

RESUME

Le remblayage de mines souterraines est devenu une pratique courante et intéressante pour ses nombreux avantages en termes d'exploitation des minerais (plus complète et plus souple) et de réduction des impacts environnementaux (enfouissement de rejets problématiques en surface). Parmi les différents types de remblais miniers, les remblais en pâte (RMPC) connaissent le plus de succès dans les mines modernes, sachant les nombreux avantages qu'ils confèrent en présence de rejets miniers sulfurés potentiellement réactifs. Ces derniers contiennent le plus souvent des sulfures de fer (pyrite et pyrrhotite) mais peuvent aussi contenir des sulfures associés à des métaux (ex. : cuivre, zinc, etc.) et des métalloïdes (ex. : arsenic). Dans cette étude, des RMPC à base de rejets miniers sulfurés arsénifères et des RMPC artificiellement dopés à l'As ont été confectionnés, afin d'évaluer le potentiel de stabilisation de l'As dans ces matrices cimentaires. La spéciation chimico-minéralogique de l'As ainsi que son comportement géochimique dans ces matrices a été étudié en détail. Des essais d'adsorption de l'As sur des hydrates cimentaires et une caractérisation de la microstructure des RMPC ont été réalisés pour apporter des informations complémentaires et conclure quant au potentiel et à l'intérêt de sa stabilisation dans les remblais.

MOTS-CLÉS : Remblais miniers cimentés, stabilisation de l'arsenic, techniques de lixiviation, spéciation

ABSTRACT

Backfilling of underground mines is now widely used in hard rock mines. It provides numerous benefits regarding ore recovery (more complete and more flexible ore recovery) and the reduction of environmental impacts (storage of problematic tailings). Cemented paste backfill (CPB) is the main method used in modern mines among the various types of mine backfills, because it provides benefits when used with reactive sulphide mine tailings. These tailings contain frequently iron sulphides (pyrite and pyrrhotite), and can also contain sulphides associated with metals (e.g. copper, zinc, etc.) or metalloids (e.g. arsenic). In the present study, CPB made of As-bearing sulphide tailings, and CPB artificially spiked with As have been prepared, in order to assess the potential for As to be stabilized in these matrices. The chemico-mineralogical speciation of As and the geochemical behaviour of As in these CPB have been studied in details. Moreover, As sorption tests on hydrated cementitious phases as well as a characterization of the microstructure of CPB samples have been carried out to bring complementary information and to conclude about the interest of As stabilization in CPB.

KEYWORDS : Cemented mine backfill, Arsenic stabilization, Leaching techniques, speciation.

Stabilisation de l'arsenic dans les remblais miniers en pâte cimentée

COUSSY Samuel,

BRGM, 3 Avenue C. Guillemin BP 36009, 45060 ORLEANS Cedex 2, France

BENZAOUA Mostafa, BUSSIÈRE Bruno

Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, 445, Boul. de l'université, Rouyn-Noranda, QC, Canada, J9X 5E4

BLANC Denise, MOSZKOWICZ Pierre

Laboratoire de Génie Civil et d'Ingénierie Environnementale, INSA de Lyon, Bât. Sadi Carnot - 9, rue de la physique, 69621 Villeurbanne cedex, France

Auteur/s à qui la correspondance devrait être adressée : s.coussy@brgm.fr

1. Introduction

Les rejets miniers sulfurés peuvent être à l'origine d'une pollution majeure affectant les aquifères et les cours d'eau. En effet, la réaction des eaux météoriques et de l'air ambiant avec les sulfures génère une libération de métaux et de métalloïdes dans les eaux de drainage, accompagnée selon les cas par une diminution importante du pH. On parle dans ce cas de drainage minier acide (DMA) ou de drainage neutre contaminé (DNC) lorsque le pH reste proche de la neutralité (Aubertin *et al.*, 2002 ; Lowson, 1982 ; MEND, 2004). Un des métalloïdes récurrents dans les rejets sulfurés et potentiellement problématique en cas de DMA ou de DNC est l'arsenic (As). Cet élément toxique est facilement mobilisable et peut contaminer cours d'eau et aquifères. Les seuils de potabilité étant relativement faibles pour l'As dans la plupart des pays ($10 \mu\text{g.l}^{-1}$), il est nécessaire de trouver un moyen de stabilisation/solidification adapté en milieu minier.

Le remblayage de mines souterraines est devenu une pratique courante et intéressante pour ses nombreux avantages en termes d'exploitation des minerais (plus complète et plus souple) et de réduction des impacts environnementaux (enfouissement de rejets problématiques en surface). Parmi les différents types de remblais miniers, les remblais en pâte (RMPC) connaissent le plus de succès dans les mines modernes, sachant les nombreux avantages qu'ils confèrent en présence de rejets miniers sulfurés potentiellement réactifs. La technique du RMPC consiste à acheminer les rejets miniers, mélangés avec de l'eau (typiquement 25 %) et une faible quantité de liant hydraulique (de 3 à 7 %) dans les galeries exploitées. Utilisé en premier lieu à des fins de support des terrains sous terre et de stockage des rejets dans les galeries de mine exploitées, le RMPC peut aussi constituer une technique de stabilisation/solidification de certains polluants comme l'As (Benzaazoua *et al.*, 2004 ; Coussy, 2011).

L'objectif de cette étude est de caractériser les mécanismes de stabilisation de l'As en RMPC qui restent encore mal connus, car peu de travaux ont été réalisés sur le comportement environnemental des remblais miniers sulfurés en pâte.

