

# Evaluation du comportement à long terme des déchets miniers par un essai de lessivage dynamique : application à différentes conditions physico-chimiques

Marguerite Munoz, Rabia Badreddine, Célia Brunel, Christine Destrigneville

## ► To cite this version:

Marguerite Munoz, Rabia Badreddine, Célia Brunel, Christine Destrigneville. Evaluation du comportement à long terme des déchets miniers par un essai de lessivage dynamique : application à différentes conditions physico-chimiques. 2. Rencontres nationales de la recherche sur les sites et sols pollués, Oct 2009, Paris, France. pp.NC. ineris-00973366

**HAL Id: ineris-00973366**

**<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-00973366>**

Submitted on 4 Apr 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Evaluation du comportement à long terme des déchets miniers par un essai de lessivage dynamique : application à différentes conditions physico-chimiques

**Marguerite Munoz<sup>(1)</sup>, Rabia Badreddine<sup>(2)</sup>, Célia Brunel<sup>(3)</sup>, Christine Destrigneville<sup>(1)</sup>**

<sup>(1)</sup> Université de Toulouse -UPS (SVT-OMP), CNRS, LMTG, 14 av. E. Belin - 31400 Toulouse  
mmunoz@lmtg.obs-mip.fr

<sup>(2)</sup> INERIS/DRC/COSM, Parc Technologique Alatta - 60550 Verneuil-en-Halatte

<sup>(3)</sup> Laboratoire départemental d'analyses d'Ille-et-Vilaine, La Madeleine - 35270 Combourg

## **Résumé**

### **1. Problématique et démarche**

Les différents processus de l'industrie minière tels que la prospection, l'extraction et le traitement génèrent d'importantes quantités de déchets miniers enrichis en métaux toxiques tels que Hg, As, Pb, Cd. Ils constituent des sources potentielles de contamination métallique pour les différents compartiments de l'environnement (sols, eaux superficielles et souterraines, atmosphère). L'évaluation du comportement à long terme des déchets miniers reste un défi pour les chercheurs. En effet, au delà des analyses de concentration totale en contaminant c'est leur mobilité qui doit être évaluée pour estimer leur impact potentiel sur l'environnement et aussi pour répondre aux questions d'aménagement des sites miniers et de gestion des déchets.

La migration des contaminants métalliques vers les eaux de surface se produit par l'intermédiaire des eaux de drainage minier dont la composition chimique est le résultat de différents processus physico-chimiques dans les déchets miniers. Dans cette étude, l'évaluation du comportement à long terme des déchets miniers a été menée expérimentalement par un essai de lessivage dynamique en utilisant un extracteur de Soxhlet modifié précédemment conçu pour une simulation accélérée d'altération naturelle de roche. Les résultats obtenus expérimentalement ont été comparés aux résultats obtenus sur le site pour la validation de cette méthode.

Cette approche a été appliquée aux déchets de traitement des minerais de Pb-Zn de deux sites similaires par les caractéristiques physiques des déchets (granulométrie, perméabilité) mais distincts par leur composition minéralogique et leur mode de stockage.

### **2. Résultats**

Le site minier de Bentaillou est situé sur le bassin versant amont du Lez dans les Pyrénées. Le minerai sulfuré a été traité par hydrogravimétrie puis par flottation, produisant plus de 0,41 Mt de déchets entreposés en quatre terrils de 10 à 26 m de hauteur sur les berges du Lez. En raison de leur forte perméabilité, ces déchets sont bien oxygénés. Pb et Zn sont les métaux dominants avec des concentrations respectives de 7,5 g.kg<sup>-1</sup> et 18,3 g.kg<sup>-1</sup>. Par ailleurs, la concentration en Cd s'élève à 53 mg.kg<sup>-1</sup> et celle du soufre à 0.14 %.

