

Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas: modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et sous un climat semi-aride. Evaluation du risque pour la santé humaine.

Manel Ghorbel Ben Abid

#### ▶ To cite this version:

Manel Ghorbel Ben Abid. Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas: modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et sous un climat semi-aride. Evaluation du risque pour la santé humaine.. Hydrologie. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2012. Français. NNT: . tel-00760685

# HAL Id: tel-00760685 https://theses.hal.science/tel-00760685

Submitted on 4 Dec 2012

**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.





#### En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Oniversité de Toulouse III - Paul Sabatier

Discipline ou spécialité : Hydrologie, Hydrochimie, Sol, Environnement

#### Présentée et soutenue par Manel GHORBEL BEN ABID

Le 07 Juillet 2012

#### Titre:

Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas : modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et sous un climat semi-aride.

Evaluation du risque pour la santé humaine

#### **JURY**

ABDALLAH BEN MAMMOU, Professeur de Iniversité de Tunis El Manar, President Hubert Bril, Professeur de Iniversité de Limoges, Rapporteur Abdelkrim Charef, Professeur au Centre des Recherches Rapporteur Bruno Lartiges, Professeur de Iniversité de Toulouse, Examinateur Marguerite Munoz, Chargée de Recherches 1 CNRS Toulouse Saadi Abdeljaouad, Professeur de Iniversité de Tunis El Manar Fabien Solmon, Chercheur au Centre International de la Physique Théorique à Trieste, Invite

Ecole doctorale : Science de l⊡nivers, de l⊞nvironnement et de l⊞space
Unité de recherche : UMR 5563 Géosciences et Environnement Toulouse (GET)

**Directeur(s) de Thèse :** Marguerite MUNOZ Sâadi ABDELJAOUAD

### Préambule

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de la collaboration entre le laboratoire de Ressource Minérales et Environnement de Tunis et le laboratoire Géoscience et Environnement Toulouse.

Elle a été financée par un projet UTIQUE-CMCU (2009-2011) et par une bourse de thèse sur deux ans (Avril 2009-Mars 2011) fournie par l'Institut de Recherche pour le Développement (IRD).

#### Remerciements

Au terme de ce travail, je tiens à remercier toutes les personnes qui ont contribué à sa réalisation par leurs conseils, leur aide et leurs critiques.

Mes profonds sentiments de reconnaissances et de respect sladressent à Marguerite Munoz, pour mlavoir dirigée pendant mes années de master et de thèse au Laboratoire GET et au Laboratoire RME à la fin de mon parcours, pour ses conseils, pour nos nombreuses discussions (scientifiques ou non) et pour mlavoir initié au raisonnement critique et au travail analytique de pointe.

Ma profonde gratitude s'adresse aussi à Mr Saadi Abdeljaouad, directeur du laboratoire RME, de m'avoir accueilli encadrée durant la thèse, encouragée et conseillée et d'avoir pourvu toutes les conditions favorables à l'achèvement de ce travail.

Merci à David Point pour avoir accepté d'être coordinateur de cette thèse pour laquelle j'ai bénéficié d'une bourse de l\(\mathbb{R}\mathbb{D}\).

Merci à Pierre Courjault-Radé qui a participé dans l'encadrement de cette thèse, pour sa disponibilité, ses réßexions et les longs débats qui ont beaucoup contribué à faire avancer le travail.

Je tiens à remercier également Christine Destrigneville pour avoir partagé avec moi son expérience dans la modélisation géochimique et pour toutes les explications qu'elle ma apportées.

Je remercie Messieurs jean Marc Montel et François Martin, directeurs successifs du GET pour mavoir accueilli au Laboratoire GET et permis de faire cette thèse en co-tutelle.

Mes remerciements vont aussi, au Laboratoire d'Aérologie, à Catherine Liousse et Corinne Galy-lacaux, grâce à qui nous avons pu construire le préleveur d'aérosol et développer la démarche d'échantillonnage. Merci aussi à Robert Rosset pour sa disponibilité et pour toutes les discussions intéressantes avec lui.

Merci particulièrement à Fabien Solmon pour mavoir initiée et aidée pour l'utilisation des modèles d'émission et de transport d'aérosols.

Un grand merci va à Philippe De Parseval au service microsonde, à Thierry Aigouy et Sophie Gouy au service MEB, à Manu, Caco et Jo à la salle blanche ainsi qu'ià Fréderic et Aurélie au service ICP-MS.

Merci aussi à Jean-François et à Fabienne à l'atelier roche pour leur aide et leur sourire.

Merci au personnel administratif du GET grâce à qui mon séjour au laboratoire slest toujours passé dans les meilleures conditions.

Jladresse mes profonds remerciements aux membres du jury, Mr Abdallah Ben Mamou et Messieurs Hubert Bril et Abdelkrim Charef, rapporteurs de ma thèse, dlavoir accepté dlévaluer ce travail

Je n\text{\text{0}oublierai} jamais et je resterai reconnaissante à Mme Radhia Souissi et Mr Fouad Souissi qui m\text{\text{0}ont} accompagnée au début de mon parcours dans la recherche et qui m\text{\text{0}ont} offert \text{\text{\text{0}occasion de la collaboration avec le GET.}}

Enfin je remercie tous mes amis et collègues doctorants et docteurs du GET et du RME, Aymen, Anna, Carolina, Camille, Laurent, Sylvaine, Faten, Wissem, Hédi, Nejib, Salma, qui ont rendu mon quotidien plus agréable et sympathique. Mes pensées vont à ma très chère amie Marianne Oltrogge.

A tous les miens, je dédie ce travail. Manel

#### Résumé

#### Auteur: Manel GHORBEL BEN ABID

Titre : Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas : modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et sous un climat semi-aride. Evaluation du risque pour la santé humaine.

Directeurs de thèse :

Marguerite MUNOZ, Université de Toulouse

Sâadi ABDELJAOUAD, Université de Tunis El Manar

Une approche pluridisciplinaire intégrée a été proposée pour étudier le transfert de la contamination métallique depuis les déchets de l'ancien site minier à Pb-Zn de Jebel Ressas, jusqu'à l'être humain. Nous avons pris en considération à la fois les caractéristiques physico-chimiques de la source, les conditions climatiques et la topographie pour hiérarchiser les vecteurs de la dispersion des métaux à partir des déchets de laverie de l'ancienne mine de Jebel Ressas.

Le vecteur éolien est le principal agent capable de disperser les métaux dans toutes les directions, avec des quantités variables pouvant dépasser les normes de la qualité des l'air pour Pb et Cd sur plusieurs centaines de mètres loin de la source. Le transfert hydrique particulaire est assez limité à cause de la topographie douce au tour des terrils de déchets. Le transfert en solution est négligeable grâce à l'environnement carbonaté.

L'investigation sur le risque des métaux pour la santé humaine au village de Jebel Ressas montre d'abord que, d'une part l'environnement carbonaté et d'autre part le pH neutre des fluides physiologiques dans le corps humain, limitent le passage en solution des métaux et leurs quantités bioaccessibles. Toutefois, Pb et Cd présentent un risque surtout pour les enfants en plus d'un effet cancérigène probable pour toute la population.

#### Abstract

Author: Manel GHORBEL BEN ABID

Title: Metallic contamination from waste of the old mining site of Jebel Ressas: transfer mechanisms modelling and conception of hazard maps in a carbonated context and under a semi-arid climate. Human health risk assessement.

Chairs:

Marguerite MUNOZ, Toulouse University

Sâadi ABDELJAOUAD, Tunis El Manar University

An integrated multidisciplinary method was proposed to study the transfer of metallic contamination from the waste of the old mining site (Pb-Zn) of Jebel Ressas, to Humans. We considered the physico-chemical characteristics of the source, the climate conditions and the topography to rank the dispersion vectors of metals from the treatment wastes to the environment. The wind is the main agent of scattering metals in all directions, with variable quantities which may exceed the standards of air quality for Pb and Cd up to several hundreds of meters far from the source. The particle hydric transfer is limited because of the soft topography around the waste dumps. The transfer in solution is negligible thanks to the carbonated environment.