2. Matériels et méthodes

2.1. Préparation des échantillons

Divers échantillons de RMPC contaminés à l'As ont été synthétisés en laboratoire. Deux types de RMPC ont été fabriqués (Coussy, 2011) :

- Des échantillons de remblai fabriqués à partir d'un rejet minier arsénifère issus de la mine Casa Berardi (Aurizon Mines Ltd.) au Québec. Trois types de liants ont été employés dans ce cas : un ciment Portland type 10 (GU), un mélange de ciment Portland et de cendres volantes, et un mélange de ciment Portland et de laitier de haut-fourneau. Le rapport masse de liant/masse sèche totale a été fixé à 5 % pour toutes les préparations. Les échantillons de RMPC correspondants à ces trois types de liants ont été nommés respectivement OPC, OPC-FA et OPC-S.

- Des échantillons de remblai élaborés à partir de silice tamisée entre 106 et 32 μm pour simuler le rejet minier, et d'une eau de gâchage artificiellement enrichie en As et en autres éléments contaminants typiques d'une eau de DMA. L'utilisation de ce type d'échantillon de RMPC synthétique vise à simplifier le système : après la période de cure, la silice pourra être séparée de la fraction cimentaire plus fine par un tamisage à 25 μm des RMPC désagrégés (Coussy, 2011 ; Fried, 2006). Ainsi, la récupération de la fraction cimentaire du remblai permettra de réaliser des investigations minéralogiques sans interférences avec les particules de silice. Deux solutions contenant des concentrations croissantes en contaminants ont été employées, ainsi qu'une solution dépourvue de toute contamination (eau déionisée – solution 0). La composition chimique de ces solutions est répertoriée dans le Tableau 1.

Les liants qui ont été employés dans la fabrication des échantillons de RMPC synthétiques sont de deux sortes : un ciment Portland type 10 (GU), et un mélange de ciment Portland et de cendres volantes. Au total, 6 échantillons de RMPC synthétiques ont été élaborés (Tableau 2).

Tableau 1. Composition chimique des eaux de gâchage contaminées

Constituant	Solution 0 (mg.l ⁻¹)	Solution 1 (mg.l ⁻¹) ^a	Solution 2 (mg.l ⁻¹) ^a	Source
As _{tot}	0 (<LD)	78	360	Na ₂ HAsO ₄ ·7H ₂ O, NaAsO ₂
Fe ²⁺	0 (<LD)	1090	4400	FeSO ₄ ·7H ₂ O
Cu ²⁺	0 (<LD)	39	260	CuSO ₄
Zn ²⁺	0 (<LD)	44	190	ZnSO ₄ ·7H ₂ O
Ca ²⁺	0 (<LD)	250	190	CaSO ₄ ·2H ₂ O
Na ₊	0 (<LD)	38	160	Na ₂ HAsO ₄ ·7H ₂ O, NaAsO ₂
SO ₄ ²⁻	0 (<LD)	3060	13200	H ₂ SO ₄ (complément)
pH	-	2,09	1,28	-

^a Incertitude de $\pm 5\%$ sur ces résultats <LD : inférieur à la limite de détection de l'ICP-AES

Tableau 2. Caractéristiques des échantillons de RMPC synthétiques

Noms	Ciment Portland (% p/p)	Cendres volantes (% p/p)	Liant/masse sèche totale (%)	Solution de gâchage	Rapport massique solution de gâchage/liant
QC0	100	0	5,63	0 (blanc)	6,2
QC1	100	0	5,63	1	6,2
QC2	100	0	5,63	2	6,2
QF0	60	40	5,63	0 (blanc)	6,2
QF1	60	40	5,63	1	6,2
QF2	60	40	5,63	2	6,2

Après un temps de cure variable (échantillons placés en chambre humide à 22 °C), une caractérisation minéralogique a été menée sur les deux types d'échantillons de RMPC, synthétiques et à base de rejet de Casa Berardi. Divers tests de lixiviation ont aussi été menés sur ces matrices, afin d'évaluer le potentiel de relargage de l'As dans divers scénarios. Enfin, pour affiner les résultats des tests de lixiviation, une modélisation géochimique a parfois été réalisée. Les résultats de la caractérisation minéralogique, des tests de lixiviation et de la modélisation géochimique sont présentés en détail dans les travaux de thèse de Coussy (2011). Dans le présent document, nous nous bornerons à résumer ces résultats, et à présenter les résultats de travaux complémentaires, concernant notamment la caractérisation de la microstructure des remblais et son implication dans la stabilisation/solidification de l'As.

2.2. Protocole d'étude du comportement général de l'arsenic dans les RMPC

Le comportement de l'As dans les échantillons de RMPC a été évalué en utilisant trois tests de lixiviation complémentaires :

- L'analyse différentielle de neutralisation acide (dissolution sélective), adaptée aux matériaux cimentaires (Fried, 2006; Peyronnard *et al.*, 2009). Elle permet de comprendre la stabilité des phases cimentaires en fonction du pH ;
- Le test de lixiviation sur monolithe (TLM), qui permet d'analyser les mécanismes de relargage de l'As dans un bloc de RMPC (dissolution/précipitation, diffusion, front de lixiviation) ;
- Le test en mini-cellule d'altération, qui permet d'évaluer les taux de réactivité du rejet dans le temps et de déterminer le potentiel neutralisant de la matrice cimentaire, dans le cas du

remblai à base de rejet de Casa Berardi. Dans le cas du remblai synthétique, ce test n'est employé que pour déterminer les mécanismes de relargage de l'As dans le cas d'une altération poussée. La mise en œuvre expérimentale de ces tests est abondamment décrite dans les travaux de Coussy (2011), auxquels le lecteur pourra se référer.