Le district minier de Saint-Salvy est situé à 70 km au nord-est de Toulouse, dans le sud ouest de la France. Le traitement du minerai sulfuré par flottation a généré 4 Mt de déchets entreposés dans une digue de stockage d'environ 2 hectares de surface et 40 m de hauteur et confiné par une couverture argileuse. Ce mode de stockage limite l'oxygénation des déchets. Parmi les métaux, le Zn est dominant avec une concentration de 18.6 g.kg<sup>-1</sup> tandis que les concentrations en Pb et Cd atteignent seulement 550 et 50 mg.kg<sup>-1</sup> respectivement. La concentration en soufre s'élève à 1.04 %.

L'étude minéralogique et géochimique de ces deux types de déchets a mis en évidence que la sphalerite et la galène libèrent des métaux toxiques (Zn, Cd et Pb) dans les deux sites. La pyrrhotite dans Bentaillou et la pyrite à Saint-Salvy qui s'oxydent sont la principale source d'acidité. La présence de minéraux carbonatés, calcite à Bentaillou et sidérite à Saint-Salvy, tamponne le pH et favorise la rétention de métaux par coprécipitation de cérusite et smithsonite à Bentaillou ou par adsorption sur des oxy-hydroxydes de fer à Saint-Salvy.

Les eaux de drainage minier de Bentaillou sont légèrement basiques (pH= 7,2 – 7,5) et le Eh (450 mV) reflète des conditions oxydantes dans les terrils. Le débit moyen est de  $10.3 \text{ m}^3 \cdot \text{jour}^{-1}$ . La concentration en  $\text{SO}_4^{2-}$  est de  $235 \mu\text{moles L}^{-1}$ .

Les eaux de drainage minier de Saint-Salvy sont légèrement acides (pH= 6,3 – 6,5) et le potentiel redox (Eh= 200-244 mV) reflète des conditions légèrement réductrices dans la digue de stockage. Le débit moyen est de  $360.3 \text{ m}^3 \cdot \text{jour}^{-1}$ . La concentration en  $\text{SO}_4^{2-}$  est de  $6,5 \text{ mmoles L}^{-1}$ .

La composition chimique des eaux de drainage minier reflète les réactions mises en jeu et, avec la mesure du débit, permet de calculer la durée d'inertisation des déchets. Cette durée d'inertisation est définie comme étant la durée nécessaire à l'oxydation totale des minéraux sulfurés qui sont la source de la contamination métallique. Cette estimation est basée sur le flux de sulfate exporté par les eaux de drainage. En admettant que le taux de relargage de sulfate est constant la durée d'inertisation (T) des déchets est déterminée à partir de l'équation :

$$T_{\text{inertisation}} = ([S_{\text{total}}] \cdot M_{\text{déchets}}) / ([\text{SO}_4^{2-}] \cdot \text{Débit})$$

$[S_{\text{total}}]$  : concentration totale en soufre dans les déchets miniers drainés

$M_{\text{déchets}}$  : masse des déchets miniers drainés

$[\text{SO}_4^{2-}]$  : concentration en sulfate des eaux de drainage minier

Débit : débit moyen des eaux de drainage.

Les durées d'inertisation estimées sont de 7 500 ans pour Bentaillou et 1 400 ans pour Saint-Salvy, bien qu'à la fois le volume et la concentration en soufre soient dix fois plus élevés à Saint-Salvy qu'à Bentaillou.

Les essais expérimentaux par extracteur de Soxhlet modifié ont été menés pendant 62 jours et 84 jours pour les échantillons de Bentaillou et de Saint-Salvy respectivement.

En se basant sur le flux de sulfate libéré par cette méthode, le temps équivalent calculé à partir de la quantité d'eau de lessivage utilisée rapportée à la pluviométrie sur le site et à partir de la concentration en soufre des déchets, la durée d'inertisation équivalente est 18 500 ans et 14 000 ans pour Bentaillou et Saint-Salvy, respectivement.

Ces valeurs expérimentales sont plus élevées que celles obtenues avec les données de terrain et montrent qu'une moindre quantité de soufre est lessivée expérimentalement. Cependant, pour Bentaillou, l'écart est moindre entre les valeurs obtenues par les deux approches tandis que pour Saint-Salvy l'estimation par expérimentation est dix fois plus élevée que celle obtenue à partir des données de terrain. Ces résultats indiquent que la modélisation expérimentale par extracteur de Soxhlet modifié s'adresse préférentiellement à la prédiction de l'altération des sulfures de déchets en conditions oxydantes. Dans le cas de Saint-Salvy, les conditions expérimentales très oxydantes par rapport à celles du site induisent une précipitation d'oxy-hydroxydes de fer plus importante que dans la digue qui limitent par effet de coating la réactivité des sulfures. La durée d'inertisation obtenue par Soxhlet modifié est alors surestimée.

