to assess the impact of the structure of the experimental waste rock pile on the quality of the drainage water. The hydrogeochemical results before and after FCL placement were compared in order to assess the FCL effectiveness. The following conclusions can be drawn from the results of this study:

- The nickel and sulphate loadings and the leachate quantities collected at the bottom of this pile varied from one lysimeter to another due to the variability of porosity and permeability along the experimental waste rock pile before FCL placement.
- 2) After FCL placement on the experimental waste rock pile, the results show that water infiltration was minimized in CND-generating hemo-ilmenite waste.
- FCL favored the circulation of water within non-CND generating anorthosite waste rock (Lysimeter 6).
- Ni and SO₄ loadings in leachates collected from lysimeters are mainly controlled by capillary barrier effects (CBE), flow paths and flow rate after FCL placement.
- 5) Nickel release rates were of the same order of magnitude before the FCL placement (6.92×10^{-6} mg/kg/d in 2015) and after the FCL placement on the experimental pile (6.17×10^{-6} mg/kg/d in 2016 and 9.60×10^{-5} mg/kg/d in 2017).
- The small difference in nickel release rates before and after FCL placement is partly explained by sorption phenomena.
- 7) The sulphate release rates before the FCL placement $(4.79 \times 10^{-1} \text{ mg/kg/d in 2015})$ were almost identical to those obtained after the FCL placement on the experimental pile $(4.57 \times 10^{-1} \text{ mg/kg/d in 2016})$, and $3.74 \times 10^{-1} \text{ mg/kg/d in 2017})$.
- The geochemical equilibrium modeling results suggested that the maximum SO₄ concentrations could be limited by secondary mineral precipitation before and after experimental waste rock pile.
- The reactivity of the waste rock seems to remain similar before and after FCL placement but their sorption capacity decreases over time.

The results of this study showed that the FCL allows to limit the percolation of water in the reactive core of the experimental waste rock pile and to direct it down the slope (consist of anorthosite waste rock that is non CND-generating). However, the quality of the infiltrated water could be significantly improved by the inclusion of several FCLs in a large waste rock pile.

The results obtained in this study could be used for the application of this new concept of waste rock deposition on other sites generating DNC or DMA. Therefore, it would be interesting to use materials whose sorption does not control the concentrations of contaminants in the experimental waste rock pile in order to better assess the effectiveness of the FCL.

6.5 Acknowledgments

The authors would like to acknowledge the financial support from NSERC and the industrial partners of the Research Institute on Mines and the Environment (http://irme.ca/).

CHAPITRE 7

COMPARAISONS DES COMPORTEMENTS GÉOCHIMIQUES À DIFFÉRENTES ÉCHELLES

Cette étude portant sur le suivi du comportement hydrogéochimique d'une halde expérimentale à l'échelle de terrain comprend des travaux complémentaires de laboratoire, à l'échelle intermédiaire (modèle physique) et à petite échelle (essais cinétiques en colonne). Ces travaux complémentaires à l'échelle de laboratoire ont été réalisés afin de mieux évaluer certains facteurs susceptibles d'influencer l'évolution hydrogéochimique des stériles miniers à grande échelle. Une étude comparative sur les trois échelles d'observation (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) a été effectuée. Les taux de réaction, les concentrations des métaux et la génération des principaux contaminants du lixiviat ont été évalués à chaque échelle d'observation. Les résultats à différentes échelles ont été corrélés et exploités afin de mieux cerner des effets d'échelles.

7.1 Introduction

Plusieurs études ont revelé que les taux de génération de contaminants déterminés à l'échelle de terrain diffèrent souvent de façon significative de ceux obtenus à l'échelle de laboratoire (Banwart et al., 2002; , 1994; Malmström et al., 2000; Pepin, 2009; Salinas et al., 2012; Sapsford et al., 2009; Plante et al., 2014). Ces différences signicatives dans les taux de génération de contaminants s'expliquent par le couplage entre les mécanismes d'écoulement et la géochimie des eaux de drainage (Stockwell et al., 2006). En effet, l'absence des hétérogénéités et structures observées sur le terrain

dans les essais de laboratoire peut modifier les processus hydrogéochimiques qui influencent les taux de génération des contaminants in situ (Smith et al., 2013). Donc, du fait de leur complexicité, des propriétés et hétérogénéités physiques et géochimiques des stériles d'une halde ne peuvent pas être adéquatement représentées dans les essais en laboratoire (Langman et al., 2015; Smith et al., 2013). D'autre part, les essais au laboratoire sont un peu biaisés du fait qu'ils ne soumettent pas les matériaux aux conditions environnementales réelles (Bay, 2009). La difficulté à prédire les conditions de terrain à partir des essais cinétiques de laboratoire est due aussi à l'altération accélérée des échantillons lors de ces essais (Langman et al., 2015). De ce fait , il est difficile de prédire avec précision la qualité du drainage issu des haldes à stériles à grande échelle à partir des résultats des essais de laboratoire (Langman et al., 2015; Smith et al., 2013).

Les essais cinétiques au laboratoire utilisés pour prédire la qualité de l'eau et la charge de soluté à l'échelle de terrain comprennent des essais en cellules humides, des essais en cellules d'altération et des essais en colonne. (Lapakko, 2003; Ardau et al., 2009; Sapsford et al., 2009; Plante et al., 2014). Peu coûteux, les essais au laboratoire sont menés dans un environnement contrôlé. De façon générale, les taux de génération des contaminants à l'échelle de terrain sont souvent plus faibles de plusieurs ordres de grandeur que ceux de ces essais cinétiques (White et Brantley, 2003).

Les différences dans les taux de génération des contaminants à l'échelle de terrain et de laboratoire sont généralement évaluées afin de déterminer les facteurs d'échelle nécessaire à la prédiction de la qualité de l'eau de drainage (Malmström et al., 2000; Plante et al., 2014). Plante et al. (2014) ont réalisé une étude sur les stériles de la mine Lac Tio couvrant plusieurs échelles, du laboratoire (colonnes, cellules humides et cellules d'altération) à l'échelle du terrain (cellules de terrain et halde à stériles). Cette étude visait à comparer les résultats de la qualité de l'eau pour les stériles obtenus au

laboratoire et à des échelles de terrain et d'identifier les principaux facteurs d'échelle impliqués.

Toutefois, les capacités des essais de laboratoire à petite échelle à prédire le DNC en Ni généré à partir des haldes à stériles ne sont pas encore bien cernées. Aussi, la présente étude a également pour objectif de comparer les caractéristiques géochimiques du DNC généré à partir des roches stériles à faible teneur en sulfure à différentes échelles expérimentales mais sur une gamme d'échelles plus grande, prenant en compte celles de Plante et al (2014). De ce fait, le modèle physique au laboratoire fournira un lien intermédiaire nécessaire entre les essais cinétiques en colonne et les cellules de terrain. Quant à la halde expérimentale, elle fournira les résultats intermédiaire entre les cellules de terrain et les haldes à stériles à grande échelle. Cette étude vise aussi à évaluer l'efficacité des essais à l'échelle de laboratoire à prédire le comportement géochimique des haldes à stériles à grande échelle.

7.2 Matériaux et méthodes

La présente section décrit les différents essais comparés dans l'étude de l'effet de l'échelle sur les résultats géochimiques. Plus de détails sur les matériaux et méthodes peuvent être trouvés aux chapitres 4, 5 et 6 de la présente thèse.

7.2.1 Caractérisation physique, chimique et minéralogique

Des échantillons de stériles ont été prélevés lors de la construction de la halde expérimentale sur le site de la mine Lac Tio afin de réaliser les essais de laboratoire (en colonne et dans le modèle physique). Ces échantillons ont été constitués des stériles d'hémo-ilménite et anorthositiques. Les caractérisations physiques, chimiques et minéralogiques de ces échantillons de stériles étudiés au laboratoire et à l'échelle de la halde expérimentale sont décrites dans les chapitres 4, 5 et 6. La distribution granulométrique des stériles aux différentes échelles a été déterminée par tamisage

pour différentes fractions et à l'aide d'un analyseur de particules (laser Malvern Mastersizer) pour la fraction inférieure à 0,355 μ m (voir chapitres 4, 5, 6 et Plante et al., 2014). Les distributions granulométriques des stériles utilisés aux différentes échelles peuvent être trouvées aux chapitres 4, 5 et 6 (voir également Plante et al., 2014). La composition chimique de ces stériles a été déterminée par fluorescence aux rayons X (FRX) et est présentée dans le tableau 7.2. À l'aide d'un pycnomètre à l'hélium, la densité relative (Dr) a été déterminée pour la fraction <500 μ m et considérée comme étant la même pour les autres fractions. La surface spécifique des matériaux soumis aux essais de laboratoire et sur le terrain (halde expérimentale) a été estimée à partir de la distribution granulométrique (voir chapitres 4, 5 et 6) à l'aide de l'équation 7.1 (voir Plante et al., 2014) :

$$S_s = \frac{6}{\rho} \sum \frac{c_i}{d_i} \mathbb{I}(7.1) \mathbb{Z}$$

où S_S est la surface spécifique estimée (m²/kg), ρ est la densité (kg/m³), 6 est le facteur de forme pour les particules sphériques, c_i est la fraction massique de matériel de diamètre moyen d_i (m) dans la fraction granulométrique « i ». Le diamètre moyen est la taille moyenne d'une fraction considérée. La S_S des stériles miniers du modèle physique a été estimée comme étant la moyenne des S_S des échantillons des sections 1, 2 et 3 dudit modèle physique. La S_S des roches stériles de la halde expérimentale a été considérée comme étant la même que celle de l'échantillon de la section 3 du modèle physique. Les surfaces spécifiques des stériles échantillonnés aux différentes échelles (halde expérimentale, modèle physique et colonnes), ont été utilisées dans la normalisation surfacique des taux de génération et sont présentées au Tableau 7.1.

7.2.2 Essai de terrain à l'échelle de la halde expérimentale

Afin de valider une nouvelle méthode de déposition des stériles qui vise à limiter l'infiltration de l'eau dans les stériles réactifs, une halde expérimentale a été construite sur le site de la mine Lac Tio entre les étés 2014 et 2015. Avec une pente de 5 %, la halde expérimentale 60 m \times 10 m \times 7 m a été conçue à une échelle intermédiaire entre les essais au laboratoire et les haldes à stériles existantes. Au-dessus de la halde expérimentale a été placée une couche de contrôle d'écoulement (CCE, ou FCL en anglais, pour « flow control layer ») constituée de matériaux non réactifs, à grains fins et compactés afin de dévier l'eau vers le bas de la pente de cette halde, composé de stériles non réactifs.

À la base de la halde, six lysimètres adjacents de $10 \text{ m} \times 10 \text{ m}$ ont été installés afin de collecter l'eau qui s'infiltre jusque là (lysimètres). Des débitmètres automatisés reliés aux lysimètres via des drains ont permis de quantifier le volume d'eau collectée. La concentration des espèces chimiques présentes dans les lixiviats collectés a été mesurée en laboratoire. La description détaillée de la construction de la halde expérimentale et les résultats du suivi de la qualité de l'eau de drainage se trouvent dans les chapitres 2 et 6.

7.2.3 Essai de laboratoire

Afin de caractériser l'évolution géochimique des stériles dans des environnements plus contrôlés que la halde expérimentale, quatres colonnes et un modèle physique ont été mis en place au laboratoire avec des échantillons de stériles utilisés dans la halde expérimentale.

Les essais cinétiques en colonnes ont impliqué au total quatre colonnes dont deux colonnes de contrôle (Co-HI et Co-Anor) remplies chacune avec un seul type de matériaux (anorthosite ou stérile d'hémo-ilménite) et deux autres colonnes mixtes (Co-

AI et Co-Sandwich) remplies avec les deux types de matériaux. Les caractéristiques générales de ces essais en colonnes sont présentées dans le tableau 7.1. Les matériaux de ces colonnes ont été soumis à un cycle hebdomadaire de mouillage-séchage comprenant une lixiviation à l'eau déionisée suivi d'une exposition à l'air ambiant pour laisser sécher les stériles. Ces essais en colonne ont été réalisées pour un total de 38 cycles (sur plus de 500 jours). Plus de détails sur la méthodologie et les résultats de ces essais en colonnes sont présentés dans le chapitre 4 et Poaty et al. (2018;2021).

Les essais en laboratoire ont aussi été menés avec une boîte en acier et en plexiglas (modèle physique 2,47 m \times 0,6 m \times 1,5 m) remplie de trois couches de matériaux différents, dont une couche de contrôle d'écoulement composée de deux matériaux (couche de sable compactée et d'anorthosite concassée et compactée) et une couche de matériaux plus grossiers (stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite). Au moyen d'un système de simulation de pluie, les matériaux du modèle physique ont été soumis à différents taux de précipitation (8, 17 et 27 mm/jour) pour différentes pentes (0, 3, 5 et 7 %). Les essais d'infiltration dans la boîte ont été réalisées durant 280 jours (voir le Tableau 7.1 pour les caractéristiques des essais). L'eau de drainge a été collectée dans des chaudières via les huit drains situés à différentes distances le long du fond de la boîte. Des concentrations en éléments chimiques présents dans les échantillons d'eau collectée ont été déterminées afin de faire un suivi géochimique.

La description détaillée du système expérimental, de la mise en place des matériaux dans la boîte et des essais d'infiltration ainsi que les résultats du suivi de la qualité de l'eau de drainage peuvent être trouvés dans les chapitres 3 et 5.

7.2.4 Étude antérieure sur les stériles miniers

Cette étude comparative implique des travaux à l'échelle du terrain (halde à stériles et cellules de terrain) et à l'échelle du laboratoire (cellules humides et cellules d'altération)

réalisés dans des études antérieures sur le comportement géochimique des stériles de la mine Lac Tio. En effet, les résultats du comportement géochimique d'une véritable halde à stériles et des cellules de terrain ont été utilisés afin de les comparer à ceux des essais cinétiques à l'échelle de laboratoire et à l'échelle intermédiaire (halde expérimentale).

À l'échelle de la halde à stériles, les résultats de la qualité de l'eau de drainage mis à contribution dans cette étude comparative sont ceux de la halde Puyjalon. D'une superficie de 56,9 ha, la halde Puyjalon renferme 4 849 000 tonnes de stériles (d'anorthosite en majorité et d'hémo-ilménite en faible proportion), soit un volume de 2 909 870 m³. Le suivi des concentrations de Ni provenant des eaux de drainage de la halde Puyjalon a été fait chaque semaine, de mai à décembre 2007. L'interprétation détaillée des données géochimiques de la halde Puyjalon est fournie dans Pépin (2009).

Le comportement géochimique des stériles miniers a été aussi estimé à l'échelle du terrain avec des cellules de terrain construites sur le site de la mine Tio. Les cellules de terrain, de dimension 6,9 m sur 6,9 m contenaient 25 à 30 m³ de stériles tamisés à 50 cm lors de leur mise en place (Pépin et al., 2008). Ces stériles ont été entreposés dans les cellules sur une géomembrane étanche protégée contre la perforation par des couches de sable de part et d'autre de celle-ci. Grâce à un drain situé à la base des cellules de terrain, les eaux de drainage ont été collectées et périodiquement échantillonnées aux fins d'analyse chimique. La description détaillée des cellules de terrain et des résultats géochimiques ont été présentés dans Pépin et al.(2008).

Les essais de laboratoire à plus petite échelle ont été aussi impliqués dans le cadre de cette étude comparative : les cellules humides et les cellules d'altération. En vue de prédire le comportement géochimique des stériles miniers de la mine Lac Tio, ces essais de laboratoire à petite échelle ont été réalisés par Plante et al. (2011a,b; 2014).

Les essais en cellules humides ont été réalisés sur un échantillon de matériau de 1 kg qui a été exposé à l'air ambiant sec pendant 3 jours, puis à l'air saturé d'eau pendant 3 jours, et rincé le 7^e jour avec de l'eau déionisée. L'eau de lixiviation a été laissée en contact avec les matériaux pendant 3h. Une analyse du pH et des concentrations en espèces chimiques dans les lixiviats a été réalisée. Pendant 76 cycles, ces essais ont été effectués sur la fraction <6,3 mm des stériles miniers. Les détails de la méthodologie peuvent être trouvée dans Plante et al. (2011a).

Lors des essais en cellules d'altération, 67 g d'une fraction tamisée à <500 μ m des stériles miniers placés sur un entonnoir Büchner de 9 cm de large équipé d'un filtre en nylon de 0,45 μ m, ont été soumis à des rinçages bihebdomadaires de 50 ml d'eau désionisée. Entre les deux rinçages à l'eau déionisée, l'échantillon a été exposé à l'air ambiant afin d'être séché. L'eau de rinçage a été laissée en contact avec les matériaux durant 3h. Les lixiviats ont été collectés dans les flacons d'erlenmeyer filtrants. Le pH et les concentrations en élements chimiques dans les lixiviats ont été determinées. Réalisés durant 75 cycles hebdomadaires, ces essais en mini-cellules d'altération sont détaillés dans Plante et al. (2011a, 2011b).