The risk assessment for human health at the village of Jebel Ressas show that carbonated environment and the neutral pH of physiological fluids in the body, limits metals dissolution and their bioaccessible amounts. However, Pb and Cd may induce a risk especially for children as well as a probable carcinogenic for the entire population.

## Table de matières

Préambule Remerciements Résumé

Introduction générale
Chapitre I : Contexte et problématique
I. Contamination métallique issue de l'exploitation minière, dispersion des métaux, exposition humaine
I.1. Contamination métallique issue de l'exploitation minière
I.2. Dispersion des métaux
I.2.1. Influence du contexte lithologique sur la dispersion des métaux
I.2.1.1. Génération de drainage minier acide
I.2.1.2. Génération de drainage minier neutre ou alcalin
I.2.2. Influence du climat sur la dispersion des métaux
I.3. Exposition des populations à la contamination métallique
II. Spécificité de la province Maghrébine
II.1. La minéralisation
II.2. Le climat
III. Problématique scientifique dans le contexte spécifique de la Tunisie
III.1. L'Exploitation minière en Tunisie
III.2. Problématique scientifique et choix du site de Jebel Ressas
Chapitre II : Présentation du site d'étude
I. Description du site : géographie
II. Cadre climatique
II.1. Température
II.2. Vent
II.3. Précipitations
III. Contexte géologique
IV. Minéralisations et historique des travaux miniers  V. Description du site à son état actuel
v. Description du site à soil état actuel
Chapitre III : Caractérisation de la source de contamination: les déchets de laverie
I. Méthodologie
I.1. Echantillonnage des déchets
I.2. Préparation des échantillons
I.3. Mesure des paramètres physiques des déchets
I.4. Analyses chimiques
I.5. Analyses minéralogiques
II. Caractérisation physique des déchets de laverie
III. Composition chimique
IV. Composition minéralogique
IV.1. Composition minéralogique des déchets
IV.1.1. Phases porteuses de métaux dans le terril DI et DIII
IV.1.2. Phases porteuses de métaux dans le terril DII
IV.2. Composition minéralogique normative des déchets
IV.3. Caractérisation des croûtes à la surface des déchets
IV.3.1. Description des croûtes
IV.3.2. Composition minéralogique des croûtes
IV.3.3. Discussion
Chapitre IV: Transfert hydrique en solution de la contamination métallique
I. Introduction
II. Généralités
II.1. Production de drainage minier alcalin
II.2. Devenir des métaux passés en solution
II.3. Contrôle de la composition de la solution par les minéraux et effet de la salinité sur la
concentration des ions en solution
III. Méthodologie

IV.2.1. Méthodologie de la modélisation	
IV.2.1.1. Modèle d'émission utilisé et mise en œuvre	
IV.2.1.2. Données d'entrée : méthodologie d'acquisition	
IV.2.1.2.1 Données météorologiques	
IV.2.1.2.2. Granulométrie moyenne de l'horizon superficiel du terril DIII	
IV.2.1.2.3. Rugosité	
IV.2.2. Résultats de la modélisation du flux d'émission des PM10 et des PM2,5	
IV.3. Modélisation du transport et du dépôt des particules	
IV.3.1. Modèle utilisé (FDM) et mise en œuvre	
IV.3.2. Données d'entrée FDM	
IV.3.2.1. Données météorologiques	
IV.3.2.2. Données sur la source et les récepteurs	
IV.3.2.3. Données granulométriques	
IV.3.2.4. Données sur l'émission	
IV.3.3. Concentrations des PM10 et des PM2,5 dans l'air	
IV.3.4. Taux de dépôt des PM10 et des PM2,5	
V. Concentrations des métaux dans l'air dans le village de Jebel Ressas	
V.1. Méthodologie	
V.1.1. Méthodologie de la mesure directe	
V.1.1.1. Echantillonnage des PM10 et des PM2,5	
V.1.1.2. Analyses de Pb, Zn et Cd dans les PM10 et des PM2,5	
V.1.1.3. Méthodologie de l'étude par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) des	
particules métallifères dans les aérosols	
V.1.2. Méthodologie de calcul de la concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 à partir	
de la modélisation des concentrations en particules dans l'air.	
V.2. Résultats	
V.2.1. Concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 par mesure directe	
V.2.2. Micro-analyse MEB des particules métallifères dans les aérosols	
V.2.3. Concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 obtenus par modélisation au niveau	
du point de prélèvement	
V.2.4. Comparaison des résultats par mesure directe et par modélisation au point de mesure	
V.3. Prédiction spatialisée des concentrations moyennes des métaux dans l'air pendant la période de	
mesure et cartes d'aléa	
V.4. Cartographie prédictive des taux de dépôt des métaux	
VI. Conclusion	•
Chapitre VII : Exposition de la population à la contamination métallique et évaluation du risque	
I. Introduction	
II. Estimation de l'exposition par ingestion directe de poussières et par inhalation	
II.1. Méthodologie	
II.1.1. Echantillonnage des poussières déposées	
II.1.2. Techniques analytiques appliquées sur les échantillons de poussières	
II.1.2.1. Granulométrie	
II.1.2.2. L'analyse chimique	
II.1.2. 3. Analyses au MEB	
II.1.3. Doses inhalées et taille des particules	
II.1.4. Modélisation géochimique	
II.2. Caractérisation des poussières ingérées	
II.3. Evaluation de la bioaccessibilité dans le fluide digestif et calcul des doses d'exposition	
II.3.1. Résultats de la simulation dans le fluide gastrique	
II.3.2. Résultats de la simulation dans le fluide intestinal	
II.3.3. Doses d'exposition estimées	
II.4. Evaluation de la bioaccessibilité dans le fluide pulmonaire et calcul des doses d'exposition	•
III. Evaluation du risque de contamination métallique pour la santé humaine	
Constant of a factor	
Conclusion générale	