### 3. Conclusion et perspectives

Les conditions oxydantes pendant les cycles d'extraction au laboratoire sont conformes avec les conditions redox dans les terrils sur le site de Bentaillou tandis que les conditions plus réductrices de la digue de Saint-Salvy ne sont pas bien reproduites par le protocole expérimental. Cependant, une adaptation du protocole à des conditions réductrices peut être envisagée en injectant une solution réductrice dans l'extracteur.

Ainsi, cette approche expérimentale dynamique par extracteur de Soxhlet modifié, associée à une caractérisation minéralogique et géochimique serait un bon outil pour évaluer le comportement à long terme des déchets miniers et contribuer à l'orientation pour la gestion des sites miniers en fin d'exploitation.

## 1. PROBLEMATIQUE ET DEMARCHE

Les différents processus de l'industrie minière tels que la prospection, l'extraction et le traitement génèrent d'importantes quantités de déchets miniers enrichis en métaux toxiques tels que Hg, As, Pb, Cd. Ils constituent des sources potentielles de contamination métallique pour les différents compartiments de l'environnement (sols, eaux superficielles et souterraines, atmosphère). L'évaluation du comportement à long terme des déchets miniers reste un défi pour les chercheurs. En effet, au delà des analyses de concentration totale en contaminant c'est leur mobilité qui doit être évaluée pour estimer leur impact potentiel sur l'environnement et aussi pour répondre aux questions d'aménagement des sites miniers et de gestion des déchets.

La migration des contaminants métalliques vers les eaux de surface se produit par l'intermédiaire des eaux de drainage minier dont la composition chimique est le résultat de différents processus physico-chimiques dans les déchets miniers. Dans cette étude, l'évaluation du comportement à long terme des déchets miniers a été menée expérimentalement par un essai de lessivage dynamique en utilisant un extracteur de Soxhlet modifié précédemment conçu pour une simulation accélérée d'altération naturelle de roche [1] et plus récemment utilisé pour identifier les produits d'altération de matériaux sulfurés [2]. Les résultats obtenus expérimentalement ont été comparés aux résultats obtenus sur le site pour la validation de cette méthode.

Cette approche a été appliquée aux déchets de traitement des minerais de Pb-Zn de deux sites similaires par les caractéristiques physiques des déchets (granulométrie, perméabilité) mais distincts par leur composition minéralogique et leur mode de stockage.

## 2. MATERIEL ET METHODES

Après filtration des eaux de drainage, l'alcalinité et le pH sont mesurés sur le site. Le pH est mesuré grâce à une électrode Metler Toledo à température ambiante et après équilibre avec la solution. L'alcalinité est mesurée par titration avec HCl en utilisant un titrateur 716 DMS Titrino.

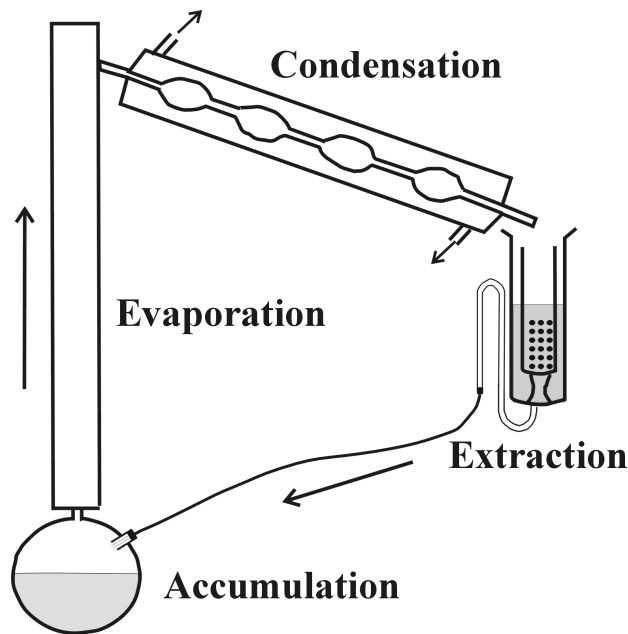
Les anions, Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> et SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, sont mesurés par chromatographie ionique (HPLC, Dionex 2000i). La justesse des mesures est vérifiée en dosant plusieurs standards de calibration dans les séries d'échantillons.