7.2.5 Compararaison des essais aux différentes échelles

Les caractéristiques des différentes échelles en termes de température, distribution de la taille des grains, masse, volume du solide, surface spécifique des matériaux, volume de rinçage et rapport liquide/solide (L/R) sont résumées dans le tableau 7.1 aux fins de comparaison.

Les volumes d'eau de rinçage ont été très différents d'une échelle à l'autre. À l'échelle de laboratoire, les volumes d'eau de rinçage ont été réduits de moitié ou doublé par rapport à la normale afin de simuler des conditions de précipitations plus élevées et plus faibles. À l'échelle du laboratoire, les volumes et fréquences de rinçage varient de

0,9 L à 12 L toutes les deux semaines pour les essais en colonnes et de 84,7 L à 284, 8 L par semaine pour le modèle physique. À l'échelle de la halde expérimentale, suite aux événements pluvieux, le débit total à l'effluent a été de 1763 L/jour en moyenne pour l'ensemble des six lysimères.

	?		Types de matériaux	Taille des grains	Durée de l'essai	Masse et/ou volume du solide	Surface spécifique (m²/kg)	Volume de rinçage	Fréquence de rinçage	Rapport liquide/solide (L/m ³ /semaine)
	Co F	łI	Hémo- ilménite	< 3 cm		35,6 kg; 12,3 dm ³	dm ³ 139 Min: (36,5
Co Anor Co Anor Co AI		Amonthesite	< 10 mm		21,9 kg;	420	Moy: 1,8L		73,1	
	nor	Anorthosite	< 10 mm		12,3 dm ³	429	Max: 4L		162,5	
	AT .	Hémo- ilménite	< 5 cm	518 jours	143,7 kg;	HI:139;		Bi- hebdomadaire	42,5	
	001		Anorthosite	< 10 mm		49,4 dm ³	A: 429	Min: 4,2L		84,9
	Co Sand-	P1	Hémo- ilménite	< 5 cm		119,9 kg;	HI:139;	Max: 12L		121,3
	wich P2		Anorthosite	< 10 mm		49,4 dm ³	Anor: 429			?
	i		Hémo- ilménite	< 10 cm		3561,7 kg;	HI: 84-232;	Min: 84,7 L		60,5
Modèle physique	Anorthosite	< 10cm et <10 mm	280 jours		A: 286;AC: 427	Moy: 178,2 L	Hebdomadaire	127,3		
	Sable	< 1.25 mm		Approx. 1,4 m ³	sable:1158	Max: 284,8 L		203,4		
		Hémo- ilménite	Du µm au m		Approx. 12460 t;	HI: n/a;	Eau de pluie;			
Halde expérimentale	Anorthosite	Du µm au m	3 ans		A: 13;AC: 427	débits à l'effluent:	Suivant les précipitations	Approx. 4,7		
		sable	< 1.25 mm		Approx. 2601,3 m ³	sable:1158	1763 L/j			

Tableau 7.1 Comparaison de quelques caractéristiques des différentes échelles

Pour montrer les différences de quantités d'eau en contact avec le matériel (contenu dans les colonnes, modèle physique et halde expérimentale) par semaine, les rapports liquide/solide (en L/m³/semaine) ont été déterminés à ces diverses échelles. Ces rapports liquide/solide diffèrent de plusieurs ordres de grandeur d'une échelle à l'autre: 36,5 à 162,5 L/m³/semaine et 60,5 à 203,4 L/m³/semaine respectivement dans les colonnes et à l'échelle du modèle physique, et environ 4,7 L /m³/semaine à l'échelle de la halde expérimentale (soit environ 8 à 40 fois plus petit par rapport aux essais au laboratoire).

Aussi, les caractéristiques physiques des échantillons de stériles utilisés à différentes échelles (halde expérimentale, modèle physique et colonnes) et consignés dans le tableau 7.1 peuvent être comparés. Les distributions granulométriques varient de <5 cm pour les fractions des matériaux contenues dans les colonnes et <10 cm pour celles dans le modèle physique à une distribution étalée dans la halde expérimentale (des particules à l'échelle micrométrique à des rochers de plus de 1 m). Estimées avec l'équation 7.1, les surfaces spécifiques des stériles diffèrent de plusieurs ordres de grandeur entre les échelles expérimentales: 139 à 429 m²/kg dans les colonnes, 84 à 427 m²/kg dans le modèle physique et environ 13 à 427 m²/kg dans la halde expérimentale.

7.3 Résultats et discussion

7.3.1 Caractérisation chimique

La caractérisation chimique a été réalisée sur les échantillons de stériles des colonnes, du modèle physique et ceux prélevés lors de la construction de la halde expérimentale. Les compositions chimiques en quelques éléments d'intérêt de ces échantillons sont présentées dans le tableau 7.2. La composition chimique des stériles d'hémo-ilménite (HI) et d'anorthosite (Anor) à ces trois échelles (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) ne présentent pas de différences significatives. La teneur en soufre des échantillons d'anorthosite est de moins de 0,1 % en poids aux trois échelles, en accord avec la teneur cible visée pour la construction de la halde expérimentale. Les teneurs en Fe et Ti dans les échantillons d'hémo-ilménite à l'échelle des colonnes (30,5 % Fe et 16,7 %Ti) se situent dans les mêmes plages qu'aux échelles du modèle physique et de la halde expérimentale (32,6 % Fe et 17,1 %Ti pour le modèle physique et 31,1 % Fe et 14,1 % Ti pour la halde expérimentale). Cela suggère donc une teneur élevée en hémo-ilménite (HI) (plus de 40 %).

Élements	Colonnes		Modèle j	physique	Halde expérimentale		
	HI	Anor	HI	Anor	HI	Anor	
Fe (%)	30,5	2,9	32,6	0,7	31,1	2,9	
Ti (%)	16,7	1,4	17,1	0,09	14,1	1,4	
S (%)	0,3	0,003	0,2	0,001	0,4	0,003	
Ni (mg/kg)	560	<100	352,7	<100	633	<100	
Si (%)	7,6	24,7	1,8	9,2	7,8	24,7	
Ca (%)	1,6	5,7	1,1	5,3	2,0	5,7	
Al (%)	7,6	13,2	1,5	2,3	5,1	13,2	

Tableau 7.2 Caractérisation chimique des échantillons de matériaux utilisés à différentes échelles

7.3.2 Comparaison des résultats de la qualité de l'eau aux différentes échelles

Les résultats de la qualité de l'eau (pH, conductivité, concentrations en Ni et SO₄) obtenus à l'échelle du laboratoire et du terrain sont comparés dans le tableau 7.3. Proche de la neutralité, les valeurs de pH des eaux de drainage issues des essais de laboratoire (5,9-8,0) se situent dans la même plage que celles obtenues à l'échelle de la halde expérimentale (6,6-8,1). De même, les valeurs de conductivité électrique du lixiviat collecté à partir du modèle physique (207-2720 μ S/cm) et de la halde expérimentale (230-2890 μ S/cm) sont similaires, alors que celles émanant des colonnes sont plus faibles (117-1592 μ S/cm).

評	Colonnes						Modèle physique	1	Halde
	Co HI	Co Anor	Co AI	Co Sandwich				-	
				P1	P2				
pН	5,9-7,3	6,1-8,0	6,2-7,3	6,2-7,5	6,3-7,8		6,0-7,8		6,6-8,1
Conductivité	117-1502	81-563	106-1521	64-551	126-1334		207-2720		230-2890
(µS/cm)	117-1372	01-505	190-1521	04-331	120-1554		207-2720		230-2090
Ni (mg/L)	0,3-4,2	0,002-0,03	0,3-3,9	0,19- 1,05	0,002-0,25		0,004-3,68		0,001-14,40
SO ₄ (mg/L)	58-1581	11-348	52-1401	23-241	29-1140		56-2031		54-3630

Tableau 7.3 Paramètres géochimiques des eaux de drainage à différentes échelles

Toutefois, les concentrations en SO₄ dans les eaux de drainage à l'échelle de la halde expérimentale (jusqu'à 3630 mg/L) sont plus élévées qu'à l'échelle du laboratoire (jusqu'à 2031 mg/L pour le modèle physique et 1581 mg/L pour les colonnes). Cette tendance est également observée pour les concentrations en Ni. En effet, les lixiviats issus de la halde expérimentale présentent des concentrations en Ni (jusquà 14,4 mg/L) plus élevées que celles obtenues avec les essais au laboratoire (jusquà 4,2 mg/L pour les colonnes et 3,68 mg/L pour le modèle physique).

Les résultats détaillés de chacun de ces paramètres géochimiques obtenus à ces trois différentes échelles (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) sont présentés dans les chapitres 4, 5 et 6.

Les variations de pH, conductivité, et concentrations en Ni, SO₄ et Ca des échantillons d'eau collectés à partir des colonnes (Co HI, Co Anor et Co AI), du modèle physique (RES1, RES 5 et RES 8) et de la halde expérimentale (Lys 1, Lys 3 et Lys 6) sont également illustrées à la Figure 7.1.



Figure 7.1 pH, conductivité et concentrations des certains produits d'oxydation et de neutralisation (Ni, SO₄ et Ca) mesurés à partir des échantillons d'eau de drainage provenant des colonnes, du modèle physique et de la halde expérimentale

Se trouvant aux extrémités et au milieu de la base de la halde expérimentale (Lys 1, Lys 3 et Lys 6) et de celle du modèle physique (RES1, RES 5 et RES 8), ces points de drainage sont représentatifs de la qualité de l'eau de drainage issue de ces deux structures (modèle physique et halde expérimentale). Les paramètres géochimiques du lixiviat collecté à partir de la colonne Sandwich (Co Sandwich) ne sont pas présentés sur la Figure 7.1 en raison de la complexité de sa structure qui affecte significativement la qualité de l'eau de drainage (voir chapitre 4). La Figure 7.1a montre des très faibles variations des valeurs de pH entre les divers échantillons d'eau collectés aux différentes échelles (colonnes, modèle physique et halde expérimentale). Les valeurs moyennes de pH aux échelles de laboratoire et de terrain sont comprises entre de 6,7 et 7,4. La Figure 7.1b montre que les valeurs de conductivité les plus faibles ont été enregistrées à la sortie de la colonne Anor (Co Anor) et au lysimètre 6 de la halde expérimentale (Lys 6), et les plus fortes valeurs ont été obtenues à partir des lysimètres 1 et 3 (Lys 1 et Lys 3 de la halde expérimentale), avec des valeurs moyennes de conductivité de 2440 et 1786 μ S/cm, respectivement.

Tout comme les valeurs de la conductivité, celles des concentrations en Ni, SO₄ et Ca présentent des différences significatives entre les lixiviats échantillonnés à partir des colonnes, du modèle physique et de la halde expérimentale (Figures 7.1c,d et e). La Figure 7.1c montre que la valeur maximale de la concentration en Ni a été relevée au Lys 1 (halde expérimentale) et a été 2 à 4 fois plus importante que celle obtenue à partir du modèle physique (RES 5 et RES 8) et des colonnes (Co HI). Ces résultats revèlent que les valeurs maximales des concentrations en Ni ont été obtenues dans les eaux de drainage collectés à partir des drains basaux où les chemins d'écoulement (de la surface jusqu'à la base) sont les plus longs (Lys 1). Cela suggère que les concentrations en Ni dans les eaux de drainage sont principalement contrôlées par le trajet d'écoulement du lixiviat, ainsi que par le temps de contact entre l'eau infiltrée et les stériles. Donc, les

concentrations en Ni sont le resultat des effets combinés du volume d'eau, du trajet d'écoulement et du temps de contact.

Les Figures 7.1d et 7.1e montrent que les variations des concentrations en SO₄ et Ca suivent les mêmes tendances que celles de la conductivité, avec des concentrations les plus élevées obtenues aux Lys 1 et Lys 3 (3630 et 2112 mg/L SO₄; 694 et 723 mg/L Ca, respectivement) et les plus faibles enregistrées à partir de Co Anor, de RES 1 et de Lys 6 (11,5; 56,4 et 53,7 mg/L SO₄; 15,6; 25,8 et 22,9 mg/L Ca, respectivement). Cela suggère que la conductivité de l'eau de drainage aux trois échelles est influencée par les concentrations en SO₄ et Ca dont les espèces ioniques seraient prépondérantes.

7.3.3 Comparaison des taux de génération à différentes échelles expérimentales

Une comparaison de l'évolution des charges cumulées de nickel et de sulfate au cours du temps entre les différentes échelles (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) est présentée à la Figure 7.2. Les charges cumulées en Ni et SO₄ considérées dans ce chapitre sont celles issues des colonnes HI et AI, du modèle physique placé horizontalement (MP 0%) et incliné à 5% (MP 5%) mais aussi générées par la halde expérimentale lors de son suivi géochimique en 2015 (HE15), 2016 (HE16) et 2017 (HE17). Les charges cumulées normalisées en nickel et en sulfate (en mg/kg ou mg/m³) ont été estimées en multipliant les concentrations et les volumes de lixiviats collectés, divisés par la masse totale (kg) ou le volume (m³) des matériaux utilisés à chaque essai. Normaliser les charges par rapport au volume (m³) permet d'éliminer l'effet des différences de densité et de taille entre les diverses échelles et matériaux utilisés. La figure 7.2 montre que les charges cumulées en nickel et sulfates à l'échelle du laboratoire (colonnes et modèle physique) sont les plus élevées qu'à l'échelle du terrain (halde expérimentale). Ces charges cumulées en Ni et SO4 dans les eaux de drainages diffèrent entre les échelles dans l'ordre suivant : halde expérimentale (HE15, HE16 et HE17) < colonnes (HI et AI) < modèle physique (MP 0% et MP 5%).



Figure 7.2 Charges cumulées normalisées en nickel et sulfate dans les lixiviats obtenues à différentes échelles étudiées

En déterminant la pente des courbes des charges cumulatives de Ni, SO₄ et Ca, les taux massiques ou volumiques de génération de Ni, SO₄ et Ca (en mg/kg/jour ou mg/m³/jour) ont été estimés à différentes échelles. À des fins de comparaison, les taux massiques de génération de Ni, SO₄ et Ca aux trois différentes échelles (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) sont présentés sur la figure 7.3. Les taux massiques de génération de Ni présentent des différences significatives allant jusqu'à 2 ordres de grandeur entre les échelles (Fig 7.3). Cependant, les différences de taux massiques de génération de SO₄ et Ca sont moins grandes (d'un ordre de grandeur) entre les échelles. Les taux massiques de génération suivent cet ordre: modèle physique > colonnes > halde expérimentale pour Ni et Ca, puis modèle physique > halde expérimentale > colonnes pour SO₄.



Figure 7.3 Comparaison des taux massiques de génération des produits d'oxydation, obtenus à différentes échelles étudiées

Les taux volumiques de génération de Ni, SO₄ et Ca obtenus à partir des essais en colonnes, du modèle physique et de la halde expérimentale, ont été comparés à des essais à plus petite échelle (cellules humides et cellules d'altération), à l'échelle des cellules de terrain et de la halde Puyjalon (reportés dans Plante et al., 2014) sur la Figure 7.4.



Figure 7.4 Comparaison des taux volumiques de génération des produits d'oxydation, obtenus à différentes échelles dans cette étude et dans celle de Plante et al (2014)

Les taux volumiques de génération de Ni les plus élevés sont estimés à environ 79,6 mg/m³/jour au laboratoire (modèle physique), alors qu'ils sont de 3,94 mg/m³/jour sur le terrain (cellules de terrain). Les taux volumiques de génération de SO₄ et Ca les plus élevés entre le laboratoire et le terrain ont quasiment la même différence que pour Ni, avec environ $2,87 \times 10^4$ mg/m³/jour SO₄ et 401 mg/m³/jour Ca (modèle physique) et, $2,23 \times 10^3$ mg/m³/jour SO₄ et 10539 mg/m³/jour Ca (halde expérimentale).

Les différences d'ordre de grandeur de Ni, SO₄ et Ca observées dans les taux de génération entre les échelles (voir Fig.7.4) peuvent être liées aux phénomènes de précipitation secondaire de SO₄ et Ca ou de sorption de Ni, qui limitent leur présence dans les eaux de drainage (Plante et al., 2011a). Cela pourrait également être corrélé à des différences allant jusqu'à 4 ordres de grandeur entre les rapports liquide-solide des différentes échelles (de 4,7 L/m³/semaine à l'échelle de la halde expérimentale à 10 000 L/m³/semaine en mini-cellule d'altération; Plante et al., 2014). En effet, les taux de génération de Ni, SO₄ et Ca peuvent être impactés par les différences de conditions hydrogéochimiques, tels qu'un faible rapport liquide-solide et des temps de contact plus long entre les phases liquide et solide, peuvent contribuer à ces différences de taux de génération de Ni, SO₄ et Ca (Evans et al., 2006; Plante et al., 2014).