# Liste des figures

Figure I.1 : Production et transfert des DMA	6
Figure I.2 : Carte métallogénique de la province Maghrébine (UNESCO et BRGM,1968-1982)	13
Figure I.3 : Carte climatique des pays du Maghreb (UNESCO-FAO, 1963)	16
Figure I.4 : Les différentes zones métallogéniques en Tunisie.	17
Figure I.5 : Carte métallogénique de la Tunisie (DGTP,1922)	19
Figure II.1 : Localisation géographique de l'ancien site minier et du village de Jebel Ressas	23
Figure II.2 : Principal réseau hydrographique (représenté en pointillés) drainant la plaine de Mornag et	
la localité de Jebel Ressas vers le golfe de Tunis	24
Figure II.3: Températures mensuelles moyennes (1996-2006)	24
Figure II.4 : Rose des vents à la station Tunis-Carthage sur la période entre 1981 et 2005 (source INM).	25
Figure II.5 : Précipitations mensuelles moyennes à la station de Tunis-Carthage sur la période entre	
1996 et 2006 (source INM)	25
Figure II.6 : Extrait de la carte géologique de Grombalia 1 :50 000 (Bujalka et al., 1971)	27
Figure II.7 : Localisation des minéralisations dans le Massif de Jebel Ressas (Sainfeld, 1952)	29
Figure II.8 : Extrait de la photo aérienne n°315 de 1947	30
Figure II.9 : Extrait de l'assemblage des photos aériennes n°45 et 47 de 1963	31
Figure II.10 : Extrait de la photo aérienne n°1184 de 1998	31
Figure II.11: Etat actuel du site	32
Figure III.1 : Points de prélèvement des carottes dans les terrils de déchets	33
Figure III.2 : Distribution granulométrique de la fraction superieure à 63 µm dans les carottes	37
Figure III.3 : Distribution granulométrique de l'échantillon superficiel de DIII	37
Figure III.4 : Diffractogrammes des RX sur les échantillons des carottes prélevées dans les terrils de	
déchets de laverie	42
Figure III.5 : Observations au microscope métallographique des sections polies des échentillons de	
déchets de laverie	43
Figure III.6 : Grain de smithsonite fibreuse observé au MEB en mode rétrodiffusé et spectre EDS	
montrant du Pb et du Mn comme cations secondaires	45
Figure III.7 : Carbonates de Zn observés au MEB en mode rétrodiffusé	45
Figure III.8 : Cérusite (Ce) à la surface d'un grain composite de calcite (Ca) et d'hémimorphite (He)	
observé au MEB en mode rétrodiffusé.	45
Figure III.9 : Différents aspects de la cérusite.	46
Figure III.10: Observation au MEB en mode rétrodiffusé d'un grain polyphasé de strontianite	
plombifère (St) et de cérusite (Ce) en section polie.	46
Figure III.11 : Grain de calcite en section polie observé au MEB en mode rétrodiffusé	47
Figure III.12 : Quelques grains de silicates de Zn observés au MEB en mode électrons secondaires	47
Figure III.13: Grain composite de silicate de Zn (Si-Zn), calcite (Ca), cérusite (ce) et oxydes de fer	40
(OxFe) observé en section polie au MEB en mode rétrodiffusé	48
Figure III.14 : Grain de galène en section observé au MEB en mode rétrodiffusé : La bordure est en voie	40
d'altération en cérusite.	48
Figure III.15 : grains d'oxy-hydroxyde de fer observés au MEB-EDS en mode rétrodiffusé et exemple	49
de spectre EDS. Figure III.16 : Quelques grains noirs, en section polie, observées au MEB en mode rétrodiffusé.	
Figure III.17 : Photos des croûtes et dépôts secondaires à la surface des terrils de déchets.	52 55
	33
Figure III.18 : Diffractogramme de RX obtenu sur un échantillon de poudre blanche sur une croûte à	56
la surface du déchet DIII	30
Figure III.19 : Diffractogramme de RX obtenu sur un échantillon gris de croûte à la surface du	
déchet DIII	56
Figure IV.1 : Evolution des indices de saturation des minéraux suite à la mise en réaction des minéraux	50
des déchets oxydés	69
Figure IV.2 : Concentrations maximales de Pb et Zn en solution suite à la dissolution des minéraux	0)
oxydés	71
Figure IV.3 : Concentrations de Pb et Zn dans une solution en équilibre avec la calcite	74
Figure VI.4 : Concentration de Pb et Zn suite à la dissolution des sulfures dans des eaux de salinité	, -τ
croissantes	75
Figure VI.5 : Indices de saturation des minéraux secondaire suite à la dissolution des sulfures dans des	, 5
eaux de salinité croissantes	76

Figure V.1 : Points d'échantillonnage des sols	83
Figure V.2 : points d'échantillonnage des sédiments dans Oued Hma	83
Figure V.3 : Surface ravinée du terril DII dans les zones de faible cohésion	84
Figure V.4 : Aspect de la surface du terril DII après l'enlèvement d'importante quantité de déchets par	
les engins	85
Figure V.5 : Instabilité et fragilisation du terril DII suite à l'effondrement de blocs de déchets	85
Figure V.6: Image Google Earth montrant les ravines d'érosion à partir du terril DIII	87
Figure V.7 : Image Google Earth montrant les ravines d'érosion à partir des terrils DI et DII	88
Figure V.8: Photos montrant le ruissellement sur la route puis dans des ravines dans les oliveraies en	
face du terril DIII	89
Figure V.9: Modèle Numérique de Terrain de résolution 3m	90
Figure V.10 : carte du réseau hydrographique et des zones basses calculée à partir du MNT	90
Figure V.11 : Carte des chemins et des séparations entre les parcelles de terrains	91
Figure V.12 : Carte de l'aléa transfert hydrique particulaire	92
Figure V.13 : Concentrations des métaux dans échantillons de sols	93
Figure VI.1: Les différentes couches de l'atmosphère terrestre	96 98
Figure VI.2: Représentation de la CLA en couches en fonction des forces dominantes	
Figure VI.3: Classes de tailles des aérosols (USEPA, 1995 EPA/600/AP-95/001c, in Godish, 1997)	101
Figure VI.4 : Représentation des forces appliquées à une particule sphérique soumise à l'action du vent (Kardous 2005 d'après Greeley et Iversen 1985).	101
Figure VI.5 : Représentation de l'effet du sol sur l'écoulement de l'air (Alfaro, 1997).	101
Figure VI.5: Representation de l'effet du soi sui l'écoulement de l'air (Affaio, 1997).  Figure VI.6: Modes de mouvements des particules suite à l'érosion éolienne (Greeley et Iversen, 1985	102
modifiée).	103
Figure VI.7 : Zone concernée par la modélisation du transfert éolien des particules métalliques. Extrait	
de la carte topographique de Grombalia NO (OTC, 1984) au 1 :25 000.	114
Figure VI.8 : Photo des capteurs de vent et de température de la station météorologique installée sur la	117
terrasse de la maison considérée comme point de mesure et prélèvement	118
Figure VI.9 : Schéma explicatif du calcul d'une direction moyenne de vent dans un repère circulaire	119
Figure VI.10: Rose des directions moyennes horaires du vent du 13 juillet au12 août 2009 à Jebel	117
Ressas	120
Figure VI.11 : Schéma représentant l'anisotropie de la rugosité due à la présence d'une ridule	
Figure VI.12 : Photo de la surface de la parcelle 1 au toit du terril DIII	122
Figure VI.13 : Photo de la surface de la parcelle 2 au toit du terril DIII	123
Figure VI.14 : Photo de la surface de la parcelle 3 au toit du terril DIII	123
Figure VI.15 : Photo de la surface de la parcelle 4 au toit du terril DIII	124
Figure VI.16 : Flux d'émission calculé pour une rugosité de 260 µm et pour l'intervalle de vitesse de	124
vent mesuré à Jebel Ressas entre le 13 juillet et le 12 août 2009	130
Figure VI.17 : Flux d'émission moyen journalier issue de l'ensemble du terril DIII pendant la période de	
mesure	131
Figure IV.18 : Carte des concentrations de PM10 et de PM2,5 supérieures aux valeurs de références	138
Figure VI.19 : Photos du préleveur d'aérosols	140
Figure VI.20 : Concentrations journalières moyennes, maximales et minimales des métaux dans les	
PM10 analysés	144
Figure VI.21 : Concentrations moyennes maximales et minimales des métaux dans les PM2,5 analysés	
(revoir les 000 non detectés)	144
Figure VI.22 : Images en mode rétrodiffusé et spectres EDS de grains d'aérosols sur un filtre portant des	
PM2,5.	146
Figure VI.23 : Images en mode rétrodiffusé et spectres EDS de filtres d'aérosols portant des PM10.	147
Figure VI.24 : Variation journalière des concentrations calculés et analysées de métaux dans les PM10	4.50
au point de prélèvement situé sur la terrasse de la maison en face du terril DIII	150
Figure VI.25 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM10 prélevés sur le site	151
Figure VI.26 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM10 prélevés sur le site et	150
dans les échantillons représentatifs des terrils de déchets.	152
Figure VI.27 : Variation journalière des concentrations calculés et analysées de métaux dans les PM2,5	152
au point de prélèvement situé sur la terrasse de la maison en face du terril DIII	153
Figure VI.28 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM2,5 prélevés sur le site	154 156
Figure VI.29 : Concentration de Pb dans les PM10 dans l'air Figure VI.30 : Concentration de Pb dans les PM2,5 dans l'air	157
Figure VI.30 : Concentration de Po dans les PM12,3 dans l'air	157
Figure VI.31: Concentration de Zn dans les PM2,5 dans l'air	159
i gaio 11.52 . Componiumoni do em dano 100 i 1112,5 dano i an	10)