Les teneurs en cations, Mg<sup>++</sup>, Ca<sup>++</sup>, Na<sup>+</sup> et K<sup>+</sup>, sont déterminées par absorption atomique (Perkin Elmer 5100PC). Pour chaque série et chaque élément dosé, la justesse et la reproductibilité des mesures est vérifiée en analysant des standards internationaux d'eaux de rivière (BMOOS, SLRS4).

Les teneurs en éléments traces et en métaux ont été déterminées par ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass-Spectrometer, Perkin Elmer, Elan 6000). Les mesures acquises par ICP-MS sur les échantillons aqueux sont validées en analysant deux standards internationaux d'eau de rivière, SLRS4 et SRM1640.

Un échantillon moyenné de résidus de traitement a été altéré expérimentalement à l'INERIS en utilisant un extracteur à eau par essai de Soxhlet modifié.

L'essai de Soxhlet modifié permet de lessiver en continu un échantillon en alternant des périodes d'immersion et d'émersion des échantillons. Ces cycles miment, en temps réduit, les périodes de pluie et de drainage et par conséquent accélèrent les processus d'altération. Dans un ballon, l'eau distillée est amenée à ébullition (Figure 1). La vapeur générée est condensée dans un système de refroidissement - condensation. Puis, l'eau nouvellement formée tombe dans un extracteur qui contient l'échantillon et est équipé d'un siphon. Dans l'extracteur, le niveau d'eau monte peu à peu et l'échantillon est progressivement immergé. Quand le niveau d'eau atteint celui du siphon, la solution est vidangée vers le ballon, dans lequel les éléments extraits sont concentrés. Un nouveau cycle commence alors.



**Figure 1 – Schéma de l'extracteur de Soxhlet**

L'altération des résidus de traitement a été réalisée en plaçant l'échantillon dans un manchon de cellulose, lui-même introduit dans l'extracteur. Le débit de l'eau a été fixé à 250 mL.h<sup>-1</sup>. Dans ces conditions, un cycle dure 40 minutes environ.

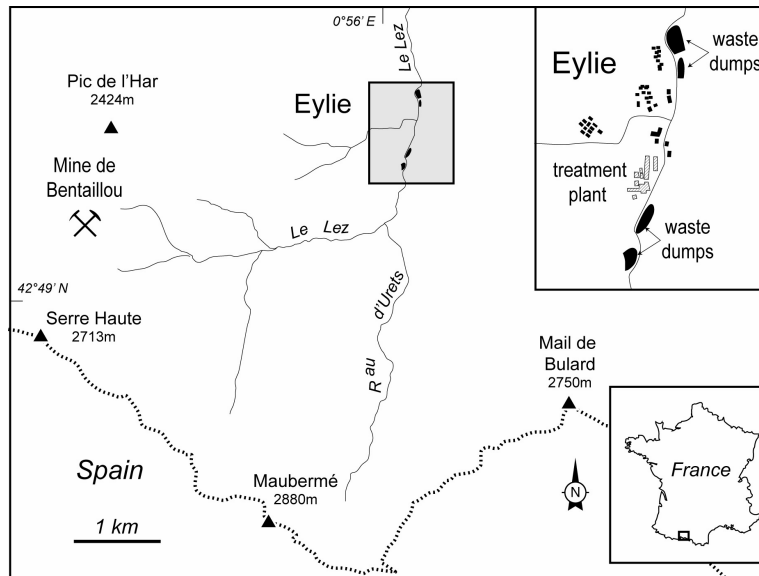
L'essai de Soxhlet modifié a été mené pendant 62 jours pour l'échantillon de Bentaillou et 84 jours pour celui de Saint-Salvy. Les solutions du ballon et de l'extracteur ont été échantillonnées à 11 échéances. A chaque prélèvement, le volume de solution recueillie dans le ballon est précisément mesuré. La solution est renouvelée par de l'eau osmosée. Le pH, le Eh et la conductivité sont mesurés dans les échantillons provenant de l'extracteur. Les solutions du ballon servent à analyser les teneurs en SO<sub>4</sub>, Ca, Mg, K, Pb, Cd, Zn et Al. Le volume de la solution du ballon et ses concentrations permettent de calculer la quantité d'éléments relargués au cours du temps. Comparer la quantité totale d'eau ayant percolé à travers l'échantillon à la pluviométrie annuelle permet d'évaluer le temps réel qu'il faudrait in situ pour aboutir au degré d'altération obtenu expérimentalement (temps équivalent) [1], [3].