7.3.4 Influence de la surface spécifique sur les taux de génération

Afin d'éliminer l'effet lié à des différences de surface spécifique des minéraux présents dans les stériles, d'une échelle à l'autre, les taux de génération de Ni, SO₄ et Ca ont été normalisés par rapport à la surface spécifique des stériles (Fig 7.5). En effet, le taux d'oxydation des sulfures est proportionnel à la surface exposée des minéraux, ce qui implique donc une faible génération de produits d'oxydation à partir des sulfures présents dans les fractions plus grossières des stériles (Plante et al., 2014; Amos et al., 2015).

Les taux de génération surfaciques (mg/m²/jour) ont été déterminés en divisant les taux massiques de génération (mg/kg/jour) par la surface spécifique (m²/kg). Les taux surfaciques de génération de Ni, SO₄ et Ca sont présentés à la Figure 7.5.



Figure 7.5 Comparaison des taux surfaciques de génération de Ni, SO₄ et Ca, obtenus à différentes échelles dans cette étude et dans celle de Plante et al (2014)

Les taux surfaciques de génération de Ni sont compris entre $3,7 \times 10^{8}$ et $1,98 \times 10^{4} \text{ mg/m}^{2}/\text{j}$, ceux de SO₄ et Ca varient de $1,07 \times 10^{4}$ à $7,15 \times 10^{4} \text{ mg/m}^{2}/\text{j}$ et $1,06 \times 10^{4}$ à $2,62 \times 10^{2} \text{ mg/m}^{2}/\text{j}$, respectivement. Les faibles différences entre les taux surfaciques de génération de SO₄ entre les différentes échelles peuvent être liées à des différences dans la distribution granulométrique des minéraux sulfurés. En effet, les sulfures sont à grains fins à toutes les échelles considérées, tandis que les plagioclases, dont est issus le Ca, vont du µm aux blocs métriques (Plante et al., 2014).

Cela pourrait donc expliquer les différences plus faibles entre les taux de libération de SO₄ par rapport à ceux de Ca.

Tout comme les taux volumiques de génération, les taux surfaciques de génération de Ni, SO₄ et Ca les plus élevés $(1,98 \times 10^{-4} \text{ mg/m}^2/\text{j Ni}, 7,15 \times 10^{-2} \text{ mg/m}^2/\text{j SO}_4, 2,62 \times 10^{-2} \text{ mg/m}^2/\text{j Ca})$ sont issus du modèle physique dont les essais ont eu lieu sous des précipitations d'intensité modérée à élevée (8, 17, and 27 mm/jour). En effet, la quantité et la qualité du lixiviat peuvent être influencées par des facteurs externes de précipitation et d'infiltration d'eau (Neuner et al., 2013). Aussi, une infiltration continue d'eau à travers les stériles peut augmenter l'oxydation et entraîner une forte libération des éléments chimiques (Ni, Ca et SO₄) (Langman et al., 2015). Donc, la libération d'un volume élevé de lixiviat en un court laps de temps à la base du modèle physique en réponse à des événements pluvieux de forte intensité, a conduit à des taux élevés de génération entre le modèle physique et les autres échelles (halde expérimentale, halde puyjalon, cellules de terrain, colonnes, cellules humides et cellules d'altération) peuvent s'expliquer par des volumes différents de lixiviat par rapport aux volumes de stériles miniers (Sinclair, 2014).

Les plus faibles taux surfaciques de génération de Ni proviennent des colonnes (Figure 7.5), notamment de la colonne Co-Anor avec $3,7 \times 10^{-8} \text{ mg/m}^2/\text{j}$. Ceci s'explique par le fait que la colonne Co-Anor contient uniquement des stériles anorthositiques, dont la teneur en Ni est faible (voir Tableau 7.2). Les taux surfaciques de génération de Ca et SO₄ à l'échelle des cellules d'altération sont les plus faibles ($1,06 \times 10^{-4} \text{ mg/m}^2/\text{j}$ our Ca et $1,07 \times 10^{-4} \text{ mg/m}^2/\text{j}$ our SO₄) par rapport à toutes les autres échelles (Figure 7.5).

Donc, comparativement aux cellules humides, les taux surfaciques de génération à l'échelle des cellules altération sont plus éloignés de ceux à l'échelle du modèle

physique que les taux volumiques de génération. Cela est probablement lié à la surface spécifique des stériles contenus dans les cellules d'altération.

D'autre part, les taux surfaciques de génération des éléments chimiques peuvent être influencés par la température. En effet, la vitesse de réaction de la pyrite peut être modifiée par la température (entre 22 °C et 10.6 °C), jusqu'à un facteur 4,4 plus rapidement dans des conditions de laboratoire (Plante et al., 2014). D'après Plante et al. (2014), les taux surfaciques de génération en laboratoire sont diminués d'environ un demi-ordre de grandeur par le facteur de correction de température de 4,4. Donc, les différences de taux de libération entre les échelles peuvent aussi être expliquées par la différence de température (d'une échelle à l'autre). En effet, les phénomènes géochimiques (oxydation des sulfures, l'activité bactérienne, la précipitation et la dissolution des minéraux secondaires, la solubilité de l'oxygène et la réactivité des minéraux neutralisants) peuvent être affectés la température (MEND, 2009).

7.3.5 Influence du rapport liquide/solide sur les taux de génération

Une comparaison des taux surfaciques de génération de SO₄ et Ca a été faite pour différents ratios liquide/solide aux différentes échelles : colonnes (CO), modèle physique (MP), halde expérimentale (HE), cellule de terrain (CEL T), cellules humides (CEL H) et cellules d'altération (CEL A). Cette étude permet de mieux comprendre l'influence du ratio liquide-solide sur les taux de génération de ces éléments (SO₄ et Ca). Aux fins de cette comparaison, il est considéré que SO₄ et Ca ne sont pas impliqués dans les phénomènes de précipitation de minéraux secondaires ou de sorption susceptibles de diminuer les concentrations de ces éléments. Les taux de génération de ces produits d'oxydation et de neutralisation (SO₄ et Ca) peuvent être influencés en grande partie par des conditions géochimiques relatives aux différents ratios liquide/solide (Plante et 2014).

La Figure 7.6a montre les taux surfaciques de génération de Ca et SO₄ diminuent progressivement avec une augmentation du ratio liquide-solide. Les taux surfaciques de génération en calcium et sulfates décroissants sont donc observés à travers des échelles expérimentales décroissantes. La génération décroissante des taux surfaciques en calcium et sulfates semble donc être proportionnelle aux conditions expérimentales. Ainsi, l'augmentation du ratio liquide-solide favorise une diminution de la lixiviation du calcium et des sulfates à partir des stériles miniers. Ces résultats peuvent également être influencés par des temps de résidence plus longs aux plus grandes échelles (halde expérimentale et cellules de terrain) comparativement aux plus petites échelles (colonnes, cellules d'altération, etc) (Andrina, 2009). La Figure 7.6a illustre également que les taux surfaciques de génération de Ca et SO₄ les plus élevés sont générés pour un rapport liquide-solide de 130,4 L/m³/semaine (modèle physique). Cela pourrait s'expliquer par les taux d'infilration élevés enregistrés à l'échelle du modèle physique correspondant à d'importants volumes d'eau de rinçage (de l'ordre de 85 à 285 L) appliqués à la surface de ce système expérimental.



Figure 7.6 Influence du rapport liquide/solide sur les taux de génération des produits d'oxydation et de neutralisation et sur leurs ratios (Ca/SO₄)

En effet, l'exposition de la surface du modèle physique à des précipitations élevées et variables durant un temps donné (environ 10 minutes), entraîne un rinçage continu des

produits d'oxydation (Andrina, 2009). Donc, la qualité du lixiviat à l'échelle du modèle physique est principalement influencée par la variation des précipitations infiltrantes (Vriens et al., 2020). Les taux surfaciques de Ca et SO₄ déterminés à partir du modèle physique semblent donc être surestimés à cause des précipitations infiltrantes, élevées et variables, comparativement à ceux obtenus à d'autres échelles.

Cependant, le rapport des taux de génération de Ca/SO₄ peut fournir des informations sur la relation entre la lixiviation de ces deux éléments (SO₄ et Ca) et l'oxydation des sulfures en fonction du rapport liquide/solide. La Figure 7.6b montre une bonne corrélation entre le rapport taux de génération de Ca/SO₄ et le ratio liquide/solide, une tendance générale à l'augmentation du rapport Ca/SO₄ est observée. En effet, le rapport des taux de génération de Ca/SO₄ augmente avec le ratio liquide/solide (Fig.7.6b). L'augmentation du rapport Ca/SO₄ avec rapport liquide/solide pourrait suggèrer que le Ca est généré en réponse à l'oxydation des sulfures qui genère S sous forme des sulfates (Benzaazoua et al., 2004; Langman et al., 2015; Plante et al., 2014; Nordstrom et al., 2011; Shahhosseini et Doulati, 2016). La tendance évolutive entre le rapport Ca/SO₄ et le ratio liquide/solide pourrait donc indiquer une dissolution exagérée des minéraux neutralisants (plagioclases) lorsque le volume d'eau de rinçage est de plus en plus élevé (Plante et al., 2014). De façon générale, les essais à grandes dimensions (halde expérimentale, cellules de terrain et colonnes) sont caractérisés par de plus faibles ratios liquide/solide contrairement aux essais à plus petite échelle (cellules humides et d'altération) (Fig7.6a). Donc l'utilisation des cellules humides et des cellules d'altération favorisant une exagération de la dissolution des minéraux neutralisants peut conduire à des prédictions erronées (Plante et al., 2014). Les résultats présentés ici sont cohérents avec ceux publiés dans Plante et al (2014).

D'autre part, la Figure 7.6b montre aussi que le rapport massique Ca/SO_4 varie entre 0,16 et 0,92. Cependant, un rapport molaire Ca/SO_4 de 2 (soit un rapport massique de

(0,83) a été proposé par Holmström et al (1999) pour décrire l'oxydation de la pyrite suivie du tamponnage par le carbonate (CaCO₃). Dans le cas de cette étude, l'oxydation de la pyrite nickelifère (Fe(Ni)S₂) suivie du tamponnage par les plagioclases calciques (Ca_{0.6}Na_{0.4}Al_{1.6}Si_{2.4}O₈) peut être décrite par l'équation suivante :

L'équation 7.2 donne un rapport molaire Ca^{2+}/SO_4^{2-} de 1,5 pour 2 ou 0,75 (soit un rapport massique de 0,31). Le rapport massique Ca/SO₄ étant quelquefois inférieur à 0,31 (voir Figure 7.6b) indique que l'équation 7.2 n'est pas la seule réaction qui contrôle les taux de génération de Ca et SO₄ dans les eaux de drainage (tel que rapporté par Wu et al. (2009)). Hormis les plagioclases, d'autres minéraux silicatés contenant Ca (par exemple, les pyroxènes, notamment la pigeonite, (Mg,Fe²⁺,Ca)(Mg,Fe²⁺)Si₂O₆) pourraient y être impliqués (tel qu'indiqué par Wu et al. (2009)). De façon générale, la variation du rapport massique Ca/SO₄ pourrait être expliquée par la présence de nombreux sulfures (pyrite, chalcopyrite, millérite) et minéraux contenant du Ca (tel que rapporté par Holmström et al. (1999)). Cela pourrait également s'expliquer par le fait que le plagioclase calcique ne se dissout pas nécessairement de manière congruente et cela influence également le Ca libéré (Carroll et Knauss., 2005 ; Plante et al., 2011).

7.3.6 Résultats des calculs thermodynamiques à l'équilibre à différentes échelles

Pour examiner la solubilité potentielle contrôlant les concentrations du calcium (Ca) et sulfate (SO₄) en phase liquide, à différentes échelles, les activités de Ca et SO₄ ont été calculées à l'aide du logiciel de calculs d'équilibre thermodynamique Visual Minteq (Felmy et al., 1984), une version Windows de la base de données MINTEQA2 ver.3.1 (USEPA, 1999).

La relation entre l'activité du calcium et celle du sulfate est illustrée à l'échelle des colonnes (Fig.8a), du modèle physique (Fig.8b) et de la halde expérimentale (Fig.8c). Sur ces figures 7.8 a,b et c, la ligne représentant la solubilité du gypse (CaSO₄, 2H₂O) y est également représentée.

Les figures 7.8 a et b (à l'échelle des colonnes et du modèle physique, respectivement) indiquent que la formation du gypse (CaSO₄, $2H_2O$) comme minéral secondaire est peu probable, à l'échelle du laboratoire, dans les eaux de drainage. Donc, la solubilité de Ca et SO₄ dans les eaux de lixiviation des colonnes et du modèle physique n'est pas affectée par ce minéral (gypse). Cependant, sur la figure 7.8c (à l'échelle de la halde expérimentale), un petit nuage de points de Ca est présent sur la ligne de solubilité du gypse (CaSO₄, $2H_2O$).

Cela suggère que la solubilité de Ca et SO₄ dans les eaux de drainage collectés à partir des lysimètres (lysimètres 1 et 2 en particulier) pourrait être limitée par ce minéral (gypse), connu pour précipiter à pH neutre (Nordstrom, 2011). De ce fait, à l'échelle de la halde expérimentale (aux lysimètres 1 et 2), la dissolution du gypse susceptible de se former pourrait influencer le rapport Ca/SO₄ (tel que rapporté par Holmström et al. (1999)). En effet, les taux de génération de Ca et SO₄ dans les eaux de drainage peuvent être contrôlés par la précipitation du gypse à pH neutre (Nordstrom, 2011). Par conséquent, à l'échelle de la halde expérimentale, la variation du rapport Ca/SO₄ avec le ratio liquide-solide pourrait aussi s'expliquer par la dissolution du gypse formé, les plagioclases étant plus ou moins résistant à l'altération (Holmström et al., 1999). Donc, le rapport des taux de génération de Ca/SO₄ est influencé par des réactions de dissolution des minéraux tamponnant l'acide mais aussi par des réactions de se produire de façon simultanée mais à des rythmes différents (tel que rapporté par Seigneur et al. (2020)).



Figure 7.7 Comparaison de l'activité calculée de Ca en fonction de celle de SO4 pour les essais à l'échelle du laboratoire (colonnes, en (a) et modèle physique, en (b)) et à l'échelle de la halde expérimentale (c) avec une ligne droite théorique exprimant la solubilité du gypse

Ceci implique que des taux de génération de produits d'oxydation (SO₄ et Ca) plus importants, peuvent être libérés lors d'un rinçage initiale aux lysimètres 1 et 2

comparativement aux autres lysimères. Cela pourrait aussi impliquer que les taux de génération de SO_4 et Ca à l'échelle de la halde expérimentale soient plus élevés qu'à d'autres échelles (colonnes et modèle physique).

7.4 Conclusion

Une étude du comportement géochimique des stériles de la mine Lac Tio a été réalisée à différentes échelles du laboratoire (modèle physique, colonnes, cellules d'altération et cellules humides) aux échelles de terrain (halde expérimentale, halde Puyjalon et cellules de terrain). À partir de cette étude, les conclusions suivantes peuvent être relevées :

- Les différences des taux volumiques de génération entre les échelles de laboratoire et de terrain vont jusqu'à 4 ordres de grandeur pour les essais considérés;
- Les variations entre les taux surfaciques de génération à différentes échelles de laboratoire et de terrain peuvent aller jusqu'à 3 ordres de grandeur pour les essais impliqués dans cette étude.
- Les différences dans la distribution granulométrique des sulfures (à grains fins) et des plagioclases (du µm aux blocs d'un mètre de large) peuvent expliquer les différences plus faibles entre les taux de libération de SO₄ par rapport à ceux de Ca.
- Les différences des taux de génération entre les échelles de laboratoire et de terrain peuvent être impactées par des facteurs externes de précipitation et d'infiltration d'eau.
- Les réponses géochimiques des stériles lors des essais cinétiques sont influencées de façon significative par les différences de rapport liquide/solide entre les diverses échelles.

- Les essais en cellules humides et cellules d'altération conduisent à une exagération de la dissolution des minéraux neutralisants, ce qui peut entraîner des prédictions erronées.
- Malgré les concentrations élevées en SO₄ et Ca, les indices de saturation calculés à l'aide deVminteq indiquent que les eaux de drainage à différentes échelles sont sous-saturées par rapport au gypse sauf à l'échelle de la halde expérimentale.
- La tendance générale à l'augmentation du rapport Ca/SO₄ avec le ratio liquidesolide pourrait être liée à la dissolution exagérée des minéraux tamponnant l'acide mais aussi à la précipitation des minéraux secondaires (e.g gypse) à l'échelle de la halde expérimentale.