Figure VI.33 : Concentration de Cd dans les PM10 dans l'air	160
Figure VI.34 : Concentration de Cd dans les PM2,5 dans l'air	161
Figure VI.35 : Carte de l'aléa du transfert éolien de Pb	163
Figure VI.36 : Carte de l'aléa du transfert éolien de Cd	164
Figure VI.37 : Taux de dépôt de Pb dans les PM10	166
Figure VI.38 : Taux de dépôt de Zn dans les PM10	167
Figure VI.39 : Taux de dépôt de Cd dans les PM10	168
Figure VII.1 : Schéma du transfert de la contamination entre l'environnement et le corps humai	n 171
Figure VII.2 : Localisation des points d'échantillonnage des poussières déposées dans le village	173
Figure VII.3 : Courbes granulométriques des échantillons de poussières	178
Figure VII.4 : concentrations de Pb et Zn dans les échantillons de poussières et dans les	terrils de
déchets.	179
Figure VII.5 : Image en mode rétrodiffusé de l'aspect général des poussières déposées.	180
Figure VII.6 : Images en mode rétrodiffusé et spectre EDS de quelques grains porteur de métau	x 181

## Liste des tableaux

Tableau I.1 : Potentiels de neutralisation (NP) et potentiels de génération d'acidité (AP) de différentes	
roches (d'après Plumlee, 1999)	8
Tableau I.2 : Effets dangereux suite à l'inhalation de Pb, Zn et Cd et valeurs de références	10
Tableau I.3 : Effets dangereux suite à l'ingestion de Pb, Zn et Cd et valeurs de références	11
Tableau I.4 : Principaux gisement miniers en Tunisie	18
Tableau III.1 : Pourcentage de la fraction inférieure à 63 μm.	37
Tableau III.2 : Valeur de la densité dans les terrils de déchets de laverie.	38
Tableau III.3 : Mesures de cohésion à la surface des 3 terrils de déchets	38
Tableau III.4 : Perméabilité mesurée sur les terrils de déchets	39
Tableau III.5 : Concentrations des éléments majeurs dans les déchets	39
Tableau III.6 : Concentration de Pb, Zn et Cd dans les carottes prélevées dans les terrils de déchets	39
Tableau III.7: Aspect des fractions séparées et description morphoscopique des grains métallifères	41
Tableau III.8 : Abondance qualitative des minéraux des déchets	44
Tableau III.9 : Résultats des analyses microsonde et formules structurales calculées pour les minéraux	
métallifères oxydés des déchets.	50
Tableau III.10 : Résultats des analyses à la microsonde des phases porteuses de Cd	51
Tableau III.11 : Résultats des analyses microsonde et formules structurales calculées pour les minéraux	
métallifères sulfurés des déchets.	52
Tableau III.12 : Minéraux présents et leurs compositions normatives dans les terrils de déchets	53
Tableau IV.1: Intervalles de concentrations des métaux dans les eaux de surfaces analysés à l'aval de	<i>(</i> 1
sites miniers en Tunisie	61
Tableau IV.2 : Concentration de références (μg/l) recommandée pour les métaux dans les eaux potables	62
Tableau IV.3: Proportion molaires des minéraux dans les déchets de laverie	67
Tableau IV.4 : Quantités de minéraux mis en réaction dans chaque assemblage	68
Tableau IV.5 : Résultats obtenus suite à la simulation de la mise en réactions des minéraux des déchets DI et DIII	69
Tableau IV.6 : Concentrations maximales de Pb et Zn en solution suite à la dissolution des minéraux	09
oxydés et comparaison aux normes de l'OMS	70
Tableau IV.7 : Quantités de minéraux mis en réaction	72
Tableau IV.7 : Quantités de fininciaux fins en réaction  Tableau IV.8 : Indices de saturation des minéraux secondaires dans une solution en équilibre avec la	12
calcite	73
Tableau IV.9 : Quantités de minéraux mises en réaction	74
Tableau IV.10 : Résultats de la simulation du scénario 3	75
Tableau V.1 : Concentrations des métaux dans les échantillons de sols	93
Tableau V.2 : Concentrations des métaux dans les échantillons de sédiments	93
Tableau VI.1 : Énergie de cohésion spécifique à chaque classe d'aérosols (Alfaro et al 1997)	116
Tableau VI.2: Fréquence (%) des vents selon leur vitesse moyenne horaire pour chaque direction	121
TableauVI.3 : Classification des parcelles du terril en fonction de leurs aspects à la surface	122
Tableau VI.4 : Mesure de la rugosité aérodynamique pour la direction SE du vent	126
Tableau VI.5 : Valeurs de rugosité dans les trois directions de mesure pour chaque parcelle	127
Tableau VI.6 : Valeurs de rugosité dans les trois directions de mesure	128
Tableau VI.7 : Flux d'émission calculé pour une rugosité de 260 μm	129
Tableau VI.8 : Flux d'émission des PM10 calculé pour les rugosités 240, 260 et 340 μm	133
Tableau VI.9 : Granulométrie des PM10 émises	136
Tableau VI.10 : Granulométrie des PM2,5 émises	136
Tableau VI.11 : Les intervalles de concentrations des aérosols dans l'air.	137
Tableau VI.12 : Intervalles du taux de dépôt calculé par FDM.	138
Tableau VI.13 : Protocole avec méthanol de mise en solution des aérosols	141
Tableau VI.14 : Protocole sans méthanol de mise en solution des aérosols	141
Tableau VI.15: Concentrations de Pb, Zn et Cd (ppb) dans les blancs de chimie	142
Tableau VI.16 : Comparaison des concentrations analysées et certifiées du standard international SKO1	142
Tableau VI.17 : Concentration des métaux dans les PM10 et les PM2,5 prélevés	145
Tableau VI.18 : Concentration calculées des métaux dans les PM10 et les PM2,5	148
Tableau VI.19: Intervalles de concentration des métaux dans la zone d'étude	154
Tableau VI.20 : Intervalle des taux du dépôt sec des métaux	165
Tableau VII.1 : protocole de l'attaque chimique des échantillons de poussières	174
Tableau VII.2 : Résultats obtenus pour le standard international	174
Tableau VII.3: pH et composition chimique du fluide gastrique et intestinal	176

Tableau VII.4 : pH et composition chimique du fluide pulmonaire	
Tableau VII.5 : Concentration de Pb, Zn et Cd dans les échantillons de poussières (Dust 1 à 7) et dans	
les déchets de laverie (DI à III)	
Tableau VII.6 : Composition normative des échantillons de DIII et de poussières (le plus et le moins	
contaminé)	
Tableau VII.7 : log SI des minéraux secondaires suite à la dissolution des minéraux ingéré dans le fluide	
gastrique dans le cas des enfants	
Tableau VII.8 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide gastrique et facteurs de bioaccessibilité	
calculés dans le cas des enfants	
Tableau VII.9 : Indice de saturation des minéraux secondaires dans le fluide intestinal chez les enfants	
Tableau VII.10 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide gastrique et facteurs de bioaccessibilité	
calculés dans le cas des enfants	
Tableau VII.11 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide gastrique et facteurs de bioaccessibilité	
calculés dans le cas des adultes	
Tableau VII.12 : Doses d'exposition dans le cas des enfants et des adultes suite à l'ingestion directe de	
poussières contaminées	
Tableau VII.13 : Indices de saturation des minéraux secondaire dans le fluide pulmonaire suite à la	
dissolution des PM2,5 dans le fluide pulmonaire	
Tableau VII.14 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide pulmonaire et facteurs de bioaccessibilité	
Tableau VII.15 : Doses d'exposition dans le cas des enfants et des adultes suite à l'inhalation d'aérosols	
contaminés	
Tableau VII.16 : Doses d'exposition totales et valeur du risque.	