### **3. CARACTERISATION DES DECHETS MINIERES DE BENTAILLOU ET DE SAINT-SALVY**

Le site minier de Bentaillou est situé sur le bassin versant amont du Lez dans les Pyrénées (Figure 2).

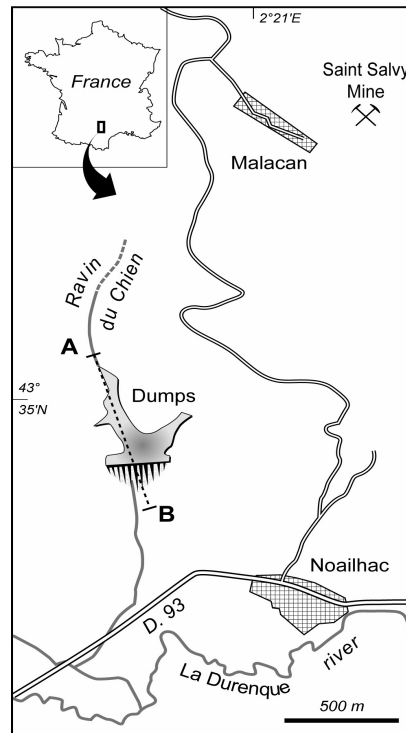
Le minerai sulfuré a été traité par hydrogravimétrie puis par flottation, produisant plus de 0,41 Mt de déchets entreposés en quatre terrils de 10 à 26 m de hauteur sur les berges du Lez. Ces déchets miniers sont composés d'un matériel silto-gréseux avec une majorité de grains inférieurs à 0,2µm. Le coefficient de perméabilité mesuré in situ ( $K=1.6 \times 10^{-2}$  cm.s<sup>-1</sup>) est élevé et implique une bonne oxygénation des déchets [4].

Pb et Zn sont les métaux dominants avec des concentrations respectives de 7,5 g.kg<sup>-1</sup> et 18,3 g.kg<sup>-1</sup>. Par ailleurs, la concentration en Cd s'élève à 53 mg.kg<sup>-1</sup> et celle du soufre à 0.14 % [4].



**Figure 2 - Localisation des terrils de déchets de traitement du minerai de Bentaillou (Ariège)**

Le district minier de Saint-Salvy est situé à 70 km au nord-est de Toulouse, dans le sud ouest de la France (Figure 3).



**Figure 3 - Localisation de la digue de stockage des déchets de traitement du minerai de Saint-Salvy (Tarn).**

Le traitement du minerai sulfuré par flottation a généré 4 Mt de déchets de faible granulométrie (inférieurs à  $0.2\mu\text{m}$ ), entreposés dans une digue de stockage d'environ 2 hectares de surface et 40 m de hauteur et confiné par une couverture argileuse. Ce mode de stockage limite l'oxygénation des déchets malgré un coefficient de ( $K=1.5 \times 10^{-2} \text{ cm.s}^{-1}$ ) élevé. Parmi les métaux, le Zn est dominant avec une concentration de  $18.6 \text{ g.kg}^{-1}$  tandis que les concentrations en Pb et Cd atteignent seulement 550 et  $50 \text{ mg.kg}^{-1}$  respectivement. La concentration en soufre s'élève à 1.04 % [5].