CHAPITRE 8

CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

8.1 Sommaire

L'industrie minière génère des quantités importantes de rejets miniers, dont les stériles miniers qui sont généralement entreposés en surface sous forme d'empilements appelés haldes à stériles. L'entreposage en surface des stériles miniers expose les minéraux sulfurés, présents dans ces rejets, à l'oxygène de l'atmosphère et à l'eau. Dans ces conditions, ces minéraux sulfurés peuvent s'oxyder et générer des eaux de drainage minier acide (DMA). Ces eaux se caractérisent par un pH acide et la présence des métaux dissouts en concentrations élevées. Les effluents miniers générés peuvent également avoir un pH près de la neutralité et contenir des teneurs en métaux solubles généralement plus faibles que dans le cas du DMA, mais au-dessus des normes autorisées. Il s'agit du drainage neutre contaniné (DNC) qui est généré en présence de suffisamment de minéraux neutralisants (e.g. les carbonates et les silicates, principalement) pouvant tamponner l'acide libéré. La gestion de l'eau de drainage minier représente ainsi un défi important en raison des normes environnementales imposées en matière de pH, de teneurs en espèces dissoutes et de toxicité. Pour limiter la génération du DNC en nickel issu des haldes à stériles, notamment sur le site de la mine Lac Tio, une nouvelle méthode d'entreposage des stériles a été developpée. Cette méthode vise à limiter l'infiltration de l'eau à l'intérieur des haldes à stériles et à diriger l'eau infiltrée vers les stériles non générateurs de DNC. Cette nouvelle méthode de constrution des haldes à stériles consiste à placer une couche de contrôle des écoulements (CCE; flow control layer ou FCL en anglais) constituée de matériaux non réactifs fins et compactés, faiblement inclinée, au-dessus des stériles grossiers en vue de créer une barrière capillaire. La FCL vise à devier l'eau sur une certaine distance
dépendant des propriétés hydrologiques, de l'épaisseur et de l'angle d'inclinaison et de la diriger vers le pied de la halde, constitué stériles non réactifs. Afin d'évaluer la performance de cette nouvelle approche à l'échelle de terrain, une halde expérimentale a été construite sur le site de la mine Lac Tio. Les travaux relatifs à cette étude ont été réalisés parallèlement au laboratoire (colonnes et modèle physique) et sur le terrain (halde expérimentale).

La première partie des travaux de la thèse (essais en colonnes; chapitre 4) a permis de comprendre le mélange géochimique entre le lixiviat des couches de stériles d'hémoilménite et d'anorthosite constituant cette pile expérimentale. Ces travaux sur des essais en colonnes au laboratoire ont donc permis d'évaluer l'impact de la structure de la halde expérimentale sur le comportement géochimique des stériles.

Parallèlement, la deuxième partie de cette thèse (essais d'infiltration dans un modèle physique; chapitre 5) a permis d'évaluer les facteurs qui influencent l'efficacité de la nouvelle méthode de déposition des stériles. Ces travaux, consistant en des essais d'infiltration dans un modèle physique ont montré que les charges en nickel et sulfate sont influencées par les taux de précipitations appliqués et qu'une meilleure déviation de l'eau par la CCE améliore la qualité de l'eau de drainage. Les résultats de ces travaux suggèrent que les charges en nickel et de sulfate sont principalement contrôlées par les effets de barrière capillaire, les chemins d'écoulement et le taux d'infiltration.

La troisième partie des travaux de cette thèse (essais de terrain; chapitre 6) se focalise sur l'évaluation de l'efficacité de la CCE placée à la surface de la halde expérimentale. Elle décrit la distribution de l'écoulement et de la qualité de l'eau collectée à la base de la halde après installation de la CCE et compare les résultats obtenus à ceux de la halde avant installation de la CCE. Enfin, la discussion (chapitre 7) fait état d'une étude comparative sur les trois échelles étudiées dans la thèse (colonnes, modèle physique et halde expérimentale) avec les essais précédents sur les stériles de la mine Lac Tio, permettant d'évaluer l'effet d'échelle dans les essais réalisés entre le laboratoire et le terrain.

Les principales conclusions, contributions et recommandations de chacun des chapitres au cœur de cette thèse sont présentées dans ce qui suit.

8.2 Chapitre 4

Dans ce chapitre, les stériles utilisés lors de la construction de la halde expérimentale ont été soumis à des essais en colonne au laboratoire afin de simuler leur comportement géochimique. La structure interne de la halde expérimentale étant constituée de stériles d'hémo-ilménites (au dessus des lysimètres 1 à 5) et de stériles d'anorthosite (au dessus du lysimètre 6), il a été nécessaire d'évaluer le potentiel de libération des constituants chimiques de ces deux types de matériaux. Cette étude visait principalement à développer une compréhension fondamentale du mélange géochimique entre le lixiviat provenant des couches de stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite constituant la structure interne de la halde expérimentale. Pour ce faire, deux colonnes de contrôle ont été remplies chacune avec un seul type de matériau (anorthosite ou hémo-ilménite) et deux autres colonnes mixtes ont été remplies avec les deux types de matériaux. Les résultats de ces essais en colonne ont montré que les stériles d'anorthosite et d'hémoilménite ont généré un drainage presque neutre (pH ~7) contenant jusqu'à 4,5 mg/l de nickel et 1500 mg/l de sulfate. Les taux de génération de nickel et de sulfate ont varié de un à deux ordres de grandeur selon le type de stériles et leur configuration (purs ou mélangés entre eux). Le suivi des essais en colonne a montré que la qualité de l'eau de drainage était affectée par les variations du volume d'eau de rinçage. Cela suggère que la qualité de l'eau est contrôlée par le rapport liquide-solide. En effet, les concentrations de contaminants dans les eaux de drainage provenant des colonnes ont été influencées

par des modifications du volume des eaux de lixiviation et des voies d'écoulement. Les résultats montrent également que le nickel et le sulfate générés par une couche de stériles hémo-ilménites générateurs de DNC ne sont pas affectés par une couche d'anorthosite sus-jacente. Cependant, les résultats ont révélé l'élimination du nickel généré par les stériles hémo-ilménites par une couche d'anorthosite sous-jacente. Cette étude a permis de montrer que la mise en place de stériles d'hémo-ilménite sur des stériles d'anorthosite est un moyen efficace de réduire les niveaux de Ni dans les eaux de drainage des matériaux de la mine Lac Tio.

Pour des futurs travaux, il est recommandé d'instrumenter les colonnes avec les sondes de teneur en eau et de succion, d'analyser et exploiter les données obtenues. Cela permettrait d'évaluer le dégré de saturation de chaque couche de matériaux, de faire un suivi de l'infiltration et d'évaluer des voies d'écoulements préférentiels. Les simulations numériques pourraient aussi être utilisées pour mieux comprendre des mécanismes de libération et d'atténuation des contaminants dans les eaux de drainage.

8.3 Chapitre 5

Ce chapitre se focalise sur les résultats du suivi hydrogéochimique d'un modèle physique à l'échelle intermédiaire de laboratoire. Ce modèle physique consistait en une boîte remplie de trois couches de matériaux différents simulant la structure interne de la halde expérimentale. Afin d'évaluer l'effet du taux de précipitation et de la pente du modèle physique sur l'écoulement et la qualité de l'eau infiltrée dans le système à trois couches, une série d'essais d'infiltration a été réalisée au laboratoire. Ces tests d'infiltration ont été effectués avec une boîte placée horizontalement ou inclinée à différentes angles (0, 3, 5 et 7%) et soumise à des taux de précipitation différents (8 mm/jour, 17 mm/jour et 27 mm/jour).

Les résultats des essais d'infiltration ont montré que la distribution de l'écoulement de l'eau dans les stériles dépendait de l'intensité des précipitations. Aussi, les taux de précipitations les plus élevés ont entraîné une plus grande infiltation de l'eau dans les matériaux du système expérimental. Les résultats ont également revélé que des angles les plus élevés ont favorisé une meilleure déviation de l'eau vers le bas de la pente comparativement aux plus petits angles. Ainsi, environ 20% de l'eau a été déviée latéralement et collectée au bas de la pente lorsque le modèle était dans une position presque horizontale (0,7%) contre plus de 50% lorsque l'angle d'inclinaison de la boîte a été plus élevé (3 ou 5%). Cependant, avec un taux de précipitation plus élevé (27 mm/jour), le pourcentage d'eau déviée et collectée au bas de la pente a été maintenant inférieur à 50% lorsque le modèle a été incliné à 3 et 5%. Les résultats ont aussi montré qu'en appliquant un taux de précipitation plus important, il y a augmentation de la longueur de déviation avec une pente plus grande, mais une diminution de cette longueur avec une pente plus petite. Ces résultats suggèrent que l'angle d'inclinaison du modèle et le taux de précipitation appliqué ont une grande incidence sur l'efficacité du système de couverture à trois couches. Les résultats ont également montré que, quelque soit l'angle d'inclinaison du modèle physique, les taux de précipitations appliqués les plus élevés ont généré des charges cumulées plus élevées en nickel et en sulfate. Les résultats ont aussi démontré que des charges élevées en nickel et sulfates issus du cœur du modèle physique (drains 4 à 6) ont été générées par des quantités importantes d'eau s'infiltrant à travers les stériles d'hémo-ilménite. Cela suggère que le cœur du modèle physique a été sujet à des écoulements préférentiels probablement favorisés par les angles de déposition des stériles lors de leur mise en place dans la boîte. L'ensemble de ces résultats pourrait être utile pour améliorer cette nouvelle méthode de gestion des stériles sur d'autres sites miniers.

Comme recommandations pour cette partie de la thèse, il serait important de mener un essai de traceur afin d'obtenir des informations supplémentaires sur les chemins réels

d'écoulement de l'eau collectée à la base du modèle physique. Cela permettrait d'améliorer la compréhension du comportement de l'écoulement de l'eau dans les couches de différents matériaux du modèle physique. De ce fait, il est recommandé d'utiliser un traceur adéquat (autre que le lithium) que l'on peut détecter dans le lixiviat recueilli à la base du modèle physique. En effet, dans le cadre de cette étude (résultats non publiés), un essai de traceur au lithium avec une solution de carbonate de lithium (LiCO₃) a été réalisé afin de déterminer le temps de parcours de l'eau collectée à partir des drains du modèle physique. Cependant, le lithium n'a été détecté qu'à des très faibles concentrations dans le lixiviat recueilli à la base du modèle physique. Toutefois, les essais de sorption réalisés au laboratoire (dont les résultats ne sont pas présentés ici) ont montré que la presque totalité du lithium en solution a été sorbée par le sable utilisé dans la CCE. Cela s'expliquerait les faibles concentrations de lithium dans le lixiviat collecté à partir des drains du modèle physique.

Pour des travaux futurs, il est aussi recommandé d'instrumenter différemment le modèle physique (notamment avec des sondes à succion capables de fournir des mesures près de 0 kPa avec une meilleure précision) et d'analyser les données recueillies. Cela permettrait de faire un suivi de la pression de l'eau interstitielle, de la teneur en eau volumétrique, de l'infiltration et du drainage latéral de chacune des couches de ce système de couverture, et sa percolation.

8.4 Chapitre 6

Les résultats du suivi hydrogéochimique d'une halde expérimentale à stériles construite sur le site de la mine Lac Tio sont présentés dans ce chapitre. Les travaux de cette partie de la thèse visent à évaluer l'impact de la structure de la halde à stériles expérimentale sur la qualité des eaux de drainage. Les différences relatives à la quantité et qualité de l'eau recueillie à partir des lysimètres avant et après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale ont été examinées dans ce chapitre. Avant l'installation de la CCE

sur la halde expérimentale, les résultats ont montré que les charges en nickel et sulfate et les quantités de lixiviat recueillies à la base de cette halde variaient d'un lysimètre à l'autre en raison de la variabilité de la porosité et de la perméabilité le long de la halde expérimentale avant la mise en place de la CCE. L'infiltration et la qualité de l'eau collectée au bas de la halde ont été aussi affectées par la géométrie (légère inclinaison) de la halde expérimentale avant l'installation de la CCE. Les résultats montrent que l'infiltration de l'eau à l'intérieur des stériles d'hémo-ilménite (générateurs de DNC) a été réduite après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale. Aussi, le lysimètre 6, situé au pied de la halde expérimentale, a enregistré les plus importants volumes d'eau comparativement aux lysimètres localisés au milieu et au sommet de la pente de la halde (lysimètre 1). L'installation de la CCE à la surface de la halde expérimentale à stériles a donc entraîné une diminution de l'infiltration de l'eau dans les stériles réactifs et une déviation de l'eau vers le pied de la halde (lysimètre 6), constitué de stériles faiblement réactifs. Ces résultats suggèrent qu'il y a eu probablement un écoulement latéral dans la CCE, du haut vers le bas de la pente de la halde expérimentale. Cet écoulement latéral dans la CCE a été probablement favorisé par la présence d'une barrière capillaire créée lors de la mise en place de la CCE sur les stériles grossiers. Les résultats du suivi hydrogéochimique ont montré que les taux de libération en nickel ont été du même ordre de grandeur avant l'installation de la CCE (6.92.10⁻⁶ mg/kg/j en 2015) et après la mise en place de la CCE sur la halde expérimentale (6.17. 10⁻⁶ mg/kg/j en 2016 et 9.60.10⁻⁵ mg/kg/j en 2017). La faible différence dans les taux de libération en nickel obtenus avant et après l'installation de la CCE pourrait s'expliquer partiellement par la libération de Ni dans les eaux de drainage en raison d'une diminution de la capacité de sorption de Ni des stériles au fil du temps. Il en résulte que l'efficacité de la CCE soit affectée. Cela pourrait aussi s'expliquer par la faible infiltration de l'eau dans les stériles réactifs entraînant une libération lente et progressive des produits d'oxydation tels que le nickel et les sulfates, comparativement à avant l'installation de la CCE. Les taux de libération en sulfate

avant la mise en place de la CCE ($4.79.10^{-1}$ mg/kg/j en 2015) étaient également proches de ceux obtenus après l'installation de la CCE sur la halde expérimentale ($4.57.10^{-1}$ mg/kg/j en 2016, et $3.74.10^{-1}$ mg/kg/j en 2017). Cela pourrait s'expliquer par le plafonnement des concentrations en sulfates en raison de la précipitation des minéraux secondaires. En effet, les résultats des calculs d'équilibre thermodynamique ont montré que l'effluent a été à l'équilibre avec les phases minérales telles que le gypse [CaSO₄.2H₂O]. Conséquemment, les concentrations en sulfate sont contrôlées par la précipitation du gypse dans les lixiviats du cœur de la halde expérimentale.

Suite aux résultats de ce chapitre, il est recommandé de déconstruire la halde expérimentale afin de faire une caractérisation hydrologique et minéralogique des stériles de cette halde. Cela permettrait de confirmer la présence ou l'absence de minéraux secondaires tels que le gypse qui contrôle la concentration en sulfate dans le lixiviat collecté à partir des lysimètres. De façon générale, ces travaux de déconstruction de la halde expérimentale pourraient permettre de vérifier certaines hypothèses relatives au comportement géochimique. Cela fournirait aussi des données supplémentaires qui permettront de mieux comprendre les mécanismes d'écoulement au sein de ladite halde.

Dans l'éventualité de la construction d'une autre halde expérimentale sur un autre site, il serait important de prendre en considération les caractéristiques des stériles dudit site. Il est donc recommandé d'utiliser des stériles (et autres matériaux) dont la sorption ne contrôle pas les concentrations de contaminants au sein de cette halde expérimentale afin de mieux évaluer l'efficacité de la CCE.

Durant le suivi hydrogéochimique de la halde expériementale, il est indispensable que les instruments utilisés, notamment les débimètres à auget et les enregistreurs de données demeurent opérationnels. L'utilisation des enregistreurs infonuagiques permettant d'accéder aux données en tout temps, est donc recommandé. Cela permettrait de se rendre compte rapidement si l'un des enregistreurs de données ou autres instruments (p.ex., débimètres à auget) cesse de fonctionner. La réparation de l'instrumentation pourra ainsi être faite sans délai. Tout ceci éviterait d'avoir beaucoup de données manquantes liées à aux problèmes de fonctionnement de l'instrumentation.

Tel que justifié à la section précédente (cas du modèle physique), il est recommandé d'utiliser un traceur inerte et donc d'éviter le lithium afin de déterminer le temps de parcours de l'eau collectée à partir des lysimètres.

8.5 Chapitre 7

Ce chapitre vise à comprendre l'influence de l'échelle sur les différents facteurs qui affectent la qualité de l'eau de drainage issue des stériles utilisés dans la halde expérimentale. De ce fait, une comparaison entre les résultats obtenus au laboratoire (colonnes et modèle physique) et sur le terrain (halde expérimentale) a été faite afin d'identifier les principaux facteurs d'échelle impliqués. Les paramètres tels que le pH, la conductivité électrique, les concentrations et les taux de génération des contaminants, etc ont d'abord été évalués à chaque échelle d'observation. Le facteur d'échelle associé à chacun des paramètres identifiés (granulométrie, pH, minéralogie, etc.) d'une échelle à une autre a été quantifié. Les résultats des différentes échelles ont été corrélés et exploités afin de mieux cerner des effets d'échelles.