#### Introduction générale

Les contaminants métalliques peuvent migrer depuis le site minier et ses déchets vers les différents compartiments de l'environnement, l'eau, l'air et le sol, via plusieurs mécanismes physico-chimiques de transfert tels que le transport en solution après altération chimique, le transport en suspension par l'eau et par l'air et le transport par différentes activités anthropiques. Le contexte climatique méditerranéen favorise particulièrement le soulèvement de poussières contaminées à partir des sources mais aussi l'érosion hydrique mécanique de ces sources lors des évènements pluvieux peu fréquents mais généralement intenses. En conséquence, dans ces environnements contaminés, les populations locales se trouvent soumises à une exposition chronique à la contamination métallique par différentes voies. En effet, la diffusion de la contamination dans l'air, l'eau et vers la biosphère et la chaîne alimentaire peut soumettre les populations à une exposition aux métaux pouvant présenter un risque pour la santé s'il y a dépassement des seuils de toxicité déterminés par les institutions de veille sanitaire internationales (USEPA; OMS).

L'ancien site minier de Jebel Ressas est situé en zone périurbaine à environ 30 km au sud de la capitale tunisienne. Ce site présente d'imposants terrils de déchets miniers dont le volume est estimé à plus de 600 000 m³ et de fortes concentrations en Pb, Cd et Zn (Ghorbel et al., 2008a et b). Malgré l'absence de drainage minier acide dans ce contexte carbonaté, la fine granulométrie des déchets, leur faible cohésion, et l'absence de couverture végétale et d'aménagements spécifiques, les rendent particulièrement vulnérables aux processus d'érosion éolienne et hydrique liés aux conditions climatiques de cette région. Au cœur de ce site se trouve l'ancien village de mineurs adjacent aux terrils et entouré de terrains agricoles. La population est ainsi potentiellement soumise à une exposition chronique au Pb, Cd et Zn.

L'étude de la dispersion de la contamination et du risque sanitaire a été traitée à l'aide d'un panel d'outils et connaissances dans les domaines des sciences de la terre et de l'environnement en s'appuyant sur :

- La caractérisation de la source de contamination et l'identification les contaminants métalliques et de leur spéciation solide
- L'analyse les mécanismes de transferts hydrique en solution, hydrique particulaire et éolien vers les différents compartiments de l'environnement (eau, sol, air) et la production des cartes d'aléa pour chaque mécanisme de transfert à l'échelle du

- petit bassin versant de Jebel Ressas,
- La validation les cartes d'aléa avec des analyses ponctuelles raisonnées de sol, de sédiments et d'aérosols,
- L'évaluation du taux d'exposition brut de la population au Pb, Zn et Cd par inhalation et par ingestion directe de poussières contaminées,
- L'évaluation de la fraction de métaux bioaccessible c'est à dire capable de passer en solution dans les fluides pulmonaires et digestifs.

Cette approche proposée en amont d'éventuelles études épidémiologiques, avec comme objectif l'aide à la décision pour la gestion du site de Jebel Ressas, a pour vocation d'être transposable à d'autres sites miniers, anciens ou en activité, dans des contextes climatiques et géologiques similaires.

Ce manuscrit est organisé en sept chapitres. La pluridisciplinarité de ce travail impose la présentation de la méthodologie propre à chaque chapitre séparément:

• Le *premier chapitre* est consacré à situer ce travail dans son cadre par rapport à état de l'art. Nous insisterons sur les caractéristiques de la dispersion de la contamination métallique d'origine minière propre au contexte maghrébin et tunisien en particulier.

Nous présenterons également certaines notions clés se rapportant à la vulnérabilité de l'être humain vivant à proximité des ces sites.

- Le *deuxième chapitre* est dédié à la présentation du site de Jebel Ressas avec, entre autres, ces caractéristiques climatiques, géologiques et minières.
- Dans le *troisième chapitre* est présentée la caractérisation détaillée des déchets de laverie de Jebel Ressas. La méthodologie de caractérisation physique, minéralogique et chimique sera présentée en début de ce chapitre.
- Le *quatrième chapitre* concerne l'étude du transfert en solution des métaux. La modélisation géochimique est utilisée pour estimer les quantités de métaux susceptibles de passer en solution quand en envisage différents scénarios possibles dans le contexte de l'étude.
- Le *cinquième chapitre* traite le transfert hydrique de la contamination métallique sous forme particulaire. La cartographie des chemins de transfert et des zones préférentielles de dépôt va aboutir à la construction d'une carte d'aléa pour ce mécanisme de transfert qui sera validée avec des analyses chimique sur les sols.
- Le *sixième chapitre* étudie le transfert de la contamination métallique par voie éolienne. Il permettra de déterminer des flux d'émission de poussières à partir de la source, la concentration dans l'air et le taux de dépôt de contaminants métalliques en divers points

récepteurs permettant de cartographier la dispersion de la contamination de l'air et des sols.

• Dans le *septième chapitre* nous étudions le risque pour la santé humaine des contaminants métallique ingérés et inhalés. Nous adoptons une approche basée sur la modélisation géochimique de la dissolution des minéraux dans les fluides physiologiques simulés.

# **CHAPITRE I:**

CONTEXTE ET PROBLEMATIQUE

#### Chapitre I : Contexte et problématique

# I. Contamination métallique issue de l'exploitation minière, dispersion des métaux, exposition humaine

#### I.1. Contamination métallique issue de l'exploitation minière

L'industrie minière est un des secteurs les plus importants de l'économie des pays disposant de ressources minières importantes comme le Canada et la Bolivie. L'extraction de métaux précieux, tels l'argent, ou de métaux de base, tels le cuivre, le zinc et le plomb peut se faire principalement de deux façons: à l'aide d'exploitations à ciel ouvert ou dans des mines souterraines. Les exploitations à ciel ouvert sont utilisées lorsque les gisements sont peu profonds et présentent un tonnage élevé de minerai. Les exploitations souterraines sont envisagées lorsque le gisement est profond.

Durant l'exploitation du gisement, la mine génère une grande quantité de déchets solides et liquides. Parmi les déchets solides produits, on note :

- \* Les roches stériles qu'il a fallu enlevé pour atteindre le minerai et la gangue qui a été séparée du minerai ne contiennent pas ou peu de métaux. Ces haldes sont souvent très volumineuses et sont composés de fragments d'une taille variant de l'ordre du mètre jusqu'à des particules de quelques micromètres.
- \* les déchets de traitement du minerai : Les rejets de concentrateurs sont constitués de la fraction non économique du minerai obtenue suite à la récupération des minéraux à valeur commerciale. Ils sont issus du broyage du minerai et sont généralement très fins (plusieurs dizaines à quelques centaines de microns) et sont sous forme d'une pulpe à leur sortie de l'usine de concentration. Les rejets de concentrateur sont entreposés sous forme de terrils stabilisés par des digues ou par le relief du terrain.
- \* Les déchets liquides, quant à eux, sont principalement constitués de l'eau provenant du pompage de la mine et celle utilisée lors du traitement de minerai. Cette dernière peut être contaminée en réactifs de traitement (cyanure, collecteurs, moussants), en matière en suspension ainsi qu'en métaux. Les rejets liquides incluent également les eaux qui percolent à travers les aires d'entreposage des rejets solides (haldes à stériles et terrils de déchets de laverie).