2.3. Techniques de mesure de la microstructure des RMPC synthétiques

La microstructure de certains échantillons de RMPC a été évaluée par microporosimétrie. L'analyse a été effectuée sur des échantillons de RMPC synthétiques prélevés après 66 jours de cure. Étant donné la friabilité de ces spécimens, seulement trois échantillons (QF0, QC0 et QC1) ont pu être analysés en toute rigueur.

La porosité des autres spécimens de RMPC synthétiques a été estimée à partir des valeurs de porosité ouverte à l'eau. La porosité ouverte à l'eau a été évaluée à la fin du test de lixiviation sur monolithe, en pesant les monolithes humides (de volume connu), supposés saturés en fin de test (temps d'immersion de 64 jours). Après séchage, les échantillons ont été pesés à nouveau, afin de calculer la masse d'eau perdue, et donc le volume occupé par l'eau dans les monolithes (porosité ouverte à l'eau). La porosité ouverte à l'eau des échantillons de RMPC élaborés à partir du rejet de Casa Berardi a été évaluée de la même manière.

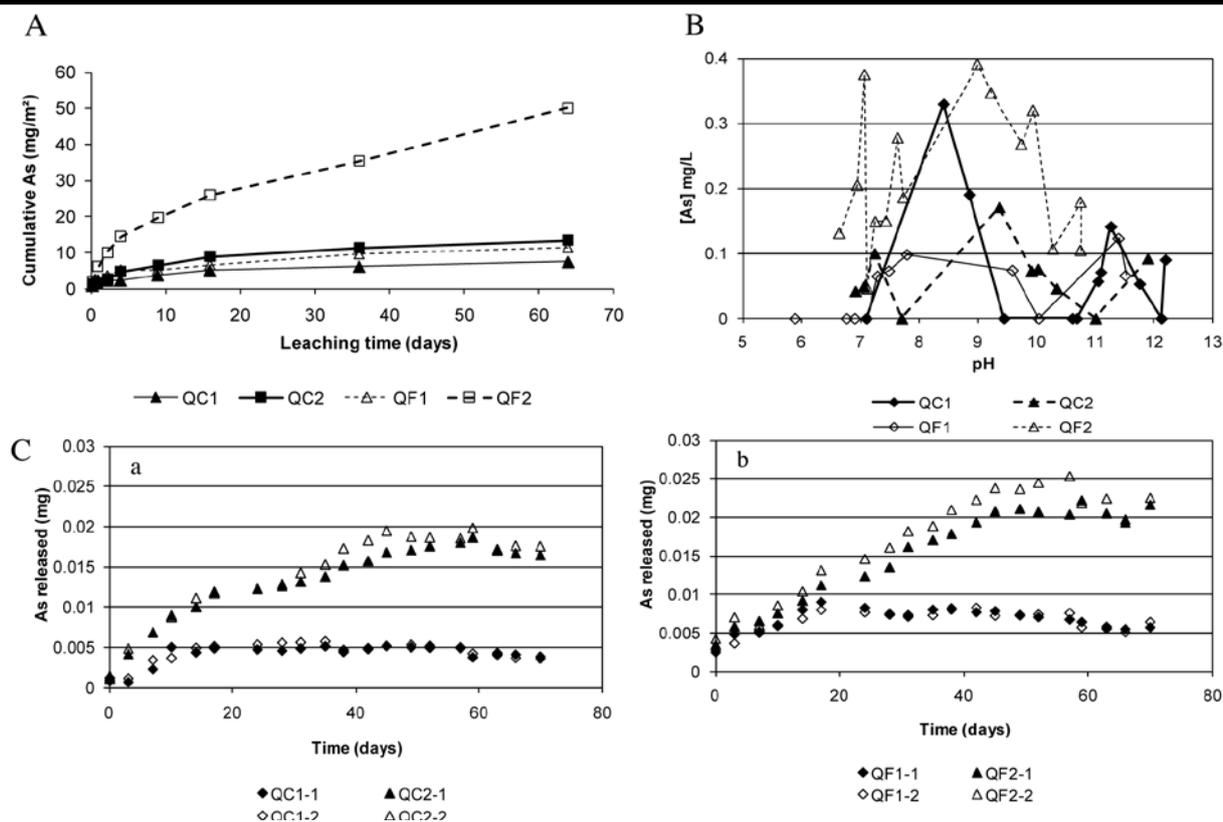
2.4. Essais triaxiaux de perméabilité

Les essais triaxiaux de perméabilité ont été réalisés à l'aide d'un perméamètre à charge variable et à paroi flexible, selon la norme ASTM D 5084 (ASTM, 1990).

Deux échantillons de RMPC synthétiques ont été élaborés, à partir de ciment Portland, de silice (pour simuler le rejet minier) et d'une solution de gâchage. Dans les deux échantillons, la fraction de silice inférieure à 32 μm n'a pas été éliminée, afin de se placer dans des conditions plus proches d'un remblai « réel ». Une des solutions de gâchage est de l'eau déionisée, l'autre une solution typique de DMA enrichie en As (même composition que la solution 2 – cf. Tableau 1). Le liant a été ajouté à hauteur de 5 % de la masse sèche totale et le pourcentage solide final est situé aux alentours de 76 %. Après malaxage, les échantillons ont été placés dans des moules de 4x8 po (soit 10.16 cm par 20.32 cm) et mis en cure durant une période de 14 jours en chambre humide (90 % d'humidité, 22 °C).

Deux essais ont été réalisés pour chaque échantillon, afin d'évaluer la répétabilité du test. Pour les échantillons contaminés, les premiers millilitres d'eau de percolation (eau des pores) ont été recueillis et analysée par ICP-AES, afin d'y détecter une éventuelle présence d'As.