Les eaux de drainage issues des essais de laboratoire (colonnes et modèle physique) et de la halde expérimentale présentent des valeurs similaires de pH, proches de la neutralité (entre 5,9 et 8,1). Il en est de même pour les valeurs de conductivité électrique de ces eaux de drainage (comprises entre 117 et 2720 μ S/cm). Toutefois, les concentrations en SO₄ et Ni dans le lixiviat provenant la halde expérimentale (allant jusqu'à 3630 mg/L SO₄ et 14,4 mg/L Ni) sont plus élévées que dans le cas des essais de laboratoire (allant jusqu'à 2031 mg/L SO₄ et 3,68 mg/L Ni pour le modèle physique, et 1581 mg/L SO₄ et 4,2 mg/L Ni pour les colonnes).

Les résultats des essais cinétiques au laboratoire (cellules humides et cellules d'altération) et de terrain (cellules de terrain) de Plante et al (2014) ont été également intégrés dans cette étude comparative. La comparation des valeurs des taux de génération des contaminants (Ni et SO₄) obtenus au laboratoire (avec des colonnes, le modèle physique, cellules humides et d'altération) et à l'échelle de terrain (halde expérimentale et cellules de terrain) montre que les différences des taux volumiques de génération d'une échelle à l'autre vont jusqu'à 4 ordres de grandeur pour les essais considérés. Ces différences des taux de génération des contaminants (Ni et SO₄) sont impactées par des facteurs hydrologiques. De façon générale, cette étude comparative montre que les réponses géochimiques des stériles sont influencées de façon significative par les différences de rapport liquide/solide entre les diverses échelles. Les résultats obtenus dans ce chapitre pourraient permettre d'améliorer les modèles de prédiction de la qualité des eaux drainage issues des haldes à stériles.

Pour des futures études comparatives sur différentes échelles d'observation, il est recommandé d'examiner d'autres facteurs, tels que le débit d'eau et le temps de séjour, afin d'améliorer l'évaluation des effets d'échelle.

8.6 Remarques finales

Cette thèse présente les résultats de recherche à l'échelle de laboratoire (colonnes et système expérimental 2D) et à l'échelle de terrain (halde expérimentale). L'originalité de cette thèse repose principalement sur l'étude multi-échelle d'une nouvelle méthode d'entreposage des roches stériles conçue spécifiquement pour limiter ou prévenir la génération de DNC et contribuer à la restauration progressive des haldes. La performance de cette nouvelle approche dans des conditions de terrain a été évaluée

grâce à la halde expérimentale construite sur le site de la mine Lac Tio (près de Havre St-Pierre au Québec, Canada). Les résultats des travaux à l'échelle de la halde expérimetale mais aussi du modèle physique ont permis de vérifier qu'il est possible de contrôler l'infiltration d'eau et la génération de contaminants dans les eaux de drainage de stériles grâce à l'installation d'une CCE. La compréhension du mélange géochimique entre le lixiviat des couches de stériles d'hémo-ilménite et d'anorthosite constituant cette pile expérimentale s'est faite grâce aux travaux des essais en colonnes remplies de couches de ces deux types de matériaux.

En somme, cette thèse a contribué à évaluer l'impact de la structure de la halde expérimentale sur le comportement hydrogéochimique des stériles. Les résultats obtenus au cours de cette étude peuvent être utilisés sur d'autres sites miniers générateurs de DNC ou DMA.

ANNEXE A

ARTICLE DE CONFÉRENCE : GEOCHEMICAL BEHAVIOR OF DIFFERENT WASTE ROCK CONFIGURATIONS FROM THE LAC TIO MINE : COMPARISON BETWEEN COLUMN TESTS AND EXPERIMENTAL WASTE ROCK PILE RESULTS

B. Poaty, B. Plante, B., B. Bussière and M. Benzaazoua

Based on paper presented in Proceedings of the Mine Waste and Tailings Conference, Keystone, Colorado, USA, Septembre 30 to October 2, 2018.

Résumé

Les stériles miniers sont extraits des mines pour accéder au gisement et sont généralement stockés à la surface sous forme des haldes à stériles. Certains minéraux contenus dans les stériles peuvent réagir lorsqu'ils sont exposés aux conditions environnementales de surface, générant un drainage minier contaminé. Une nouvelle méthode de gestion utilisant des bancs compactés inclinés a été proposé pour contrôler les infiltrations d'eau et minimiser la contamination dans les haldes à stériles. La configuration proposée est basée sur une couche de contrôle d'écoulement constituée de matériaux non réactifs compactés à grains fins qui contribuent à dévier l'eau vers l'extérieur de la halde, constituée de stériles miniers non réactifs. Une halde expérimentale à stériles miniers a été construite à la mine du Lac Tio (près de Havre-Saint-Pierre, Québec, Canada) pour évaluer la performance de cette approche dans des

conditions de terrain. Une couche compactée constituée de sable et de stériles miniers non réactifs concassés a été utilisée comme couche de contrôle des écoulements à la surface de la halde. Les essais en colonnes ont été effectués en laboratoire pour comprendre les performances du système dans des conditions contrôlées. Les résultats suggèrent qu'une couche de contrôle des écoulements bien conçue pourrait être efficace pour contrôler l'infiltration et réduire la contamination de l'eau. Cette nouvelle méthode de gestion des stériles pourrait être appliquée à d'autres sites miniers.

Abstract

Waste rocks are extracted from mines to access the orebody and are usually stored at the surface in large piles. Certain minerals within the waste rocks may react when exposed to surface environmental conditions, generating contaminated mine drainage. A novel management method using inclined compacted benches was proposed to control water infiltration and minimize contamination in waste rock piles. The proposed configuration is based on a flow control layer made of fine-grained, compacted non-reactive materials that contribute to divert water towards the exterior of the pile, made of non-reactive waste rock. An experimental waste rock pile was constructed at the Lac Tio mine (near Havre-Saint-Pierre, Quebec, Canada) to assess the performance of this approach under field conditions. A compacted layer made of sand and crushed non-reactive waste rock was used as the flow control layer at the pile surface. Column tests were carried out in the laboratory to understand the performance of the system under controlled conditions. Results suggest that a well-designed flow control layer could be effective to control infiltration and reduce water contamination. This novel waste rock management method could be applied to other mine sites.

A.1 Introduction

Mining operations generate different mine wastes, such as waste rock and tailings. Exposure of tailings and waste rocks to atmospheric conditions causes some of the minerals within the wastes to react with air and water, which will modify the quality of mine drainage waters circulating through waste rock piles and tailings ponds. The oxidation of sulfide minerals such as pyrite generates acidity and releases sulfate and metal ions to the drainage waters. In the absence of neutralizing minerals, these phenomena can result in the development of acid mine drainage (AMD) conditions (e.g. Blowes *et al.* 2014). In the presence of sufficient neutralizing minerals, the pH may remain around neutrality, but metal concentrations may be higher than permitted, resulting in contaminated neutral drainage (CND) conditions (e.g. Nicholson , 2004; Plante *et al.* 2011).

It is essential to predict the geochemical behavior of waste rocks in order to choose a management method minimizing the contamination of their drainage waters. Measures to prevent water contamination can be adopted by planning the construction of the waste rock piles in order to limit water infiltration and promote the flow of infiltrated water to non-reactive areas or out of the pile (Aubertin et al, 2005, 2009, 2013; Fala et al. 2005; Aubertin, 2013).

Theoretically, it is possible to minimize the infiltration of water into the piles, hence the production of contaminated drainage, by using inclined layers of fine and compacted material during the construction of the waste rock piles (e.g., Aubertin, 2013; Fala et al., 2005), which are called flow control layers (FCL). These layers have the necessary hydrogeological properties (e.g., hydraulic conductivity) to limit the percolation of water within the pile and direct the infiltrated water towards the outside of the piles (e.g., Aubertin et al., 2005; Rohde and Williams, 2009). This management of the materials favors the establishment of capillary barrier effects between the layer of fine and dense material of the FCL and the looser waste rocks (Broda et al., 2013, 2017; Dawood and Aubertin, 2009; Fala et al., 2005). The FCL allows water diversion over a distance which depends on its hydrogeological properties, thickness, and angle (Aubertin et al., 2005; Aubertin, 2013).

A novel management method using inclined compacted benches was proposed to control water infiltration and minimize contamination in waste rock piles. The proposed configuration is based on a flow control layer made of fine-grained, compacted non-reactive materials that contribute to divert water towards the exterior of the pile, made of non-reactive waste rock. An experimental waste rock pile was constructed at the Lac Tio mine (near Havre-Saint-Pierre, Quebec, Canada) to assess the performance of this approach under field conditions. A compacted layer made of sand and crushed non-reactive waste rock was used as the flow control layer at the pile surface. Column tests were carried out in the laboratory to understand the performance of the system under controlled conditions. Results suggest that a well-designed flow control layer could be effective to control infiltration and reduce water contamination. This novel waste rock management method could be applied to other mine sites.

A.2 Study site, test pile design and construction

The Lac Tio mine was chosen as the construction site of a test pile because the waste rocks from this site have been extensively characterized in previous studies. Indeed, several mineralogical, geochemical, and hydrogeological characterization studies have been carried out on the Lac Tio mine waste rocks, which enabled to understand the mechanisms of Ni-CND generation from the Lac Tio mine waste rocks (e.g., Bussière et al., 2008, 2011; Demers et al., 2011; Pépin et al., 2008; Plante et al., 2010, 2011; Peregoedova et al., 2013).

This mine is located 43 km northeast of Havre-Saint-Pierre, on the north shore of the Saint Lawrence river in Quebec, Canada. It is a Rio Tinto Fer et Titane-owned openpit mine in operation since 1950 extracting a hematite-ilmenite ore (Fe₂O₃ and FeTiO₃ respectively) commonly called hemo-ilmenite. The Lac Tio deposit is a wide band of hemo-ilmenite embedded within an anorthositic complex. The cut-off grade of ore convoyed to the processing plant varied during the operation period and is presently approximately 76% of hemo-ilmenite, below which the extracted material is considered to be waste rocks of no economic value and stored in the waste rock piles. Some waste rock piles generate a contaminated nickel effluent that, if not treated, is occasionally above 0.50 mg/L, an environmental standard prescribed in *Directive 019* of the Quebec province (Plante 2010; Bussière et al. 2011).

A test pile measuring 60 m \times 35 m \times 7 m, with a slope of 5% (Fig. A.1) was built by push-dumping at the Lac Tio mine site. At the base of this test pile, six 10 m x 10 m lysimeters (lys 1 to lys 6) were installed to collect the water that percolates down these locations (Martin et al., 2017). The dimensions of the experimental pile are based on previous studies (Broda et al., 2017).



Figure A.1 Design of the experimental waste rock pile, showing instrumentation location (not to scale; Dimech et al. 2017)

The first 50 m of the waste rock pile consist of hemo-ilmenite waste rocks (> 5% hemo-ilmenite) while the last 10 m is made of anorthositic waste rocks (<5% hemo-ilmenite and <0.1% sulfur). The pile was covered with a 0.5 m layer of compacted sand. The sand layer was covered by a 0.25 m thick layer of compacted, crushed anorthosite (sieved to <10 mm) (Martin et al., 2017). These two layers together constitute the FCL of the experimental pile.

The monitoring of the water distribution throughout the pile is carried out by instrumenting the experimental pile with multiple hydrogeological and geophysical sensors (for more information, see the papers of Martin et al., 2017 and Dimech et al., 2017). The design of the experimental waste rock pile and instrumentation locations are shown in Figure A.1. The anorthositic waste rock was sampled from the crushed anorthosite used in the FCL of the test pile at the Lac Tio mine site. Similarly, the hemo-ilmenite (<50 mm) waste rocks were sampled from the materials used in the construction of the test pile. The hemo-ilmenite samples were stored in three 170 liters barrels while the crushed anorthosite was stored in four plastic buckets (20 liters), hermetically sealed and transported to the URSTM-UQAT laboratory. Each type of waste rock was homogenized manually using a shovel. The sampled materials were subjected to a physicochemical, chemical, and mineralogical characterization.

The volumes of leachate collected from each lysimeter were recorded daily using tipping bucket flow meters during the unfrozen months of 3 years (2015, 2016, 2017).

The analyses of pH values, electrical conductivity (EC) and redox potential (Eh) of the leachates were carried out in the field. The values of acidity, alkalinity and concentrations of the chemical species present in the collected leachates were measured in the laboratory.

A.3 Column tests

Since the internal structure of the experimental pile consists of hemo-ilmenite waste rocks (from lysimeter 1 to lysimeter 5) and anorthosite waste rock (lysimeter 6), it is necessary to study the geochemical behavior of these two types of materials. Therefore, four (4) columns were set up in the laboratory as shown in Figure A.2: two control columns each one filled with a single type of materials (anorthosite or hemo-ilmenite) and two mixed columns filled with both types of materials. The characteristics of the columns (Co HI, Co Anor, Co AI, Co Sandwich) are presented in Table A.1.



Figure A.2 Configuration of the laboratory column set up

The hemo-ilmenite and anorthosite columns (respectively, Co-HI and Co-Anor) consist of a 1m-high, 14 cm internal diameter (ID) PVC (polyvinyl chloride) tube. These columns were respectively filled with 36.1 kg of hemo-ilmenite (Co-HI) and 23.0 kg of anorthosite (Co-Anor; Fig. A.2 and Table A.1). The other two columns consist of 80 cm-high, 30 cm ID PVC tubes. One of these two columns, called "AI Column" (Co-AI) was filled with a 61 cm thick layer of hemo-ilmenite, topped by a 9 cm anorthosite layer. The second column, called the "Sandwich column" (Co-Sandwich), was filled with a 34 cm thick layer of hemo-ilmenite positioned between two 1 8 cm anorthosite layers (Fig. A.2). A funnel-shaped lysimeter, covered with a geotextile for retaining fine particles and connected to a 12 mm ID tube for water sampling, was installed at a height of 20 cm (at the center of the hemo-ilmenite layer) of the Co-Sandwich (labelled port 1, or P1; Fig. A2). Leachate collection ports were also installed at the bottom of each of the four columns. A geotextile filter was placed at the base of all four columns to retain the fine particles.

Column names		Co HI	Co Anor	Co-AI	Co-Sandwich
Column dimensions	Diameter (cm)	14	14	30	30
	Height (cm)	91	91.5	80	80
Hemo-ilmenite layer:	Number of layers of this type	1	0	1	1
	Thickness (cm)	80	-	61	34
	Porosity n (unitless)	0.4	-	0.36	0.38
	Initial water content (%)	1.3			
Anorthosite layer:	Number of layers of this type	0	1	1	2
	Thickness (cm)	-	80	9	18
	Porosity n	-	0.35	0.29	0.3
	Initial water content (%)	1.3			
Volume of rinse water (L)	Normal rainfall	1.8	1.8	8.4	8.4
	Low rainfall	0.9	0.9	4.2	4.2
	High rainfall	4	0.9	12	12

Table A.1 Features of the columns and volumes of rinse water

The columns were flushed every 14 days. The volumes of water were representative of monthly rainfalls in the Havre-Saint-Pierre area (Table A.1). Higher and lower rainfall conditions were also simulated by halving or doubling the normal volume of deionized water. The volume of rinse water used during the various column tests are shown in Table A.1. In the case of columns filled with mixed materials (Co-AI and Co-Sandwich), the normal volume of deionized water could not be doubled due to the limited capacity of the columns, so it was increased by proximately 1.5 times instead (12 liters instead of 8.4 liters; Table A.1). The rinse water was left in contact with the materials for approximately 3 hours before opening the bottom valve and enabling the leachate to drain. The columns were left exposed to ambient air to dry in between flushes. These column tests were performed for a total of 38 cycles (over 500 days).

A.4 Results and interpretation

The following will present the preliminary results from the materials characterization, as well as from the geochemical monitoring of the test pile lysimeters and laboratory column tests.

A.4.1 Material characterization

The materials that were sampled during the construction of the test pile and those that were used for the setting up of the columns were subjected to a chemical characterization by X-ray fluorescence (XRF) analysis. The chemical characterization by XRF analysis of more than 20 elements was carried out on 27 samples (n = 27) from the experimental pile and those of the columns. Only the elements of interest are presented in Table A.2, where it could be seen that the chemical composition of the hemo-ilmenite waste rocks from the experimental pile and those of the columns are nearly identical. The anorthositic waste rock sampled contains less than 0.1% sulfur and a low hemo-ilmenite content, in agreement with what was targeted for the test pile

construction. The mineralized waste rock sampled contains more than 30% iron and 14% Ti, suggesting a high hemo-ilmenite (HI) content (over 40% ilmenite). As for the hydrological properties of the materials used in the FCL of the experimental pile, they have been detailed in the papers of Bréard Lanoix et al., 2017, Martin et al., 2017, and Dubuc et al., 2017.