Les déchets des exploitations minières représentent une source majeure de contamination de l'environnement par les métaux toxiques.

#### I.2. Dispersion des métaux

Les contaminants métalliques peuvent migrer depuis le site minier et ses déchets vers les

différents compartiments de l'environnement : l'air, l'eau, et les sols via plusieurs mécanismes physico-chimiques de transferts :

- transfert en solution dans l'eau
- transfert particulaire dans l'eau
- transfert par l'air
- transfert anthropique : les particules sont dispersées par le piétinement, la circulation d'engins, l'activité agricole, etc.

La dispersion de la contamination métallique à partir des sites et des déchets miniers est contrôlée aussi bien par la nature des opérations d'extraction et de traitement du minerai que par la topographie, le *climat* et la *lithologie* de la zone en question (Craw, 2001). Nous détaillons dans ce qui suit l'influence de chacun de ces deux derniers facteurs.

#### I.2.1. Influence du contexte lithologique sur la dispersion des métaux

La nature des roches encaissantes de la minéralisation et en affleurement autour du site minier détermine surtout la qualité de l'eau en contact avec les minéralisations et les déchets sur un site minier. En effet, la mise en solution des métaux initialement figés dans des minéraux sulfurés, est déterminé par le pouvoir des roches environnantes à tamponner l'acidité résultante de l'oxydation des sulfures. On distingue ainsi :

- des roches à faible pouvoir tampon tels que les roches silicatées favorisant l'apparition du phénomène de drainage minier acide (DMA)
- des roches à important pouvoir tampon tels que les carbonates favorisant l'apparition de drainage minier alcalin.

#### I.2.1.1. Génération de drainage minier acide

Depuis plusieurs années les études sur l'impact de l'activité minière ont été orientées vers les investigations sur les drainage miniers acides (DMA) (e.g. Webster et al., 1994 et Courtin-Nomade et al., 2005). Les DMA sont caractérisés par de très fortes concentrations en métaux lourds liées aux pH acides de ces eaux.

Ce phénomène naturel est le résultat de la circulation des eaux à travers les composantes d'un site minier riche en sulfures métalliques notamment en sulfures de Fe. Il est produit lorsque les minéraux sulfurés sont exposés à l'eau et à l'air. L'oxydation qui survient, souvent accélérée par la présence de bactéries, produit des ions H<sup>+</sup> qui acidifient l'eau et favorisent la

mise en solution de divers éléments, dont les métaux.

D'abord, la pyrite est oxydée par l'oxygène dissout dans l'eau :

$$2FeS_2 + 7O_2 + 2H_2O \rightarrow 2Fe^{2+} + 4SO_4^{2-} + 4H^+$$

Au cours de cette étape, seul le soufre est oxydé en sulfate, le fer est solubilisé sous forme d'ions ferreux.

Ensuite, le fer ferreux (Fe<sup>2+</sup>) présent s'oxyde en fer ferrique (Fe<sup>3+</sup>), en présence de bactéries :

$$2Fe^{2+} + 1/2O_2 + 2H^+ \rightarrow 2Fe^{3+} + H_2O$$

Le fer ferrique précipite sous forme d'hydroxyde de fer en favorisant davantage l'acidification du milieu:

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

Cette étape n'affecte pas la pyrite, mais est préalable à la troisième étape, où l'oxydation ne requiert plus l'action de l'oxygène et le fer ferrique peut oxyder directement la pyrite :

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

L'effet des DMA s'étend bien au delà du secteur de l'extraction de minerai et de stockage des résidus. L'entretien du caractère acide des eaux et leur entraînement vers l'aval sont favorisés par les pluies qui imbibent les gisements superficiels, terrils, décharges et bassins de décantation. Les DMA sont transportés vers les sols, les cours d'eau et les aquifères (figure 1). L'acidité combinée à la présence de contaminants potentiellement toxiques comme divers métaux lourds (Cu, Cd, Pb, Co, Hg, As...), peut affecter sérieusement les écosystèmes environnants.

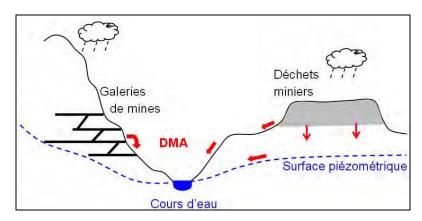


Figure I.1: Production et transfert des DMA

#### I.2.1.2. Génération de drainage minier neutre ou alcalin

En contexte carbonaté, la dissolution des carbonates libère des alcalis et des cations métalliques tels que Ca, Mg, et Mn et contribue à neutraliser l'acidité de l'eau selon la réaction :

$$CaCO_{3(solide)} + H^+ \rightarrow Ca^{2+} + HCO_3$$

Les cations libérés participent à la formation de minéraux secondaires tels que les hydroxydes et les sulfates qui piègent les métaux dissous de l'eau.

La réaction complète d'oxydation, hydrolyse et neutralisation en présence de pyrite peut être décrite par la réaction suivante (Doye, 2005):

$$FeS_{2(solide)} + 4CaCO_{3(solide)} + 3.75O_{2(gaz)} + 3.5H_2O \rightarrow Fe(OH)_{3(solide)} + 2SO_4^{2-} + 4Ca^{2+} + 4Ca^{2-} + 4Ca^{2-}$$

En contexte carbonaté, la neutralisation de l'acidité et les réactions de précipitation diminuent le passage en solution des métaux (Al et al., 2000, Xenidis et al., 2003). C'est pourquoi la contamination par les déchets miniers, dans ce contexte, reste peu étudiée. Cependant, les eaux de ruissellement qui se sont chargées en particules métallifères ruissellent sur des distances plus ou moins longues et entrent en contact avec des substratums de différentes natures. Ainsi, les conditions physico-chimiques de l'eau peuvent éventuellement changer et entrainer la dissolution des phases métallifères transportées et l'augmentation des concentrations des métaux en solution.

Plumlee (1999) donne des estimations relatives aux potentiels de génération d'acidité et de neutralisation de roche encaissantes de différentes lithologies (tableau I.1).

Parmi les roches sédimentaires les calcaires et les dolomites offrent le potentiel de neutralisation le plus élevée. Les roches ignées ont généralement un faible pouvoir tampon. Seules quelques roches ulramafiques et les carbonatites (50% de carbonates) peuvent présenter un potentiel de neutralisation (NP) élevé. Pour les roches métamorphiques, seul le marbre possède un potentiel de neutralisation.

L'environnement sédimentaire silicaté, les roches endogènes acides présentent un potentiel de production d'acidité important contrairement aux carbonates sédimentaires ou aux roches endogènes ultrabasiques. Notons qu'à la surface de la terre ce dernier type roche est rare par rapport aux carbonates sédimentaires.

Tableau I.1 : Potentiels de neutralisation (NP) et potentiels de génération d'acidité (AP) de différentes roches (d'après Plumlee, 1999)

Rock Type	Subcategory	Rock Name	Relative Neutralizing and Acid-Generating Potential
Sedimentary	Chemical/	Limestone	High NP
	Biological	Dolomite	Mod – high NP
		Chert	Mod NP
	Detrital	Black Shale	Low - mod NP, low - mod AP
		Redbed shales	Mod NP
		Arkose	Low NP
		Calcareous sandstone	Low NP
		Quartzose sandstone	Low NP
Igneous	Intrusive	Carbonatite	High NP, Mod AP
		Ultramafic	Mod – high NP, mod AP
		Granite	Low NP
	Volcanic	Komatiite	Mod – high NP, some AP
		Basalt	Low – mod NP
		Andesite	Low – mod NP
		Poorly welded volcanic	
		tuff	Mod – high NP
		Highly welded volcanic	
		tuff	Low – mod NP
		Rhyolite flows	Low – mod NP
Metamorphic		Marble	High NP
		Gneiss	Low NP
		Quartzite	Very low NP
		Sulfidic schists	Low NP, high AP

# I.2.2. Influence du climat sur les mécanismes de transfert de la contamination métallique

Les sites miniers sont soumis aux évènements climatiques locaux qui agissent sur les particules métallifères en affectant leur stabilité et en entrainent le remaniement et l'érosion des sources de contamination.