Figure 1. Évolution du relargage de l'As au cours des tests de lixiviation pour les échantillons de RMPC synthétiques. A. Relargage cumulé d'As au cours du TLM; B. Relargage de l'As en fonction du pH au cours du test de dissolution sélective. C. Relargage d'As au cours du test en mini-cellules d'altération : a. échantillons à base de ciment Portland (en duplicata) et b. échantillons à base de cendres volantes.



3. Résultats et discussions

3.1. Comportement de l'arsenic dans les RMPC synthétiques (à base de silice)

Les résultats des tests de lixiviation dans le cas des RMPC synthétiques sont répertoriés dans la Figure 1. Tous les tests de lixiviation indiquent que l'As est plus mobile dans les matrices à base de cendres volantes (QF) que dans les RMPC à base de ciment Portland (QC). Le relargage d'As est maximal dans une gamme de pH de 8 à 10 pour tous les échantillons (Figure 1 B). Dans le cas des mini-cellules d'altération (Figure 1 C), la teneur en As relargué augmente régulièrement jusqu'à atteindre un palier après des temps de lixiviation variables en fonction des échantillons. Cependant, il faut noter que le relargage de l'As n'excède pas 5 % du contenu en As initial des RMPC dans tous les cas (cf. Coussy, 2011).

Lors de l'élaboration des mélanges de remblais synthétiques, l'excès d'eau de gâchage a été évacué par drainage. L'eau de drainage a été recueillie jusque 24h après le gâchage et a été analysée par ICP-AES. Les teneurs en As des solutions de drainage sont répertoriées dans le Tableau 3. Les teneurs en As des solutions de gâchage initiales sont aussi présentées à titre comparatif dans ce tableau.

Tableau 3. Analyse par ICP-AES de la teneur en arsenic des solutions de gâchage et des solutions drainées pour les échantillons QC et QF

Échantillon	As dans la solution de gâchage (mg.l ⁻¹) ^a	As récupéré dans la solution drainée (mg.l ⁻¹) ^b
QC1	80	0,6
QC2	360	0,3
QF1	80	0,3
QF2	360	0,3

^a Incertitude de ± 5 % sur ces résultats

^b Incertitude de ± 10 % sur ces résultats

La teneur en As dans les eaux de drainage est très faible pour tous les échantillons de RMPC. L'As est donc rapidement immobilisé au sein de ces matrices. La mise en contact des liants hydrauliques ou pouzzolaniques avec une solution contenant de l'As conduit à la formation rapide de phases secondaires porteuses d'As.

Après 38 jours de cure, la composition de l'eau des pores extraite des échantillons de RMPC synthétiques a été déterminée, par un test simple issu des travaux de Fried (2006). Ce test consiste à mélanger 10 g d'échantillon humide de RMPC désagrégé dans 100 ml d'eau déionisée.

Après 10 min d'agitation (éluteur rotatif, 16 rpm), le lixiviat est filtré puis analysé par ICP-AES. Les concentrations en As sont recalculées à partir des données de teneur en eau des échantillons, afin d'obtenir la valeur réelle contenue dans l'eau des pores. Le test a été réalisé en duplicata pour tous les échantillons.

Les résultats indiquent que la teneur en As dans l'eau des pores est très faible après 38 jours de cure, avec des valeurs inférieures à 0,2 mg.l⁻¹ pour les échantillons QC1, QC2 et QF1. Cependant, une teneur un peu plus importante (~ 1 mg.l⁻¹) a été détectée pour l'échantillon QF2. Il semble donc que la solubilité de l'As dans les matrices à base de cendres volantes soit un peu plus importante que dans les matrices à base de ciment Portland, ce qui va dans le sens des résultats des tests de lixiviation.

3.2. Comportement de l'arsenic dans les remblais provenant de la mine Casa Berardi

Les tests de lixiviation dans le cas des RMPC à base de rejet de Casa Berardi montrent que l'As est mieux immobilisé dans les matrices à base de ciment Portland et de laitier de haut-fourneau, plutôt que dans les matrices à base de cendres volantes (Figure 2). Cependant, les résultats de la dissolution sélective montrent que l'As est mieux retenu dans les matrices à base de cendres volantes lorsque le pH devient inférieur à 8 (Figure 3). Il semble qu'une quantité non négligeable d'As soit contenue dans l'eau des pores des remblais à base de cendres volantes, car les résultats d'essais en mini-cellules d'altération indiquent que la plus forte teneur en As est relarguée dès le premier cycle de lixiviation, lors de la mise en contact de la solution de lixiviation avec le matériau contenant encore de l'eau des pores résiduelle (Figure 3b).

Les résultats des mini-cellules d'altérations apportent aussi des informations supplémentaires : la réactivité des sulfures du rejet de concentrateur est tamponné par les minéraux neutralisants de la fraction cimentaire des RMPC, et influence par là le comportement de l'As, en inhibant la dissolution des sulfures porteurs d'As (cf. Coussy *et al.*, 2011).

3.3. Nature des phases porteuses d'arsenic

L'As peut donc former des composés spécifiques au sein de la fraction cimentaire des RMPC. Il est important de déterminer la nature de ces composés, pour pouvoir ensuite estimer leur stabilité. Les résultats des investigations minéralogiques sont détaillés dans l'étude menée par Coussy *et al.* (2012). Ils indiquent que l'As forme préférentiellement des arsénates de calcium de type guérinite ou ferraristite dans les RMPC à base de ciment Portland. Dans les RMPC à base de cendres volantes, ce sont plutôt des arsénates mixtes de calcium et de fer de type yukonite qui précipitent. En outre, certains composés minoritaires ont aussi été observés dans tous les

Figure 2. Évolution du relargage de l'As au cours des tests de lixiviation pour les échantillons de RMPC à base de rejet de Casa Berardi. A. Relargage cumulé d'As au cours du TLM; B. Relargage de l'As en fonction du pH au cours du test de dissolution sélective.