	HI waste rock (test pile)	HI waste rock (columns)	Anorthosite (test pile and column)
Fe (%)	31.1	30.5	2.9
Ti (%)	14.1	16.7	1.4
S (%)	0.40	0.33	0.003
Ni (mg/kg)	633	560	<100
Si (%)	7.8	7.6	24.7
Ca (%)	2.0	1.6	5.7
Al (%)	5.1	7.6	13.2

Table A.2 Chemical characterization of samples from the experimental waste rock pile (mean values of 27 samples) and columns

A.4.2 Test pile geochemistry results

The analysis of leachate samples collected from the lysimeters provided several geochemical parameters (pH, electrical conductivity, acidity, alkalinity, cations, anions, and dissolved metals). However, only key parameters such as pH, electrical conductivity, as well as nickel and sulfate concentrations (sulfide oxidation products) are presented here. Nickel and sulfate are presented in terms of concentrations and cumulative loadings. The pH values (Fig. A.3a) of all lysimeter leachates remain neutral within 6.5 and 7.5 throughout the monitoring period. However, the electrical conductivity values of the leachate from the lysimeter 6 are lower compared to those from lysimeters 1 to 5 (Fig. A.3b). Figures A.3c and A.3d respectively show the trends

of sulfate and nickel release in leachates collected from the six lysimeters of the test pile. During the three years of monitoring, the highest sulfate and nickel concentrations were measured in leachates from lysimeters 1, 2 and 3 (Figs A.3c and A.3d, respectively). In general, nickel and sulfate concentrations were higher in lysimeters 1 to 5 than in lysimeter 6, the latter being located in the anorthositic part of the test pile (Fig. A.1). These preliminary results show that the water passing through the anorthosite waste rock is less contaminated. Although more work is needed to completely understand the main factors controlling the water quality in the test pile, the relative ratios of leaching water volume vs quantity of waste rocks over each lysimeter is probably one of the most significant parameters to focus on.

The cumulative nickel and sulfate loadings were estimated by multiplying the concentrations and volumes of collected leachates, divided by the estimated mass of waste rocks over each lysimeter. Figures A.4a and b show the evolution of sulfate and nickel cumulative loadings from the lysimeters between the spring and autumn of 2016. The cumulative loadings show that less nickel and sulfate come out of lysimeter 6. Therefore, the lower concentrations obtained in the leachate from the lysimeter 6 are not related to a dilution caused by the higher volumes of leachate collected in this lysimeter. Indeed, lysimeter 6 systematically leaches more water than the other lysimeters; the distribution of water leaching out of the pile is described in more details in Martin et al., 2017 and Dubuc et al., 2017. Thus, the lower nickel and sulfate concentrations in the lysimeter 6 leachates are attributed to the low sulfide contents of the anorthosite (e.g., Bussière et al., 2011; Plante et al., 2010, 2011).



Figure A.3 Evolution of geochemical parameters over time in the column tests



Figure A.4 Nickel (a) and sulfate (b) cumulative loadings from lysimeters 1 to 6 during the 2016 season

A.4.3 Column test geochemistry results

The results of the column tests carried out to simulate the geochemical behavior of waste rocks of test pile are presented here. The column tests allow investigating the effect of an anorthosite layer placed above a hemo-ilmenite layer on the quality of the leachate (Co-AI), as well as the effect of an anorthosite layer underneath a hemo-ilmenite layer (Co-Sandwich). Port 1 of the Co-Sandwich enables to sample the water quality in the interstitial water of the hemo-ilmenite layer (sampling port 1 or P1), before that water passes through the underlying anorthosite layer (sampling port 2 or P2). Only the same key parameters as were shown for the experimental pile are presented here: pH, electrical conductivity, as well as nickel and sulfate concentrations and cumulative loadings.

The pH values measured in the leachates from the columns are presented in Figure A.5a. The anorthosite control column (Co-Anor) showed the highest pH values (pH \approx 8), while the leachates from the control hemo-ilmenite column (Co-HI) had the lowest pH values (pH \approx 6). The pH values of leachate from the two other columns (Co-AI

and Co-Sandwich) are between 6 and 8. The electrical conductivity values (Fig. A.5b) of Co-Anor are the lowest, while those of the Co-HI and of P1 (in hemo-ilmenite) of Co-Sandwich are the highest. Figures A.5c and 5d respectively show that the lowest nickel and sulfate concentrations are released by Co-Anor and port 2 of Co-Sandwich. This demonstrates that the anorthosite waste rocks are the lowest reactive materials, consistent with their <0.1% sulfur content. This also demonstrates that although the overlying hemo-ilmenite does generate nickel in the leachates, this nickel is intercepted by the lower anorthosite layer, most probably by sorption phenomena, as it was demonstrated in previous studies (e.g., Bussière et al., 2011; Plante et al., 2010, 2011).

When the columns were rinsed with a higher volume of water compared to normal flushes, the sulfate and nickel concentrations decreased by almost 50%, whereas when the volume of rinse water was halved compared to normal, the sulfate and nickel concentrations almost doubled. These results suggest that the relative liquid-solid ratios has a significant effect on the water quality, consistent with previous results obtained at different scales on the Lac Tio mine waste rocks (Plante et al., 2014).



Figure A.5 Evolution of geochemical parameters over time in the column tests

Figure A.6 shows the evolution of nickel and sulfate cumulative loadings over time in the column leachates. Figure A.6a shows that the nickel cumulative loadings from the leachates collected through port 1 of Co-Sandwich are the highest of all the columns, whereas those from the leachates collected through port 2 are the lowest (in fact, they are close to zero, because the Ni concentrations were systematically below the detection limit of 0.004 mg/L). This suggests that the Ni generated by the hemo-ilmenite layer was not influenced by the presence of an upper anorthosite layer. The results also demosntrate that the Ni generated by the hemo-ilmenite layer was removed from solution by the underlying anorthosite layer. In addition, the trends of the Ni cumulative loadings from the leachates of the hemo-ilmenite column (Co-HI) are the

same as those from the leachate from the AI column (Co-AI) up to approximately on the 300th day. This also suggests that the presence of an upper anorthosite layer does not seem to significantly change the geochemical behavior of the underlying hemoilmenite. Figure A.6a also shows two (2) significant changes in the slope of the cumulative nickel and sulfate values: a significant increase between 196 to 238 days (corresponding to the period where the leaching volumes were increased), and a plateau between 322 and 364 days (corresponding to the period where the leaching volumes were decreased). For the rest of the test where normal flush volumes were used, the slopes are similar. It is also noteworthy that these slope changes are not observed for the other columns. It appears that preferential flow paths seem to develop when the leaching volumes changed, leading to an increase of the fraction of the volume that was intercepted by P1 when the leaching volume was increased, and to a decrease when the leaching volume was halved.

Figure A.6b shows the sulfate cumulative loadings over time in the leachates collected at the bottom of the columns. The Co-Sandwich P1 sulfate cumulative loadings show the same trends as those observed for nickel, namely a slope increase between 196 and 238 days and a plateau between 322 and 364 days, while the slopes of other columns do not show significant changes, consistent with the hypothetical preferential flow paths above mentioned.

In addition, the P1 slopes are slightly higher than those of the Co-HI column, suggesting that the nickel and sulfate release rates are higher within the Co-AI column than in the Co-HI column. The reasons behind these differences need to be investigated further.



Figure A.6 Cumulative nickel (a) and sulfate (b) loadings over time in the column tests

A.4.4 Comparison between laboratory and field scales

The results of nickel and sulfate concentrations from the experimental pile and laboratory columns differ. The sulfate concentrations in leachates from the column tests (up to 1500 mg/L) are lower than those from the test pile (up to about 3500 mg/L). Similarly, the nickel concentrations in leachates from the test pile (up to 8.8 mg/L) are higher than those obtained with the columns (<4.5 mg/L). In addition, the nickel cumulative loadings from leachates collected in the field in the 2016 season (up to $3x10^{-4}$ mg/kg) are higher than those from the column tests (up to 8 mg/kg). Finally, the sulfate cumulative loadings are lower in the 2016 field leachates (<25 mg/kg) than in the columns (up to 1100 mg/kg). Given the time period over which each scale is compared, the cumulative loadings can be used to estimate the release rates of nickel and sulfate by calculating the slope of the curves shown in Figures A.4 and A.6. The highest nickel release rates are estimated to approximately 0.012 mg/kg/day in the laboratory, while they are $3x10^{-6}$ mg/kg/day in the field. The highest sulfate release rates between the laboratory and the field are closer than for nickel, with approximately 1.0-1.6 mg/kg/day and 0.2 mg/kg/day, respectively.

The differences in nickel and sulfates release rates observed between the laboratory and field scales are related to several factors such as pH, liquid-solid ratio, precipitation of secondary minerals, temperature, grain size distributions, and surface phenomena (sorption, ion exchange, etc.) (Bussière et al., 2011; Evans and Banwart, 2006; Plante et al., 2014; Sapsford et al., 2009). The contribution of these factors to the observed scale differences for nickel and sulfate are currently being studied further, including using numerical modeling and thermodynamical equilibrium calculations.

A.5 Conclusion and future work

This study presents the preliminary results from an experimental test pile and those obtained from column tests in the laboratory. The results show that the use of anorthosite waste rock in a flow control layer allows controlling water infiltration and the generation of CND from hemo-ilmenite waste rock by favoring water circulation within anorthosite waste rock that is non CND-generating. The results of the experimental test pile suggest that this new approach to the construction of waste rock piles effectively enables to decrease the contamination of mine drainage.

Column test results show that the concentrations of nickel and sulfate leached out of the columns are closely linked to changes in leaching volume. They also show that an overlying anorthosite layer above CND-generating hemo-ilmenite waste rocks does not affect nickel and sulfate generation in the leachates. However, column tests results show that the nickel generated from the hemo-ilmenite waste rocks is removed by an underlying anorthosite layer, thus suggesting that using successive benches constructed as in the experimental test pile described here would enable to intercept contaminated water and improve its quality.

As part of future work to be carried out, the material characterizations will be completed, and a 2D intermediate-scale test (approximately $2m^3$) will be set up in the

laboratory in order to better understand the mechanisms for release and attenuation of contaminants from the Lac Tio mine waste rocks. Additional interpretations will also focus on the scale effects between laboratory and field results. This work will also include numerical modeling of the columns and of the intermediate scale test with MIN3P to understand the main factors of influence on the geochemical behavior of the Lac Tio mine waste rocks.

BIBLIOGRAPHIE GÉNÉRALE

- Acharya, B. S., and G. Kharel. 2020. Acid mine drainage from coal mining in the United States–An overview. Journal of Hydrology 588:125061.
- AFNOR. 1994. Norme NF ISO 11464. Qualité du sol. Prétraitement des échantillons pour analyses physico-chimiques.pp 39–51.
- Alpers, C. N., D. K. Nordstrom, and J. M. Thompson. 1993. Seasonal variations of Zn/Cu ratios in acid mine water from Iron Mountain, California.
- Amos, R., L. Smith, M. Neuner, M. Gupton, D. Blowes, L. Smith, and D. Sego. 2009. Diavik waste rock project: oxygen transport in covered and uncovered piles. Pages 22-26 in Proceedings International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD) Skellefteå, 8th, Sweden.
- Amos, R. T., D. W. Blowes, B. L. Bailey, D. C. Sego, L. Smith, and A. I. M. Ritchie. 2015. Waste-rock hydrogeology and geochemistry. Applied Geochemistry 57:140-156.
- Andrina, J. 2009. Physical and geochemical behavior of mine rock stockpiles in high rainfall environments. PhD Thesis, University of British Columbia.
- Andrina, J., S. Miller, and A. Neale. 2003. The Design, Construction, Instrumentation and Performance of a Full Scale Overburden Stockpile Trial for Mitigation of Acid Rock Drainage. Grasberg Mine, Papua Province, Indonesia.in Grasberg Mine, Papua Province, Indonesia: Proceedings of Sixth International Conference on Acid Rock Drainage (Cairns, QLD, Australia, July 14-17, 2003).
- Andrina, J., G. Wilson, S. Miller, and A. Neale. 2006. Performance of the acid rock drainage mitigation waste rock trial dump at Grasberg mine. Proceedings from the 7th international conference on acid rock drainage, St. Louis, United States, pp. 30–44.
- Anterrieu, O., M. Chouteau, and M. Aubertin. 2010. Geophysical characterization of the large-scale internal structure of a waste rock pile from a hard rock mine. Bulletin of engineering geology and the environment 69:533-548.
- Ardau, C., D. W. Blowes, and C. J. Ptacek. 2009. Comparison of laboratory testing protocols to field observations of the weathering of sulfide-bearing mine tailings. Journal of Geochemical Exploration 100:182-191.

- ASTM. 2006. Standard test method for specific gravity of soil solids by gas pycnometer (D550-06). ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM. 2007. Standard Test Method for Particle-Size Analysis of Soils (D422). ASTM International, West Conshohocken, PA.
- ASTM. 2007. Standard Test Method for Measurement of Hydraulic Conductivity of Porous Material Using a Rigid-Wall, Compaction-Mold Permeameter (D5856), ASTM International, West Conshohocken, PA.
- Aubertin, M. 2013. Waste rock disposal to improve the geotechnical and geochemical stability of piles. in Proceedings of the world mining congress, Montreal, Canada.
- Aubertin, M., B. Bussière, L. Bernier, R. Chapuis, M. Julien, T. Belem, R. Simon, M. Mbonimpa, M. Benzaazoua, and L. Li. 2002a. La gestion des rejets miniers dans un contexte de développement durable et de protection de l'environnement. Congrès annuel de la Société canadienne de génie civil:5-8.
- Aubertin, M., E. Cifuentes, S. Apithy, B. Bussière, J. Molson, and R. Chapuis. 2009. Analyses of water diversion along inclined covers with capillary barrier effects. Canadian Geotechnical Journal 46:1146-1164.
- Aubertin, M., O. Fala, B. Bussière, V. Martin, D. Campos, A. Gamache-Rochette, M. Chouteau, and R. Chapuis. 2002b. Analyse des écoulements de l'eau en conditions non saturées dans les haldes à stériles.in Défis et perspectives: Symposium 2002 sur l'Environnement et les Mines, Rouyn-Noranda, Canada.
- Aubertin, M., O. Fala, J. Molson, M. Chouteau, O. Anterrieu, M. A. Hernandez, R. P. Chapuis, B. Bussière, B. Lahmira, and R. Lefebvre. 2008. Caractérisation du comportement hydrogéologique et géochimique des haldes à stériles. In Proceedings of the symposium sur l'environnement et les mines, Rouyn-Noranda, QC, Canada, pp. 2-5.
- Aubertin, M., O. Fala, J. Molson, A. Gamache-Rochette, B. Lahmira, V. Martin, R. Lefebvre, B. Bussière, R. P. Chapuis, and M. Chouteau. 2005. Évaluation du comportement hydrogéologique et géochimique des haldes à stériles. Pages 15-18 in Symposium Rouyn-Noranda: L'Environnement et les Mines.
- Awoh, A. S., M. Mbonimpa, and B. Bussière. 2020. 6 Water Covers. Hard Rock Mine Reclamation: From Prediction to Management of Acid Mine Drainage:135.

- Azam, S., G. W. Wilson, G. Herasymuik, C. Nichol, and L. S. Barbour. 2007. Hydrogeological behaviour of an unsaturated waste rock pile: a case study at the Golden Sunlight Mine, Montana, USA. Bulletin of engineering geology and the environment 66:259-268.
- Bailey, B. L., D. W. Blowes, L. Smith, and D. C. Sego. 2016. The Diavik Waste Rock Project: Geochemical and microbiological characterization of low sulfide content large-scale waste rock test piles. Applied Geochemistry 65:54-72.
- Banerjee, D. 2014. Acid drainage potential from coal mine wastes: environmental assessment through static and kinetic tests. International Journal of Environmental Science and Technology 11:1365-1378.
- Banwart, S. A., K. A. Evans, and S. Croxford. 2002. Predicting mineral weathering rates at field scale for mine water risk assessment. Geological Society, London, Special Publications 198:137-157.
- Bay, D. S. 2009. Hydrological and hydrogeochemical characteristics of neutral drainage from a waste rock test pile. PhD Thesis, University of British Columbia.
- Benzaazoua, M., B. Bussière, A.-M. Dagenais, and M. Archambault. 2004. Kinetic tests comparison and interpretation for prediction of the Joutel tailings acid generation potential. Environmental Geology 46:1086-1101.
- Blackmore, S., B. Speidel, A. Critchley, R. Beckie, K. Mayer, and L. Smith. 2012. The influence of spatial heterogeneity and material characteristics on fluid flow patterns through two unsaturated, mixed waste-rock piles. Pages 20-26 in Proceedings International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD) Ottawa, 9th, Canada.
- Blackmore, S., L. Smith, K. U. Mayer, and R. D. Beckie. 2014. Comparison of unsaturated flow and solute transport through waste rock at two experimental scales using temporal moments and numerical modeling. Journal of Contaminant Hydrology 171:49-65.
- Blowes, D., M. Moncur, L. Smith, D. Sego, J. Bennet, A. Garvie, C. Linklater, D. Gould, and J. Reinson. 2006. Construction of two large-scale waste rock piles in a continuous permafrost region. Pages 187-199 in Proceedings of the Seventh International Conference on Acid Rock Drainage, St. Louis, Mo., USA.
- Blowes, D., C. Ptacek, J. Jambor, and C. Weisener. 2003. The geochemistry of acid mine drainage. Treatise on geochemistry 9:612.