L'étude minéralogique et géochimique de ces deux types de déchets a mis en évidence que la sphalérite (ZnS) et la galène (PbS) libèrent des métaux toxiques (Zn, Cd et Pb) dans les deux sites. La pyrrhotite (Fe<sub>(1-x)</sub>S) dans Bentaillou et la pyrite (FeS<sub>2</sub>) à Saint-Salvy qui s'oxydent sont la principale source d'acidité. La présence de minéraux carbonatés, calcite (CaCO<sub>3</sub>) à Bentaillou et sidérite (FeCO<sub>3</sub>) à Saint-Salvy, tamponne le pH et favorise la rétention de métaux par coprécipitation de cérusite (PbCO<sub>3</sub>) et smithsonite (ZnCO<sub>3</sub>) à Bentaillou ou par adsorption sur des oxy-hydroxydes de fer à Saint-Salvy [4], [5].

#### 4. CARACTERISATION DES EAUX DE DRAINAGE DE BENTAILLOU ET DE SAINT-SALVY

Les eaux de drainage minier de Bentaillou sont légèrement basiques (pH= 7,2 – 7,5) et le Eh (450 mV) reflète des conditions oxydantes dans les terrils. Le débit moyen est de 10.3 m<sup>3</sup>.jour<sup>-1</sup>. La concentration en SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> est de 235 µmolesL<sup>-1</sup> (Table 1).

	<i>pH</i>	<i>Eh</i>	<i>Mg</i>	<i>Ca</i>	<i>Na</i>	<i>K</i>	<i>Cl</i>	<i>NO<sub>3</sub></i>	<i>SO<sub>4</sub></i>	<i>HCO<sub>3</sub></i>	<i>TDS</i>	<i>Fe</i>	<i>Mn</i>	<i>Zn</i>	<i>Pb</i>	<i>Cd</i>
<i>Date</i>	V		µmol.l <sup>-1</sup>									mg.l <sup>-1</sup>	µg.l <sup>-1</sup>			
01 - 2002	7.5	0.45	56	631	52	18	26	10	197	1010	111	-	-	97.2	5.1	0.46
02 - 2002	7.4	0.45	69	540	67	15	21	6	320	705	100	156	0.29	270	16.8	1.83
03 - 2002	7.5	0.45	77	563	65	16	20	5	356	688	104	139	1.90	34.1	0.11	0.21
04 - 2002	7.2	0.45	58	596	45	15	17	12	230	959	109	92	0.53	155	4.8	0.61
06 - 2002	7.3	0.45	71	584	45	15	17	8	176	1010	106	149	0.31	121	4.3	0.46
07 - 2003	7.4	0.45	53	683	51	22	16	10	176	1191	122	-	0.26	187	8.7	0.82
09 - 2003	7.3	0.45	59	727	50	25	18	15	200	1278	132	-	1.75	262	21.3	1.34
12 - 2003	7.4	0.45	56	688	59	19	16	18	200	1050	116	-	0.34	163	11.6	0.77
02 - 2004	7.5	0.45	65	588	54	16	21	7	263	883	107	36	0.47	192	7.6	0.86
<i>Moyenne</i>	7.4	0.45	63	618	53	18	19	11	235	975	112	-	0.73	164	8.9	0.82

**Table 1 - Paramètres physico-chimiques des eaux de drainage des déchets miniers de Bentaillou**

Les eaux de drainage minier de Saint-Salvy sont légèrement acides (pH= 6,3 – 6,5) et le potentiel redox (Eh= 200-244 mV) reflète des conditions légèrement réductrices dans la digue de stockage. Le débit moyen est de 360.3 m<sup>3</sup>.jour<sup>-1</sup>. La concentration en SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> est de 6,5 mmoles L<sup>-1</sup>(Table 2).