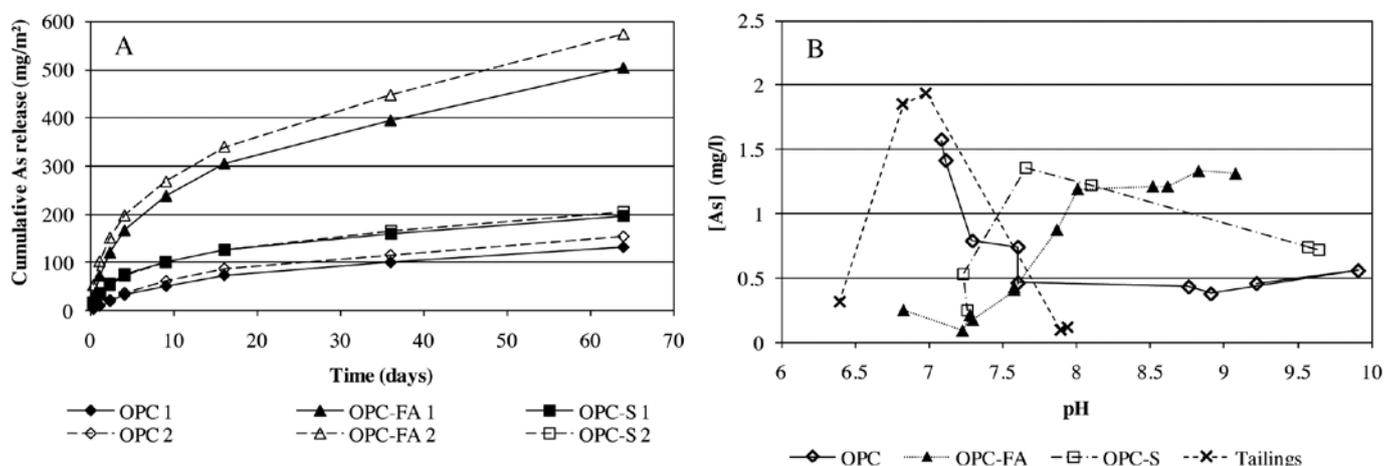
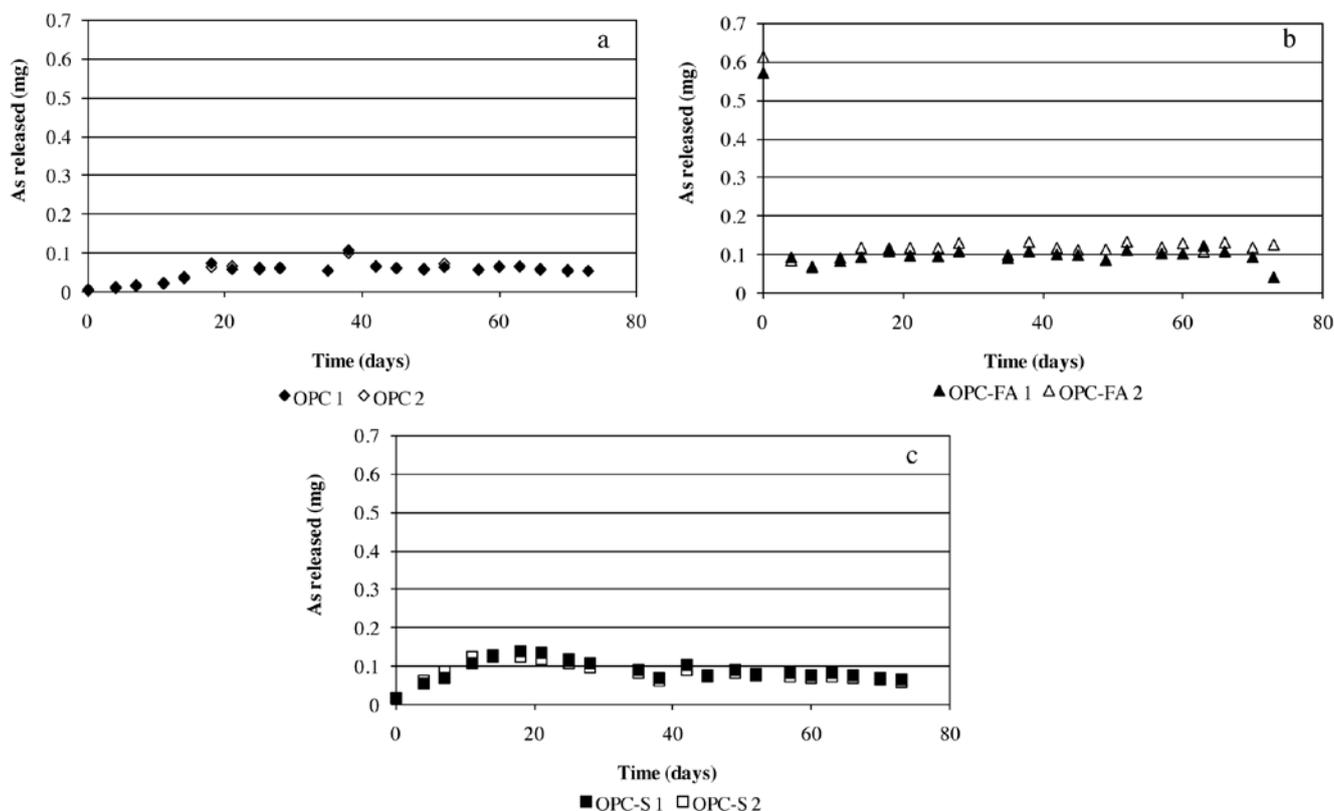