- Blowes, D., C. Ptacek, J. Jambor, C. Weisener, D. Paktunc, W. Gould, and D. Johnson. 2014. The geochemistry of acid mine drainage, in: Turekian, H.D.H.K. (Ed.), Treatise on Geochemistry (Second Edition). Elsevier, Oxford, pp. 131-190.
- Bradbury, M., and B. Baeyens. 2009. Sorption modelling on illite Part I: Titration measurements and the sorption of Ni, Co, Eu and Sn. Geochimica et Cosmochimica Acta 73:990-1003.
- Bréard Lanoix, M.-L., T. Pabst, and M. Aubertin. 2017. Characterization of the hydrogeological properties of a sand layer placed on an experimental waste rock pile. GeoOttawa 2017-70th Canadian Geotechnical Conference, Ottawa, ON, Canada.
- Broda, S., M. Aubertin, D. Blessent, E. Hirthe, and T. Graf. 2014. Improving control of contamination from waste rock piles. Environmental Geotechnics 4:274-283.
- Broda, S., E. Hirthe, D. Blessent, M. Aubertin, and T. Graf. 2013. Using random discrete fractures for representing preferential flow in waste rock piles with compacted layers.in Proceedings of the GeoMontreal conference, CGS-IAH, Montreal, QC, Canada.
- Bussière, B., M. Aubertin, H. Morel-Seytoux, and R. Chapuis. 1998. A laboratory investigation of slope influence on the behaviour of capillary barriers. Pages 4-8 in Proceedings of the 51st Canadian Geotechnical Conference, Edmonton, Alta, pp. 4-8.
- Bussière, B. 1999. Étude du comportement hydrique de couvertures avec effets de barrière capillaire inclinées avec l'aide de modélisations physiques et numériques. These de doctorat, Département des génies civil, géologique et des mines, École Polytechnique de Montréal, Québec, Canada.
- Bussière, B., M. Aubertin, and R. P. Chapuis. 2003. The behavior of inclined covers used as oxygen barriers. Canadian Geotechnical Journal 40:512-535.
- Bussière, B., M. Aubertin, M. Mbonimpa, J. W. Molson, and R. P. Chapuis. 2007a. Field experimental cells to evaluate the hydrogeological behaviour of oxygen barriers made of silty materials. Canadian Geotechnical Journal 44:245-265.
- Bussière, B., M. Aubertin, and G. Zhan. 2007b. Design of inclined covers with capillary barrier effect by S.-E. Parent and A. Cabral. Geotechnical and Geological Engineering 25:673-678.

- Bussière, B., M. Benzaazoua, B. Plante, G. Pepin, M. Aubertin, and D. Laflamme. 2008. Évaluation du comportement géochimique des stériles de la mine Tio, Havre-Saint-Pierre, Québec. In Proceedings of the Symposium sur l'Environnement et les Mines, Rouyn-Noranda, QC, Canada.
- Bussière, B., M. Aubertin, G. J. Zagury, R. Potvin, and M. Benzaazoua. 2005. Principaux défis et pistes de solution pour la restauration des aires d'entreposage de rejets miniers abandonnées. In Symposium 2005 sur l'environnement et les mines.
- Bussière, B., M. Aubertin, and G. Zhan. 2007b. Design of inclined covers with capillary barrier effect by S.-E. Parent and A. Cabral. Geotechnical and Geological Engineering 25:673-678.
- Bussière, B., M. Benzaazoua, B. Plante, G. Pepin, M. Aubertin, and D. Laflamme. 2008. Évaluation du comportement géochimique des stériles de la mine Tio, Havre Saint-Pierre, Québec. In Proceedings of the Symposium 2008 sur l'Environnement et les mines, Rouyn-Noranda, Québec, Canada.
- Bussière, B., I. Demers, I. Dawood, B. Plante, M. Aubertin, A. Peregoedova, G. Pepin, G. Lessard, R. Intissar, and M. Benzaazoua. 2011. Comportement géochimique et hydrogéologique des stériles de la mine Lac Tio. In Proceedings of the Symposium sur l'Environnement et les Mines, Rouyn-Noranda, Québec, Canada.
- Bussière, B., B. Plante, S. Broda, M. Aubertin, D. Chen, and F. Medina. 2015. Contrôle des infiltrations d'eau dans les haldes à stériles à l'aide des effets de barrière capillaire: Design, construction et instrumentation de la halde expérimentale de la mine Tio. Pages 14-17 in Proceedings of the Symposium sur l'environnement et les mines, Rouyn-Noranda, QC, Canada.
- Cama, J., V. Metz, and J. Ganor. 2002. The effect of pH and temperature on kaolinite dissolution rate under acidic conditions. Geochimica et Cosmochimica Acta 66:3913-3926.
- Cánovas, C., C. Hubbard, M. Olías, J. Nieto, S. Black, and M. L. Coleman. 2008. Hydrochemical variations and contaminant load in the Río Tinto (Spain) during flood events. Journal of Hydrology 350:25-40.
- Chopard, A., M. Benzaazoua, B. Plante, H. Bouzahzah, and P. Marion. 2015. Kinetic tests to evaluate the relative oxidation rates of various sulfides and sulfosalts. ICARDS2015 Proceedings, Santiago du Chile (Chile).

- Corazao Gallegos, J. C. 2007. The design, construction, instrumentation and initial response of a field-scale waste rock test pile. PhD Thesis, University of British Columbia.
- Dawood, I., and M. Aubertin. 2009. A numerical investigation of the influence of internal structure on the unsaturated flow in a large waste rock pile. In 62nd Canadian Geotechnical Conference and 10th Joint CGS/IAH-CNC Groundwater Specialty Conference, Halifax, Nova Scotia, Canada.
- Dawood, I., M. Aubertin, R. Intissar, and M. Chouteau. 2011. A combined hydrogeological–geophysical approach to evaluate unsaturated flow in a large waste rock pile. In Pan-Am CGS Geotechnical Conference, Toronto, Canada.
- Decagon. 2016. GS3, Water Content, EC and Temperature Sensors: Operator's Manual. Decagon Devices Pullman WA.
- Decagon. 2017. MPS-2 & MPS-6 dielectric water potential sensors operator's manual. Decagon Devices Pullman WA.
- Demers, I., B. Bussière, and B. Plante. 2011. Field retention tests to evaluate nickel retention on mine waste rock.in Pan-Am CGS Geotechnical Conference, Toronto, Canada.
- Demers, I., M. Mbonimpa, M. Benzaazoua, M. Bouda, S. Awoh, S. Lortie, and M. Gagnon. 2017. Use of acid mine drainage treatment sludge by combination with a natural soil as an oxygen barrier cover for mine waste reclamation: Laboratory column tests and intermediate scale field tests. Minerals Engineering 107:43-52.
- Demers, I., J. Molson, B. Bussière, and D. Laflamme. 2013. Numerical modeling of contaminated neutral drainage from a waste-rock field test cell. Applied Geochemistry 33:346-356.
- Demers, I., and T. Pabst. 2020a. 7 Covers with Capillary Barrier Effects. Hard Rock Mine Reclamation: From Prediction to Management of Acid Mine Drainage:167.
- Demers, I., and T. Pabst. 2020b. 13 Alternative and Innovative Integrated Mine Waste Management Approaches. Hard Rock Mine Reclamation: From Prediction to Management of Acid Mine Drainage:321.

- Dimech, A. 2018. Imagerie de l'écoulement de l'eau dans une halde à stériles expérimentale par tomographie 3D de résistivité électrique. Mémoire de Maîtrise, Ecole Polytechnique, Montreal (Canada).
- Dimech, A., M. Chouteau, M. Aubertin, B. Bussière, V. Martin, and B. Plante. 2019. Three-Dimensional Time-Lapse Geoelectrical Monitoring of Water Infiltration in an Experimental Mine Waste Rock Pile. Vadose Zone Journal 18.
- Dimech, A., M. Chouteau, E. T.-K. Chou, M. Aubertin, V. Martin, B. Bussière, and B. Plante. 2017. Monitoring water infiltration in an experimental waste rock pile with time-lapse ERT and multi-parameter data collection. In Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems 2017, Society of Exploration Geophysicists and Environment and Engineering Geophysical Society, pp. 195–203.
- Dold, B. 2017. Acid rock drainage prediction: A critical review. Journal of Geochemical Exploration 172:120-132.
- Dubuc, J. 2018. Étude du comportement hydrogéologique d'une couche de contrôle des écoulements placée à la surface d'une halde à stériles expérimentale. Mémoire de Maîtrise, École Polytechnique de Montréal.
- Dubuc, J., T. Pabst, and M. Aubertin. 2017. An assessment of the hydrogeological response of the flow control layer installed on the experimental waste rock pile at the lac Tio mine. GeoOttawa 2017-70th Canadian Geotechnical Conference, Ottawa, ON, Canada.
- Elghali, A., M. Benzaazoua, H. Bouzahzah, B. Bussière, and H. Villarraga-Gómez. 2018. Determination of the available acid-generating potential of waste rock, part I: Mineralogical approach. Applied Geochemistry 99:31-41.
- Elghali, A., M. Benzaazoua, B. Bussière, and H. Bouzahzah. 2019. Determination of the available acid-generating potential of waste rock, part II: Waste management involvement. Applied Geochemistry 100:316-325.
- Evangelou, V. 1995. Pyrite oxidation and its control. Boca Raton, FL: CRC Press, pp. 36–44.
- Evans, K., and S. Banwart. 2006. Rate controls on the chemical weathering of natural polymineralic material. I. Dissolution behaviour of polymineralic assemblages determined using batch and unsaturated column experiments. Applied Geochemistry 21:352-376.
- Fala, O., M. Aubertin, J. Molson, B. Bussière, G. Wilson, R. Chapuis, and V. Martin. 2003. Numerical modelling of unsaturated flow in uniform and heterogeneous waste rock piles. Pages 895-902 in Sixth International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), Australasian Institute of Mining and Metallurgy, Cairns, Australia, Publication Series.
- Fala, O., J. Molson, M. Aubertin, and B. Bussière. 2005. Numerical modelling of flow and capillary barrier effects in unsaturated waste rock piles. Mine water and the environment 24:172-185.
- Felmy AR, G. J., Jenne EA 1984. MINTEQ: a computer program for calculating aqueous geochemical equilibria. NTIS. Springfield, VA, USA.
- Gray, N. 1998. Acid mine drainage composition and the implications for its impact on lotic systems. Water Research 32:2122-2134.
- Hakkou, R., M. Benzaazoua, and B. Bussiere. 2008. Acid mine drainage at the abandoned Kettara mine (Morocco): 2. Mine waste geochemical behavior. Mine water and the environment 27:160-170.
- Hakkou, R., M. Benzaazoua, and B. Bussiere. 2009. Laboratory evaluation of the use of alkaline phosphate wastes for the control of acidic mine drainage. Mine water and the environment 28:206-218.
- Harrison, B., C. Aranda, M. Sanchez, and J. Vizconde. 2012. Waste rock management at the Antamina mine: Overall management and data application in the face of continued expansion. Pages 1176-1187 in Proceedings of the 9th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD), Ottawa, ON, Canada.
- Holmström, H., J. Ljungberg, and B. Öhlander. 1999. Role of carbonates in mitigation of metal release from mining waste. Evidence from humidity cells tests. Environmental Geology 37:267-280.
- Javadi, M., H. Peterson, S. Blackmore, K. Mayer, R. Beckie, L. Smith, and W. Price. 2012. Evaluating preferential flow in an experimental waste rock pile using unsaturated flow and solute transport modeling. Pages 1210-1219 in Proceedings of the 9th International Conference on Acid Rock Drainage, Ottawa, ON, Canada. 20–26 May 2012. Vol. 2. Curran Assoc. Red Hook, NY.
- Johnson, D. B., and K. B. Hallberg. 2005. Acid mine drainage remediation options: a review. Science of the total environment 338:3-14.

- Jung, H., and A. Navarre-Sitchler. 2018. Physical heterogeneity control on effective mineral dissolution rates. Geochimica et Cosmochimica Acta 227:246-263.
- Kefeni, K. K., T. A. Msagati, and B. B. Mamba. 2017. Acid mine drainage: Prevention, treatment options, and resource recovery: A review. Journal of Cleaner Production 151:475-493.
- Kempton, H. 2012. A review of scale factors for estimating waste rock weathering from laboratory tests. In Proceedings of the 9th International Conference on Acid Rock Drainage. Ottawa, Canada.
- Kempton, H., and D. Atkins. 2009. Direct measurement of sulfide mineral oxidation rates and acid rock drainage in wall rock of open pit mines. In Proceedings of the 8th ICARD, June 23-26, 2009. Skelleftea, Sweden.
- Lahmira, B., R. Lefebvre, M. Aubertin, and B. Bussière. 2017. Effect of material variability and compacted layers on transfer processes in heterogeneous waste rock piles. Journal of Contaminant Hydrology 204:66-78.
- Langman, J. B., D. W. Blowes, H. Veeramani, D. Wilson, L. Smith, D. C. Sego, and D. Paktunc. 2015. The mineral and aqueous phase evolution of sulfur and nickel with weathering of pyrrhotite in a low sulfide, granitic waste rock. Chemical Geology 401:169-179.
- Langman, J. B., M. L. Moore, C. J. Ptacek, L. Smith, D. Sego, and D. W. Blowes. 2014. Diavik waste rock project: Evolution of mineral weathering, element release, and acid generation and neutralization during a five-year humidity cell experiment. Minerals 4:257-278.
- Lapakko, K.A., 2003. Developments in humidity-cell tests and their application. In: Jambor, J.L., Blowes, D.W., Ritchie, A.I.M. (Eds.), Environmental Aspect of Mine Wastes. Mineralogical Association of Canada, Short Course Series, vol. 31, pp.147–164
- Lapakko, K. A., J. N. Engstrom, and D. A. Antonson. 2006. Effects of particle size on drainage quality from three lithologies. In 7th ICARD, St. Louis, United States, pp. 1026–1030.
- Lawrence, R. W., and M. Scheske. 1997. A method to calculate the neutralization potential of mining wastes. Environmental Geology 32:100-106.
- Lefebvre, R., D. Hockley, J. Smolensky, and P. Gélinas. 2001. Multiphase transfer processes in waste rock piles producing acid mine drainage: 1: Conceptual

model and system characterization. Journal of Contaminant Hydrology 52:137-164.

- Linklater, C. M., D. J. Sinclair, and P. L. Brown. 2005. Coupled chemistry and transport modelling of sulphidic waste rock dumps at the Aitik mine site, Sweden. Applied Geochemistry 20:275-293.
- Ljungberg, J., M. Lindvall, H. Holmström, and B. Öhlander. 1997. Geochemical field study of flooded mine tailings at Stekenjokk, northern Sweden. In Proc 4th Int Conf on Acid Rock Drainage, Vancouver, BC, 31 May–6 June 1997, 3:1401-1418.
- Lottermoser, B. G. 2010. Sulfidic mine wastes. In Mine wastes, pp. 43-117. Springer, Berlin, Heidelberg.
- Malmström, M. E., G. Destouni, S. A. Banwart, and B. H. Strömberg. 2000. Resolving the scale-dependence of mineral weathering rates. Environmental science & technology 34:1375-1378.
- Martin, V., B. Bussière, B. Plante, T. Pabst, M. Aubertin, F. Medina, M. Bréard-Lanoix,
 A. Dimech, J. Dubuc, and B. Poaty. 2017. Controlling water infiltration in waste rock piles: Design, construction, and monitoring of a large-scale in-situ pilot test pile. In Proceedings of the 70th Canadian Geotechnical Conference, Ottawa, ON, Canada, 1–4 October 2017.
- McCarter, M.K. 1990. Design and Operating Considerations for Mine Waste Embankments. Surface mining, Society of mining, metallurgy and exploration, Littleton, CO, USA, 890-899.
- Mehling, P., S. Day, and K. Sexsmith. 1997. Blending and layering waste rock to delay, mitigate or prevent acid generation: a case review study. Proceedings of the Fourth International Conference on Acid Rock Drainage, May 30–June 6, 1997, Vancouver, BC, vol. II, p. 953-70.
- MEND. 2001. Mine environment neutral drainage (MEND) manual 5.4. 2d: prevention and control. Canada Centre for Mineral and Energy Technology (CANMET), Canada.
- MEND. 2004. Design, construction and performance monitoring of cover systems for waste rock and tailings, Report 2.21.4. Edited by O'Kane Consultants Inc. Natural Resources Canada, Ottawa.