	<i>pH</i>	<i>Eh</i>	<i>Mg</i>	<i>Ca</i>	<i>Na</i>	<i>K</i>	<i>Cl</i>	<i>NO<sub>3</sub></i>	<i>SO<sub>4</sub></i>	<i>HCO<sub>3</sub></i>	<i>Fe</i>	<i>Mn</i>	<i>TDS</i>	<i>Zn</i>	<i>Pb</i>	<i>Cd</i>
<i>Jour</i>	V		mmol.l <sup>-1</sup>									mg.l <sup>-1</sup>	µg.l <sup>-1</sup>			
10 - 1998	6.3	0.24	1.6	6.4	0.89	0.69	0.20	0.28	7.9	2.1	0.41	0.19	1264	1870	1.36	4.6
03 - 1999	6.5	0.22	1.2	5.1	0.65	0.57	0.15	0.17	6.0	2.2	0.34	0.16	1013	1918	-	2.3
09 - 1999	6.4	0.25	1.3	6.5	0.63	0.65	0.17	0.14	7.4	2.8	0.23	0.14	1242	2915	0.17	10.1
10 - 1999	6.4	0.24	1.3	6.3	0.61	0.65	0.17	0.34	7.0	2.8	0.24	0.15	1191	3307	0.67	4.9
01 - 2000	6.4	0.23	1.1	5.3	0.52	0.52	0.16	0.23	6.0	2.7	0.26	0.14	1044	3268	0.45	4.9
<i>Moyenne</i>	6.4	0.24	1.3	5.9	0.66	0.61	0.17	0.23	6.9	2.5	0.30	0.16	1151	2656	0.66	5.4

**Table 2 - Paramètres physico-chimiques des eaux de drainage des déchets miniers de Saint-Salvy**

La composition chimique des eaux de drainage minier reflète les réactions mises en jeu et, avec la mesure du débit, permet de calculer la durée d'inertisation des sulfures des déchets. Cette durée d'inertisation est définie comme étant la durée nécessaire à l'oxydation totale des minéraux sulfurés qui sont la source de la contamination métallique. Cette estimation est basée sur le flux de sulfate exporté par les eaux de drainage.

En admettant que le taux de relargage de sulfate est constant la durée d'inertisation (T) des déchets est déterminée à partir de l'équation :

$$T_{\text{inertisation}} = ([S_{\text{total}}] \cdot M_{\text{déchets}}) / ([SO_4^{2-}] \cdot \text{Débit})$$

[S<sub>total</sub>] : concentration totale en soufre dans les déchets miniers drainés

M<sub>déchets</sub> : masse des déchets miniers drainés

[SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] : concentration en sulfate des eaux de drainage minier

Débit : débit moyen des eaux de drainage.

Les durées d'inertisation des sulfures estimées sont de 7 500 ans pour Bentaillou et 1 400 ans pour Saint-Salvy, bien qu'à la fois le volume et la concentration en soufre soient dix fois plus élevés à Saint-Salvy qu'à Bentaillou.

## 5. LESSIVAGE DYNAMIQUE DES DECHETS MINIERES PAR EXTRACTEUR DE SOXHLET

Les essais expérimentaux par extracteur de Soxhlet modifié ont été menés pendant 62 jours et 84 jours pour les échantillons de Bentaillou et de Saint-Salvy respectivement (Table 3).

<i>Bentaillou</i>						<i>Saint-Salvy</i>					
<i>Jour</i>	<i>pH</i>	<i>μmol.kg<sup>-1</sup></i>				<i>Jour</i>	<i>pH</i>	<i>μmol.kg<sup>-1</sup></i>			
		S	Pb	Cd	Zn			S	Pb	Cd	Zn
1	9.3	816	2.8	0.00	1.34	1	7.1	9,100	0.00	2.5	222
3	8.3	132	0.00	0.00	1.62	2	6.8	1,094	0.00	9.7	931
6	7.4	49.0	1.4	0.00	3.15	3	6.7	458	0.00	23.0	2,110
13	7.6	200	4.1	1.07	20.2	7	6.7	455	0.00	25.1	3,379
20	7.9	85.4	2.1	0.00	1.64	14	-	299	0.00	25.9	2,278
27	7.1	55.2	5.8	0.80	8.41	21	6.6	290	0.00	11.0	210
34	7.4	53.1	0.00	0.00	0.25	28	5.3	297	0.00	33.3	3,807
41	7.3	55.2	3.33	0.00	2.10	42	6.5	603	0.00	30.3	3,716
48	7.5	52.1	27.0	1.96	13.6	56	7.2	580	0.72	20.4	3,028
55	7.4	74.0	4.34	1.07	2.17	70	6.9	778	0.00	21.6	4,204
62	8.3	56.3	13.03	1.87	10.3	84	6.8	704	70.6	14.9	3,838
<i>Total</i>		1,600	63.9	6.8	6.7			14,683	71.32	218	27,723
<i>% du déchet</i>		3.6	1.8	1.4	0.2			4.5	2.7	46	9.7