Figure 3. Évolution du relargage de l'As au cours des tests en mini-cellules d'altération pour les échantillons de RMPC à base de rejet de Casa Berardi. A. échantillons à base de ciment Portland, B. échantillons à base de cendres volantes et C échantillons à base de laitier de haut-fourneau.



types de RMPC, comme des arsénates de fer. L'As pourrait aussi réagir par adsorption sur la matrice cimentaire hydratée (Coussy, 2011). La confrontation des résultats des essais d'adsorption avec des modèles géochimiques indique que le potentiel de sorption est moins important dans le cas des matrices à base de cendres volantes.

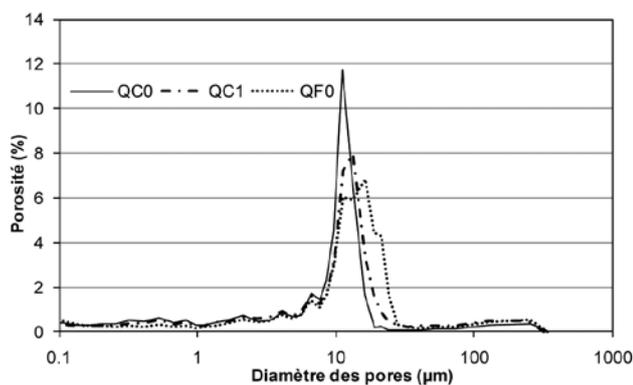
3.4. Évaluation du risque de relargage de l'arsenic dans l'environnement

Le risque de mise en solution de l'As dans l'eau des pores des matrices RMPC est donc directement lié aux conditions de solubilisation des phases arsénées. En revanche, les mécanismes

de transfert de l'As dans l'environnement (et notamment dans les aquifères, en condition de mine ennoyée) dépendent de la microstructure du remblai. La percolation éventuelle des eaux souterraines à travers les RMPC, qui peut là encore provoquer un transfert d'As dans les aquifères, est aussi directement influencée par la microstructure des RMPC.

La répartition des pores dans les échantillons QC0, QC1 et QF0 est présentée dans la Figure 4.

Figure 4. Répartition de la porosité dans les échantillons QC0, QC1 et QF0



Le pic principal d'intrusion a lieu à une pression correspondant à un diamètre-seuil situé autour de 10 - 12 µm pour les trois échantillons. Cette valeur est supérieure de plusieurs ordres de grandeurs aux valeurs de diamètre-seuil habituellement observées dans les RMPC (de 1 à 3 µm d'après Ouellet *et al.* 2007 et Yilmaz, 2010). En effet, la simulation du rejet minier a été effectuée par de la silice dont la fraction fine (< 32 µm) a été éliminée, contrairement aux études menées par Ouellet *et al.* (2007) et Yilmaz (2010). Il semble ainsi que la fraction fine des rejets soit à l'origine d'un diamètre des pores plus faible. Cependant, les valeurs de porosité totales obtenues (à savoir 43,9 % pour QC0, 45,5 % pour QC1, et 49,1 % pour QF0) sont du même ordre de grandeur que les valeurs habituellement observées en RMPC (cf. Benzaazoua, 1996 ; Ouellet *et al.*, 2007 ; Yilmaz *et al.*, 2009).

La Figure 4 indique par ailleurs que le diamètre-seuil des pores est un peu plus élevé pour l'échantillon à base de cendre volante (16,2 µm) que pour les échantillons à base de ciment Portland (11,2 µm pour QC0 et 13,3 µm pour QC1). Ainsi, la nature du liant utilisé a aussi une influence sur la microstructure

du remblai comme déjà démontré pour d'autres rejets miniers (e.g. Yilmaz *et al.*, 2009).

Les valeurs de porosité ouverte à l'eau pour tous les échantillons synthétiques ont été répertoriés dans le Tableau 4. Les valeurs de porosité ouverte à l'eau des échantillons QC0, QC1 et QF0 ne sont pas très éloignées des valeurs de porosité capillaire interconnectée de ces échantillons (porosité $\geq 0,3$ µm). Dans le cas du remblai à base de rejet de Casa Berardi, seule la porosité ouverte à l'eau a été évaluée. Les valeurs moyennes mesurées sont de 42,8 % pour les spécimens OPC, 44,1 % pour OPC-FA et 43,9 % pour OPC-S. Ces valeurs sont là encore situées dans la fourchette des porosités habituellement observées en RMPC (e.g. Ouellet *et al.*, 2007).

3.5. Résultats des essais triaxiaux de perméabilité

Des essais de perméabilité ont été réalisés sur des échantillons synthétiques de RMPC contaminés ou non en As, afin d'évaluer l'influence potentielle de la percolation des eaux de ruissellement à l'intérieur de ces RMPC simplifiés.