- Miller, S., J. Andrina, and D. Richards. 2003a. Overburden geochemistry and acid rock drainage scale-up investigations at the grasberg mine, Papua province, Indonesia. Proceedings of the 6th ICARD, Cairns, Australia:12-18.
- Miller, S., R. S. C. Smart, J. Andrina, A. Neale, and D. Richards. 2003b. Evaluation of limestone covers and blends for long-term acid rock drainage control at the Grasberg Mine, Papua Province, Indonesia. In Proceedings Sixth International Conference on Acid Rock Drainage. (Cairns, QLD, July 12-18, 2003). The Australian Institute of Mining and Metallurgy, Melbourne.
- Miller, S. D., Y. Rusdinar, R. Smart, J. Andrina, and D. Richards. 2006. Design and construction of limestone blended waste rock dumps: lessons learned from a 10 year study at Grasberg. Doctoral dissertation, ASMR.
- Miyazaki, T. 1988. Water flow in unsaturated soil in layered slopes. Journal of Hydrology 102:201-214.
- Miyazaki T. 2005. Water flow in soils, 2nd edition, CRC Press, Boca Raton, FL, pp 440.
- Molson, J., O. Fala, M. Aubertin, and B. Bussière. 2005. Numerical simulations of pyrite oxidation and acid mine drainage in unsaturated waste rock piles. Journal of Contaminant Hydrology 78:343-371.
- Momeyer, S. A. 2014. Hydrologic processes in unsaturated waste rock piles in the Canadian subarctic. PhD Thesis, University of British Columbia.
- Morin, K. A. 1991. Critical literature review of acid drainage from waste rock. MEND Report 1.11.1, Canada Centre for Mineral and Energy Technology, 175 pp.
- Morris, C. E., and J. C. Stormont. 1999. Parametric study of unsaturated drainage layers in a capillary barrier. Journal of geotechnical and geoenvironmental engineering 125:1057-1065.
- Murr, L., W. Schlitt, and L. Cathles. 1981. Experimental observations of solution flow in the leaching of copper-bearing waste. Pages 271-290. In SME-AIME fall meeting and exhibit, Denver, Colorado, November 1981, 1-18.
- Nastev, M., and M. Aubertin. 2000. Hydrogeological modelling for the reclamation work at the Lorraine mine site Québec. Pages 311-318 in Proceedings, 1st Joint IAH-CNC-CGS Groundwater Specialty Conference, Montreal, Quebec, Canada.

- Neuner, M., L. Smith, D. W. Blowes, D. C. Sego, L. J. Smith, N. Fretz, and M. Gupton. 2013. The Diavik waste rock project: Water flow through mine waste rock in a permafrost terrain. Applied Geochemistry 36:222-233.
- Ng, C. W., J. Liu, R. Chen, and J. Xu. 2015. Physical and numerical modeling of an inclined three-layer (silt/gravelly sand/clay) capillary barrier cover system under extreme rainfall. Waste Management 38:210-221.
- Nichol, C., L. Smith, and R. Beckie. 2000. Hydrogeologic behavior of unsaturated waste rock: an experimental study. In Proceedings of the 5th international conference on acid rock drainage, Denver, Colorado, USA 1:215–224.
- Nichol, C., L. Smith, and R. Beckie. 2003. Water flow in uncovered waste rock–A multi-year large lysimeter study. Proceedings of the 6 th ICARD (July 12-18, Cairns Australia):919-926.
- Nichol, C., L. Smith, and R. Beckie. 2005. Field-scale experiments of unsaturated flow and solute transport in a heterogeneous porous medium. Water Resources Research 41.
- Nicholson, R. V., R. W. Gillham, J. A. Cherry, and E. J. Reardon. 1989. Reduction of acid generation in mine tailings through the use of moisture-retaining cover layers as oxygen barriers. Canadian Geotechnical Journal 26:1-8.
- Nicholson, R. V., M. J. Rinker, G. Acott, and M. A. Venhuis. 2003. Integration of field data and a geochemical transport model to assess mitigation strategies for an acid-generating mine rock pile at a uranium mine. In Proceedings of the Mining and the Environment Conference, Sudbury, ON, Canada, 25 May 2003.
- Nicholson, R. 2004. Overview of near neutral pH drainage and its mitigation: results of a MEND study.in MEND Ontario workshop, Sudbury, Canada.
- Nordstrom, D. K. 2009. Acid rock drainage and climate change. Journal of Geochemical Exploration 100:97-104.
- Nordstrom, D. K. 2011. Hydrogeochemical processes governing the origin, transport and fate of major and trace elements from mine wastes and mineralized rock to surface waters. Applied Geochemistry 26:1777-1791.
- Oelkers, E. H., and J. Schott. 2001. An experimental study of enstatite dissolution rates as a function of pH, temperature, and aqueous Mg and Si concentration, and the mechanism of pyroxene/pyroxenoid dissolution. Geochimica et Cosmochimica Acta 65:1219-1231.

- Olds, W., P.Weber and M. Pizey. 2012. Alkalinity producing covers forminimisation of acid mine drainage generation in waste rock dumps. In Proceedings of the Eighth Australian Workshop on Acid and Metalliferous Drainage, Adelaide, Australia, pp. 253–262.
- Paktunc, A. 1999. Mineralogical constraints on the determination of neutralization potential and prediction of acid mine drainage. Environmental Geology 39:103-112.
- Parbhakar-Fox, A., and B. G. Lottermoser. 2015. A critical review of acid rock drainage prediction methods and practices. Minerals Engineering 82:107-124.
- Park, I., C. B. Tabelin, S. Jeon, X. Li, K. Seno, M. Ito, and N. Hiroyoshi. 2019. A review of recent strategies for acid mine drainage prevention and mine tailings recycling. Chemosphere 219:588-606.
- Parent, S.-É., and A. Cabral. 2006. Design of inclined covers with capillary barrier effect. Geotechnical & Geological Engineering 24:689-710.
- Pepin, G., B. Bussière, M. Aubertin, M. Benzaazoua, B. Plante, D. Laflamme, and G. Zagury. 2008. Field experimental cells to evaluate the generation of contaminated neutral drainage by waste rocks at the Tio mine, Quebec, Canada. Pages 309-312 in Proc, 10th International Mine Water Assoc (IMWA) Congress on Mine Water and the Environment, Czech Republic.
- Pépin, G. 2009. Évaluation du comportement géochimique de stériles potentiellement générateurs de drainage neutre contaminé à l'aide de cellules expérimentales in situ. Mémoire de Maîtrise, École Polytechnique de Montréal.
- Peregoedova, A. 2012. Étude expérimentale des propriétés hydrogéologiques des roches stériles à une échelle intermédiaire de laboratoire. Mémoire de Maîtrise, École Polytechnique de Montréal.
- Peregoedova, A., M. Aubertin, and B. Bussière. 2013. Laboratory measurement and prediction of the saturated hydraulic conductivity of mine waste rock. In Proceedings of the GeoMontreal 2013: Geoscience for Sustainability, Montreal, QC, Canada. 29 Sept.–3 Oct. 2013. Can. Geotech. Soc., Alliston, ON.
- Plante, B. 2010. Évaluation des principaux facteurs d'influence sur la prédiction du drainage neutre contaminé. Thèse de doctorat, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue.

- Plante, B., M. Benzaazoua, B. Bussière, M. Biesinger, and A. Pratt. 2010. Study of Ni sorption onto Tio mine waste rock surfaces. Applied Geochemistry 25:1830-1844.
- Plante, B., M. Benzaazoua, and B. Bussière. 2011a. Kinetic testing and sorption studies by modified weathering cells to characterize the potential to generate contaminated neutral drainage. Mine Water and the Environment 30:22-37.
- Plante, B., M. Benzaazoua, and B. Bussière. 2011b. Predicting geochemical behaviour of waste rock with low acid generating potential using laboratory kinetic tests. Mine Water and the Environment 30:2-21.
- Plante, B., B. Bussière, and M. Benzaazoua. 2014. Lab to field scale effects on contaminated neutral drainage prediction from the Tio mine waste rocks. Journal of Geochemical Exploration 137:37-47.
- Plante, B., G. Schudel, and M. Benzaazoua. 2020a. 1 Generation of Acid Mine Drainage. Hard Rock Mine Reclamation: From Prediction to Management of Acid Mine Drainage:1.
- Plante, B., G. Schudel, and M. Benzaazoua. 2020b. 2 Prediction of Acid Mine Drainage. Hard Rock Mine Reclamation: From Prediction to Management of Acid Mine Drainage:21.
- Poaty, B., B. Plante, B. Bussière, M. Benzaazoua, T. Pabst, M. Aubertin, V. Martin, M. Thériault, and P. Nadeau. 2018. Geochemical behavior of different waste rock configurations from the Lac Tio mine: comparison between column tests and experimental waste rock pile results. In Proceedings of Tailings and Mine Waste Conference, Keystone, CO. 30 Sept.–2 Oct. 2018. p. 811–821.
- Poaty, B., B. Plante, B. Bussière, M. Benzaazoua, and M. Thériault. 2021. A column study of the impact of layering the different Lac Tio mine waste rock lithologies on drainage water quality. Journal of Geochemical Exploration:106823
- Price, W. A. 2009. Prediction manual for drainage chemistry from sulphidic geologic materials. MEND report 1:579.
- Qian, T., L. Huo, and D. Zhao. 2010. Laboratory investigation into factors affecting performance of capillary barrier system in unsaturated soil. Water, Air, and Soil Pollution 206:295-306.

- Raymond, K. E., N. Seigneur, D. Su, B. Poaty, B. Plante, B. Bussière, and K. U. Mayer. 2020. Numerical modeling of a laboratory-scale waste rock pile featuring an engineered cover system. Minerals 10:652.
- Rietveld, H. M. 1993. The Rietveld Method. Oxford University Press, Oxford, UK.
- Ritchie, A., and J. Jambor. 2003. Oxidation and gas transport in piles of sulfidic material. Environmental Aspects of Mine Wastes, Short Course 31:73-94.
- Rohde, T. 2009. Instrumentation and Monitoring of a Large-scale, Potentially Contaminating Trial Waste Rock Dump. PhD Thesis, School of Engineering, University of Queensland.
- Rohde, T. K., and D. J. Williams. 2009. Early hydrological monitoring of Cadia's instrumented trial waste rock dump. In proceedings of the 8th International Conference on Acid Rock Drainage, Skellefteå, Sweden.
- Ross, B. 1990. The diversion capacity of capillary barriers. Water Resources Research 26:2625-2629.
- Salinas Villafane, O. R., T. Igarashi, M. Kurosawa, and T. Takase. 2012. Comparison of potentially toxic metals leaching from weathered rocks at a closed mine site between laboratory columns and field observation. Applied geochemistry, 27(12), pp.2271-2279.
- Sapsford, D. J., R. Bowell, M. Dey, and K. P. Williams. 2009. Humidity cell tests for the prediction of acid rock drainage. Minerals Engineering 22:25-36.
- Shahhosseini, M., F. D. Ardejani, and S. Z. Shafaei. 2016. Geochemistry and quality assessment of surface water in an active coal washing plant of northern iran. Environmental Engineering and Management Journal 15:741-754.
- Sinclair, S. 2014. Influence of freeze-thaw dynamics and spatial contributions on geochemical loading from a low sulfide waste-rock pile. Master's thesis, University of Waterloo.
- Sirjani, E., and M. Mahmoodabadi. 2014. Effects of sheet flow rate and slope gradient on sediment load. Arabian Journal of Geosciences 7:203-210.
- Smart, R. S. C., S. D. Miller, W. S. Stewart, Y. Rusdinar, R. E. Schumann, N. Kawashima, and J. Li. 2010. In situ calcite formation in limestone-saturated water leaching of acid rock waste. Science of the total environment 408:3392-3402.

- Smith, L., J. Marcoline, K. Wagner, C. Nichol, and R. Beckie. 2004. Hydrologic and geochemical transport processes in mine waste rock.in AGU Spring Meeting Abstracts, vol. 2004, pp. H11C-04.
- Smith, L. 2009. Building and characterizing low sulfide instrumented waste rock piles: Pile design and construction, particle size and sulfur characterization, and initial geochemical response. Master's thesis, University of Waterloo.
- Smith, L. J., M. C. Moncur, M. Neuner, M. Gupton, D. W. Blowes, L. Smith, and D. C. Sego. 2013. The Diavik Waste Rock Project: Design, construction, and instrumentation of field-scale experimental waste-rock piles. Applied Geochemistry 36:187-199.
- Sobek, A. A., W. Schuller, J. Freeman, and R. Smith. 1978. Field and laboratory methods applicable to overburden and minesoils. US Environmental Protection Agency. Environmental Protection Technology, EPA 600:2-78.
- Stefánsson, A. 2001. Dissolution of primary minerals of basalt in natural waters: I. Calculation of mineral solubilities from 0 C to 350 C. Chemical Geology 172:225-250.
- Stockwell, J., L. Smith, J. L. Jambor, and R. Beckie. 2006. The relationship between fluid flow and mineral weathering in heterogeneous unsaturated porous media: A physical and geochemical characterization of a waste-rock pile. Applied Geochemistry 21:1347-1361.
- Tami, D., H. Rahardjo, E.-C. Leong, and D. G. Fredlund. 2004a. Design and laboratory verification of a physical model of sloping capillary barrier. Canadian Geotechnical Journal 41:814-830.
- Tami, D., H. Rahardjo, E.-C. Leong, and D. G. Fredlund. 2004b. A physical model for sloping capillary barriers. Geotechnical Testing Journal 27:173-183.
- Taylor, J., B. Guthrie, N. Murphy, and J. Waters. 2006. Alkalinity producing cover materials for providing sustained improvement in water quality from waste rock piles. Pages 26-30 in Proceedings of the 7th international conference on acid rock drainage (ICARD), Mar 26-30, St. Louis, MO, USA.
- USEPA. 1999. MINTEQA2, metal speciation equilibrium model for surface and ground water, version 4.0. Center for Exposure Assessment Modelling, US EPA, Athens, GA, USA.

- Vriens, B., H. Peterson, L. Laurenzi, L. Smith, C. Aranda, K. U. Mayer, and R. D. Beckie. 2019. Long-term monitoring of waste-rock weathering at the Antamina mine, Peru. Chemosphere 215:858-869.
- Vriens, B., N. Seigneur, K. U. Mayer, and R. D. Beckie. 2020. Scale dependence of effective geochemical rates in weathering mine waste rock. Journal of Contaminant Hydrology 234:103699.
- White, A. F., and S. L. Brantley. 2003. The effect of time on the weathering of silicate minerals: why do weathering rates differ in the laboratory and field? Chemical Geology 202:479-506.
- Wilson, G. W., J. Miskolczi, A.-M. Dagenais, I. Levesque, Q. Smith, L. Lanteigne, L. Hulett, and D. Landriault. 2006. The application of blended waste rock and tailings for cover systems in mine waste management. Pages 2424-2438 in Proceedings of the 7th International Conference on Acid Rock Drainage (ICARD). American Society of Mining and Reclamation (ASMR), Lexington, USA.
- Wu, P., C. Tang, C. Liu, L. Zhu, T. Pei, and L. Feng. 2009. Geochemical distribution and removal of As, Fe, Mn and Al in a surface water system affected by acid mine drainage at a coalfield in Southwestern China. Environmental Geology 57:1457-1467.
- Wu, R., J. McKenzie, V. Martin, B. Bussière, M. Aubertin, and S. Broda. 2017. Monitoring soil moisture in an experimental waste rock pile using active fiber optic distributed temperature sensing. GSA annual meeting in Seattle, Washington, USA.
- Wu, A., S. Yin, B. Yang, J. Wang, and G. Qiu. 2007. Study on preferential flow in dump leaching of low-grade ores. Hydrometallurgy 87:124-132.
- Younger, P. L., S. A. Banwart, and R. S. Hedin. 2002. Mine water: hydrology, pollution, remediation. In Mine Water, pp. 127-270. Springer, Dordrecht, 2002.
- Zhang, Y., B. Cetin, W. Likos, and T. Edil. 2016. Impacts of pH on leaching potential of elements from MSW incineration fly ash. Fuel 184:815-825.
- Zinck, J., J. Fiset, and W. Griffith. 2010. Stability of treatment sludge in various disposal environments: a multi-year leaching study. Pages 5-9 in Proceedings of the IMWA Symposium, September 5–9, Sydney, NS, Canada, p 527–530.