**Table 3 - Composition des eaux de lessivage par soxhlet sur les échantillons de déchets miniers de Bentaillou et de Saint-Salvy.**

En se basant sur le flux de sulfate libéré par cette méthode, le temps équivalent calculé à partir de la quantité d'eau de lessivage utilisée rapportée à la pluviométrie sur le site et à partir de la concentration en soufre des déchets, la durée d'inertisation équivalente est 18 500 ans et 14 000 ans pour Bentaillou et Saint-Salvy, respectivement.

Ces valeurs expérimentales sont plus élevées que celles obtenues avec les données de terrain et montrent qu'une moindre quantité de soufre est lessivée expérimentalement. Cependant, pour Bentaillou, l'écart est moindre entre les valeurs obtenues par les deux approches tandis que pour



Saint-Salvy l'estimation par expérimentation est dix fois plus élevée que celle obtenue à partir des données de terrain. Ces résultats indiquent que la modélisation expérimentale par extracteur de Soxhlet modifié s'adresse préférentiellement à la prédiction de l'altération des sulfures de déchets en conditions oxydantes. Dans le cas de Saint-Salvy, les conditions expérimentales très oxydantes par rapport à celles du site induisent une précipitation d'oxy-hydroxydes de fer plus importante que dans la digue qui limitent par effet de coating la réactivité des sulfures. La durée d'inertisation obtenue par Soxhlet modifié est alors surestimée.

## **6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

Les conditions oxydantes pendant les cycles d'extraction au laboratoire sont conformes avec les conditions redox dans les terrils sur le site de Bentailou tandis que les conditions plus réductrices de la digue de Saint-Salvy ne sont pas bien reproduites par le protocole expérimental. Cependant, une adaptation du protocole à des conditions réductrices peut être envisagée en injectant une solution réductrice dans l'extracteur.

Ainsi, cette approche expérimentale dynamique par extracteur de Soxhlet modifié, associée à une caractérisation minéralogique et géochimique serait un bon outil pour évaluer le comportement à long terme des déchets miniers et contribuer à l'orientation pour la gestion des sites miniers en fin d'exploitation.

### **Références**

[1] Pedro G. 1964. Contribution à l'étude expérimentale de l'altération géochimique des roches cristallines. Thesis Paris VI University, France.

[2] Davranche, M., J.-C. Bollinger and H. Bril. 2003. Effect of reductive conditions on metal mobility from wasteland solids: an example from the Mortagne du nord site (France). *Applied Geochemistry* 18: 383-394.

[3] Badreddine, R., A-L. Humez, U. Mingelgrin, A. Benchara, F. Meducin, and R. Prost. 2004. Long term retention of trace metals as affected by the weathering of solidified/stabilized wastes. *Environmental Science and Technology*, 38 : 1383-1398.

[4] Brunel, C. 2005. Dynamique des éléments traces métalliques (Pb, Zn et Cd) sur un petit bassin versant contaminé par des déchets miniers-cas du bassin versant amont du Lez (Ariège, Pyrénées), Ph.D thesis Toulouse III University, France.

[5] Munoz, M., Courjault-Radé, P., Castet, S., Martin, F, Tollon, F. 2003. Geochemical and mineralogical evolution of the Zn-Cd-Pb bearing tailings from the Saint-Salvy mine, France. *Journal of Physics IV* 107: 903-906.