En climat tempéré, caractérisé par l'abondance des précipitations et la forte humidité de l'air, l'eau est le principal agent de dispersion des métaux que ce soit par leur mise en solution ou par leur transport à l'état particulaire.

En climat semi-aride, les précipitations ne dépassent pas les 500mm/an (UNESCO-FAO,

1963). Toutefois, le début de la saison humide est marqué par des d'événements orageux pouvant engendrer un « first flush » comme dans le cas du climat arctique au moment de la fonte des glace (Hester et Harrison, 1994).

D'autre part, la sécheresse de ce climat avec la présence de vent fort, peut mobiliser les particules métallifères par l'air (Chane Kon et al., 2007, Boussen et al 2010). La qualité de l'air est alors sujette à une dégradation par contamination métallifère.

Sous un climat aride, les eaux qui percolent sont rares, et le flux d'eau est très faible. La faible humidité qui peut exister conduit à la dissolution partielle des sulfures et la reprécipitation sur place de sels secondaires. Les métaux ne seront mobilisés qu'au moment d'événements pluvieux intenses (Hester et Harrison, 1994). Le transfert des métaux est essentiellement lié à l'érosion éolienne des sources et au transport par le vent.

#### I.3. Exposition des populations à la contamination métallique

Selon J.M. Last (2000), l'exposition est « la quantité du facteur qui pénètre ou interagit avec l'organisme d'un individu ou d'un groupe d'individus, elle peut donc varier avec la dose individuelle ».

L'homme étant en contact permanent avec son environnement, les contaminants peuvent pénétrer dans l'organisme par plusieurs voies (figure 2):

- L'inhalation: l'activité respiratoire entraine les particules contaminées de taille inférieure à 80 μm à l'intérieur des poumons. Les particules fines < 2,5μm peuvent atteindre les alvéoles alors que les particules plus grosses s'arrêtent au niveau du nez de la trachée et des branches.
- L'ingestion directe: c'est l'incorporation orale directe de particules contaminées. Les retombées de particules contaminées dans les lieux de vie, dans les aliments et l'eau de boisson peut conduire à l'ingestion de particules, mais aussi l'habitude des enfants de porter les mains à la bouche.
- L'ingestion indirecte: elle résulte de la consommation d'aliments ou d'eau déjà contaminée comme, par exemple, les légumes et fruits cultivés sur des sols pollués,
- Le contact dermique : il consiste au contact des contaminants directement avec la peau. Cette voie est plus marginale et provoque rarement des maladies sauf pour des cas accidentels aigus.

L'action des polluants auxquels l'Homme est exposé dépendent d'une variété de paramètres:

- la concentration des polluants dans l'environnement
- la durée de l'exposition: plus la durée est longue plus la quantité de polluant incorporée est grande.
- La présence simultanée de plusieurs métaux: bien que ceci reste encore peu connu,
   certain polluants peuvent avoir des effets cumulables ou antagonistes (Kalhori, 2008),
- la population exposée: suivant l'âge, l'état de santé, les habitudes et pratiques, les conditions de vie, etc. Généralement, les populations les plus sensibles sont les enfants, les personnes âgées et les personnes avec des antécédents de maladies (Kalhori, 2008)

L'exposition aux métaux des populations vivant à proximité de fonderies et d'usines métallurgiques a déjà été mise en évidence. Des enfants présentent des concentrations élevées de As dans les urines, en Belgique (Buchet et al., 1980), en Mexique (Diaz Barrigua et al 1993) et aux USA (Hwang et al 1997). Des concentrations de Pb dans le sang dépassant les concentrations normales ont été trouvées chez des femmes et des enfants vivants à proximité de fonderies en Yougoslavie, en Mexique, aux USA, en République Tchèque et au Canada. Les effets toxiques des métaux portent principalement sur les os, le système nerveux, les reins

Les effets toxiques des métaux portent principalement sur les os, le système nerveux, les reins et le foie.

En plus de leur effet à seuil sur les différents organes, Pb est Cd sont considéré sans seuil pour certains effets notamment cancérigènes.

Tableau I.2 : Effets dangereux suite à l'inhalation de Pb, Zn et Cd et valeurs de références

Elément	Effet cancérigène	Systèmes ou organes sensibles	Pathologie	Valeur de référence
Zn	NON	Système gastro-intestinal	Douleurs abdominales ou épigastriques, nausées, vomissement, ulcères, constipation	Environnement urbain ou rural :<1 µg/m³ Site industriel: jusqu'à 15,7µg/m³ (ASTDR, 1994)
РЬ	OUI	Système nerveux	Troubles neurocomportementaux, et psychomoteurs, paralysie des membres supérieurs, paresthésie, encéphalopathie saturnine	0,5 μ/m <sup>3</sup> (OMS, 2005)
		Système rénal	Insuffisance rénale	
		Système cardiovasculaire	Hypertension artérielle	
		Système thyroïdien		

		Système sanguin	Anémie	
		Système osseux (chez les enfants)		
		Système immunitaire (possible)		
		Système nerveux	Neuropathie périphérique	
Cd	OUI	Système rénal	Dysfonctionnement rénal	5 10 <sup>-3</sup> μg/m <sup>3</sup>
Cu	001	Système respiratoire	Diminution des capacités respiratoire, Rhinite, bronchite, emphysème	(OMS,2005)

Tableau I.3 : Effets dangereux suite à l'ingestion de Pb, Zn et Cd et valeurs de références

Elément	Effet cancérigène	Systèmes ou organes sensibles	Pathologie	Dose de Référence (RfD)		
		Système gastro-intestinal	Crampes d'estomac, nausées, vomissement,	0,3 mg/kg/j (ATSDR,1994 et		
Zn	Non	Système sanguin	Anémie	USEPA, 2005b)		
		Système immunitaire				
	L'effet	Système nerveux	Troubles neurocomportementaux, et psychomoteurs, paralysie des membres supérieurs, paresthésie, encéphalopathie saturnine			
DI.	cancérigène n'a pas été	n'a pas été	Dh n'o nos ótó	Système rénal	Insuffisance rénale	3,5 10 <sup>-3</sup> mg/kg/j
Pb				Système cardiovasculaire	Hypertension artérielle	(OMS, 2006 et JECFA, 1993)
	l'Homme	Système thyroïdien		JECFA, 1993)		
	1 Hommic	Système sanguin	Anémie			
		Système osseux (chez les enfants)				
		Système immunitaire (possible)				
		Système gastro-intestinal				
		Système rénal	Dysfonctionnement rénal	1,0 . 10 <sup>-03</sup> (OMS 2006 et USEPA, 2005b) 2,0 10 <sup>-4</sup> mg/kg/j (ATSDR, 2004)		
Cd	Non	Système osseux	Ostéoporose, ostéomalacie, maladie « Itai Itai » au Japon			

## II. Spécificité de la province Maghrébine

#### II.1. La minéralisation

La province Maghrébine, Tunisie, Algérie et Maroc, est située en bordure septentrionale de

la plateforme saharienne (Figure I.2), et est composée de deux sous-provinces principales:

- la province tellienne au nord : Les chaines telliennes s'étendent, Suivant une direction globalement E-W, du nord du Maroc jusqu'à l'extrême NW de la Tunisie. Leur mise en place a eu lieu au Céno-mésozoïque lors des phases orogéniques alpines et pyrénéennes. Elle est essentiellement constituée de terrains sédimentaires et présents des manifestations volcaniques et métamorphiques. La province tellienne est connue par ses gisements polymétalliques : Fe, Pb, Zn, W, Sn, Hg, Cu, etc. essentiellement filoniens dans des encaissants plutôt siliceux (ANPM, 2009).
- la province atlasique au sud : La chaine atlasique est une chaine intracontinentale formée au tertiaire. Elle s'étend du Maroc à la Tunisie et constitue l'avant pays déformé de la chaine tellienne. Les sédiments sont autochtones, d'âge méso-cénozoïques et du type plateforme continentale où le volcanisme est rare. Les gisements sont essentiellement à Pb-Zn de type MVT, stratiforme ou à remplissage de fractures et de karsts dans des encaissants carbonatés.