La répétabilité du test est bonne, sachant que la variation de la conductivité hydraulique ne dépasse pas 5 % entre deux essais identiques. Les valeurs de conductivité hydraulique mesurées sont de $4,2 \times 10^{-6}$ cm.s⁻¹ pour les échantillons non contaminés, et de $8,6 \times 10^{-7}$ cm.s⁻¹ pour les échantillons contaminés. Ces valeurs sont dans l'ordre de grandeur des valeurs observées pour des RMPC lors d'études antérieures (Godbout *et al.*, 2004; Yilmaz, 2010). La conductivité hydraulique est faible pour les deux échantillons, ce qui indique que le transport par advection de l'eau à travers la matrice est peu probable. En cas de ruissellement, l'eau suivra principalement les fractures et l'interface entre les parois des galeries et le remblai. La valeur de conductivité hydraulique est plus faible pour les échantillons de RMPC contaminés. Ce résultat pourrait s'expliquer par la présence de sulfates contribuant à la précipitation d'hydrates cimentaires secondaires plus abondants, qui peuvent combler les pores et diminuer la perméabilité du remblai. Cependant, les valeurs de porosité ouverte à l'eau ne diminuent pas dans le cas des RMPC les plus contaminés (Tableau 4). Mais d'après l'étude de microporosimétrie menée par Fried (2006) sur le même type d'échantillons, c'est le diamètre-seuil des pores qui diminue lorsque la concentration en sulfates dans les eaux de gâchage augmente. Dans notre étude, l'absence de résultats

Tableau 4. Porosité ouverte à l'eau et porosité capillaire interconnectée pour les échantillons de RMPC synthétiques

	QC0	QC1	QC2	QF0	QF1	QF2
Porosité ouverte à l'eau (%)	39,0	40,4	38,3	39,4	38,6	39,7
Porosité $\geq 0,3$ µm (%)	39,7	41,1	N/D	44,2	N/D	N/D

N/D : non déterminé

détaillés concernant l'évolution de la taille des pores dans les échantillons contaminés ne permet pas de conclure. En revanche, il semble que la concentration en sulfates dans les eaux de gâchage ait une influence notable sur la perméabilité du remblai. Le suivi de la concentration en As dans l'eau de percolation indique des valeurs toujours inférieures à la limite de détection de l'ICP-AES. Il semble donc que la teneur en As de l'eau des pores soit relativement faible, ce qui va dans le sens des observations préalables (cf. §3.1).

3.6. Mécanismes de transfert de l'AS dans l'environnement

En conditions de mine ennoyée, le relargage de l'As du remblai vers le milieu environnant (aquifère) s'effectue en plusieurs étapes (cf. Coussy, 2011) :

- dissolution des phases porteuses d'As à l'intérieur du remblai ;
- précipitation ou adsorption au sein de la matrice cimentaire d'une partie de l'As mis en solution dans l'eau des pores ;
- diffusion de l'As contenu dans l'eau des pores vers le milieu aqueux environnant (selon le gradient de concentration).

Un schéma conceptuel résumant les mécanismes de transfert de l'As des RMPC vers les aquifères est présenté en Figure 5.

Le relargage de l'As à travers la matrice de RMPC fera intervenir un mécanisme chimique (dissolution/précipitation et/ou adsorption de l'As) et un mécanisme de transport (par diffusion essentiellement, même si un lessivage de surface peut parfois se produire).

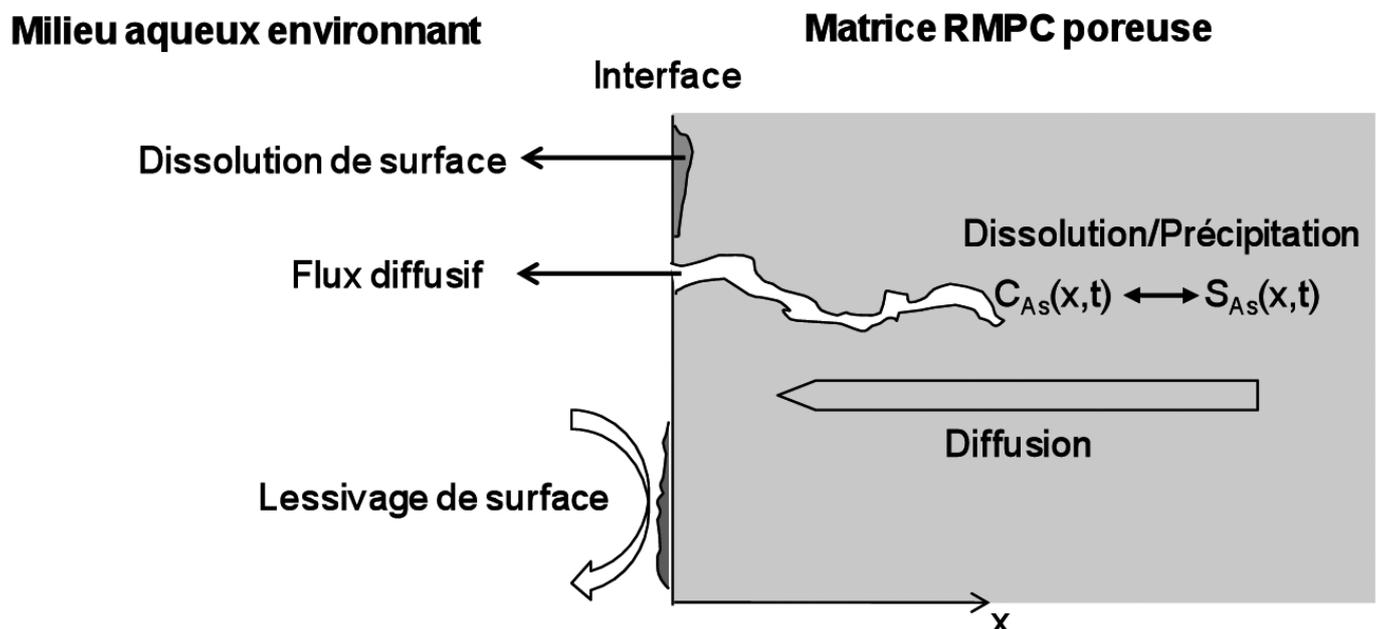
4. Conclusion

Les résultats de cette étude permettent d'obtenir des informations complémentaires sur les mécanismes de stabilisation de l'As dans les RMPC. Dans un premier temps, l'As contenu dans les solutions de gâchage réagit rapidement avec les matrices cimentaires pour former des phases peu solubles. L'As qui réagit précipite principalement sous forme d'arséniates de calcium, avec cependant la formation probable de composés secondaires, comme des arséniates de fer ou d'autres composés.

La porosité des RMPC présente des valeurs élevées, en général autour de 40 % pour tous les échantillons. Cependant, la nature du liant utilisé peut avoir une influence sur le diamètre-seuil des pores. Les essais triaxiaux ont permis d'accéder à la mesure de la conductivité hydraulique saturée dans des échantillons de remblai synthétiques. Cette valeur diminue quand la teneur en sulfates dans les eaux de gâchage augmente. Néanmoins, les faibles valeurs de conductivités hydrauliques obtenues, avec ou sans sulfates dans les eaux de gâchage, ne permettent pas la percolation régulière des eaux de drainage susceptible de lixivier l'As à l'intérieur du remblai.

Les conclusions de cette étude montrent que le RMPC pourrait être une technique efficace de stabilisation/solidification de l'As, à condition d'employer du ciment Portland ou un mélange à base de laitier de haut-fourneau, mais sans utiliser de cendres volantes. Des essais à plus grande échelle seraient cependant nécessaires avant de pouvoir utiliser ce procédé dans l'industrie.

Figure 5. Présentation schématique des mécanismes de transfert de l'As en RMPC (d'après Imyim, 2000). C_{As} : concentration de l'As sous forme mobile (soluble) dans l'eau des pores ; S_{As} : concentration de l'As sous forme immobile (précipité ou adsorbé).



Références bibliographiques

ASTM STANDARD D 5084 (1990). Standard test method for measurement of hydraulic conductivity of saturated porous materials using a flexible wall permeameter. ASTM International, West Conshohocken, PA, www.astm.org.

AUBERTIN, M., BUSSIÈRE, B., et BERNIER, L. (2002). Environnement et gestion des résidus miniers. CD, Presses Internationales Polytechnique, Montréal (Canada).

BENZA AZOUA, M. (1996). Caractérisation physico-chimique et minéralogique de produits miniers sulfures en vue de la réduction de leur toxicité et de leur valorisation. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nancy, France.

BENZA AZOUA, M., MARION, P., PICQUET, I., and BUSSIÈRE, B. (2004). The use of pastefill as a solidification and stabilization process for the control of acid mine drainage. *Minerals Engineering*, 17, pp : 233-243.

COUSSY, S., BENZA AZOUA, M., BLANC, D. MOSZKOWICZ, P. and BUSSIÈRE, B. (2011). Arsenic stability in arsenopyrite-rich cemented paste backfills: a leaching test-based assessment. *Journal of Hazardous Materials*, 185, pp : 1467-1476.

COUSSY, S. (2011). Stabilisation de rejets miniers pollués à l'arsenic à l'aide de sous-produits cimentaires : étude de l'influence de la cristalochimie sur le risque de mobilisation des polluants. Thèse de doctorat INSA de Lyon (France) – UQAT (QC, Canada), 282 p.

COUSSY, S., PAKTUNC, D., ROSE, J. and BENZA AZOUA, M. (2012). Arsenic speciation in cemented paste backfills and synthetic calcium-silicate-hydrates. *Minerals Engineering*, 39, pp : 51-61.

FRIED, E. (2006). Étude du phénomène d'hydratation et du comportement à la lixiviation des remblais miniers en pâte cimentés. Mémoire de maîtrise de l'université de Montréal, Québec, Canada, 187 p.

GODBOUT, J., BUSSIÈRE, B., BELEM, T. et BENZA AZOUA, M. (2004). Évolution des propriétés de rétention d'eau des remblais miniers cimentés en pâte durant le curage. In : The 57th Annual Canadian Geotechnical Conference and 5th joint IAHR-CNC-CGS Conference "Geo-engineering for society and its environment", Québec, Canada, October 24–26, pp : 15–22.

IMYIM, A. (2000). Méthodologie d'évaluation environnementale des déchets stabilisés/solidifiés par liants hydrauliques. Thèse de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France, 174 p.

LOWSON, R. T. (1982). Aqueous oxidation of pyrite by molecular oxygen. *Chemical Reviews*, 82, pp : 461-497.

MEND (2004). Review of water quality issues in neutral pH drainage: examples and emerging priorities for the mining industry in Canada. MEND Report 10.1. Prepared by Stantec Consulting Ltd. (Brampton). November 2004.

OUELLET, S., BUSSIÈRE, B., AUBERTIN, M. and BENZA AZOUA, M. (2007). Microstructural evolution of cemented paste backfill: Mercury intrusion porosimetry test results. *Cement and Concrete Research*, 37, pp : 1654-1665.

PEYRONNARD, O., BLANC, D., BENZA AZOUA, M. and MOSZKOWICZ, P. (2009). Study of mineralogy and leaching behavior of stabilized/solidified sludge using differential acid neutralizing analysis: Part I: Experimental study. *Cement and Concrete Research*, 39 (7), pp : 600-609.

YILMAZ, E., BENZA AZOUA, M., BELEM, T. and BUSSIÈRE, B. (2009). Effect of curing under pressure on compressive strength development of cemented paste backfill. *Minerals Engineering*, 22, pp : 772–785.

YILMAZ, E. (2010). Étude des propriétés hydrogéotechniques et microstructurales des remblais cimentés en pâte à l'aide de l'appareil CUAPS. Thèse de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Canada, 194 p.