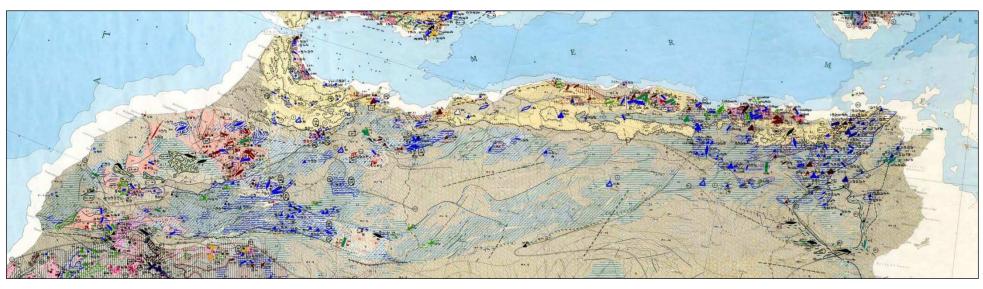
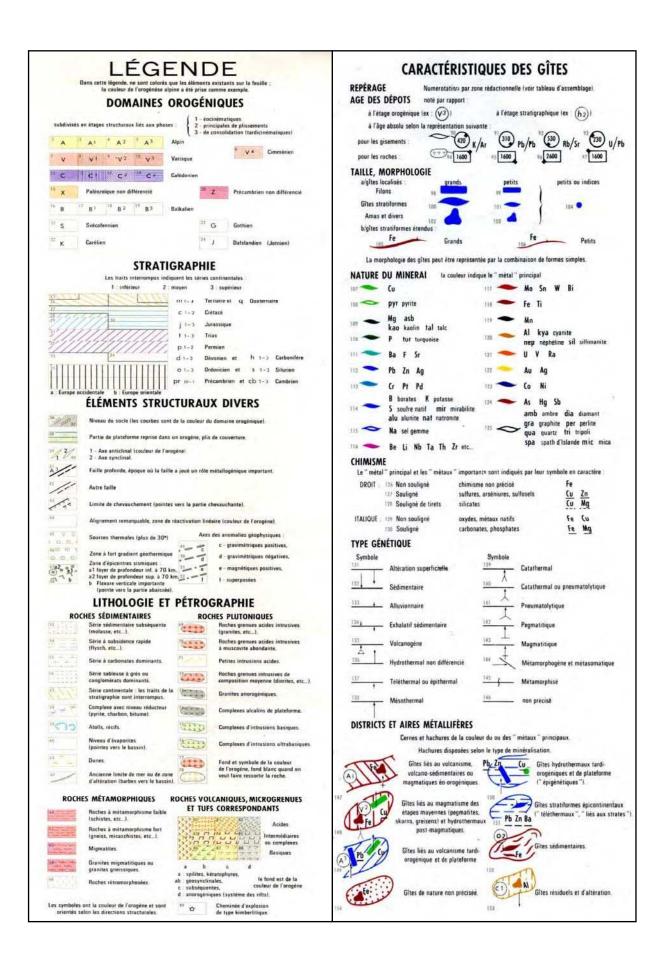


Figure I.2 : Carte métallogénique de la province Maghrébine (UNESCO et BRGM,1968-1982)



#### II.2. Le climat

La carte bioclimatique de la méditerranée (figure I.3) montre que les bordures de la méditerranée sont majoritairement soumises à un climat méditerranéen avec différentes nuances. Notons que le climat méditerranéen est caractérisé par:

- la succession des saisons pluvieuses et sèches.
- des faibles précipitations annuelles moyennes (entre 200 et 500 mm/an) distribuées souvent sur des épisodes pluvieux intenses et des périodes de sécheresse principalement en saison estivale.
- des températures élevées en été et relativement douces en hiver
- des vents forts pendant plusieurs jours de l'année

De plus, certaines régions de l'extrême nord africain, et sud européen ont des tendances plutôt humides avec des précipitations qui dépassent les 500 mm/an et une saison sèche courte.

La Tunisie nord orientale, le NW algérien, l'extrême sud espagnol et italien présentent un climat thermoméditerranéen avec une longue saison sèche et des précipitations peu abondantes.

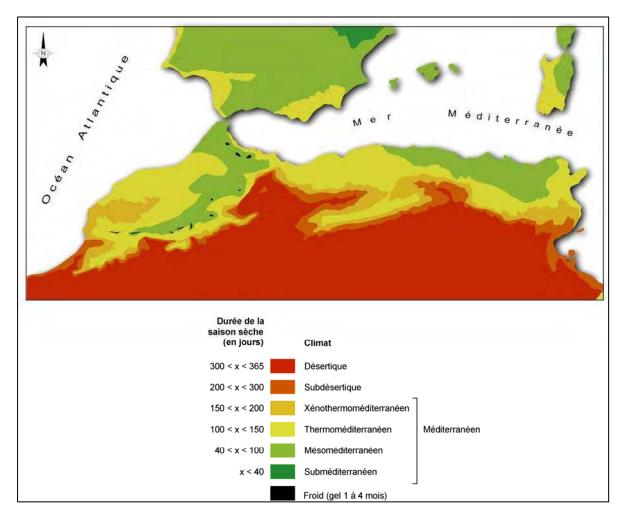


Figure I.3: Carte climatique des pays du Maghreb (UNESCO-FAO, 1963)

L'Afrique du nord se caractérise par la présence de nombreux gisements polymétalliques à dominante Pb-Zn situés dans un contexte lithologique et climatique similaire. Dans *la province maghrébine*, la combinaison des conditions climatiques et de l'environnement lithologique vont favoriser le transfert particulaire de la contamination. En effet :

- en contexte carbonaté, le pouvoir tampon des carbonates limite le passage en solution des métaux mais favorise le transfert hydrique particulaire lors des évènements pluvieux torrentiels.
- sous un climat méditerranéen, la longue durée de la saison sèche avec l'occurrence de vents forts même intermittents, rendent le transfert éolien prépondérant par rapport au transfert hydrique particulaire. En particulier, les gisements de la province atlasique, ou l'environnement carbonaté et la sécheresse du climat implique l'absence de DMA et la dominance des transferts hydriques particulaire et surtout éolien comme mécanismes de la dispersion de la contamination métallique vont induire des impacts sur l'environnement et sur la population spécifique à ce contexte maghrébin.

#### III. Problématique scientifique dans le contexte spécifique de la Tunisie

#### III.1. L'Exploitation minière en Tunisie

L'histoire de l'exploitation minière en Tunisie date de plus de deux mille ans et s'étend sur les époques berbère, romaine, arabe, française et actuelle. Cette activité a connu sont essor à partir de la fin du 19ème siècle (1880) quand les opérations d'extraction à grande échelle ont commencé (Sainfeld, 1952).

Ainsi la production de Plomb et Zinc remonte à 1892, celle des phosphates a débuté en 1896 et celle du fer a commencé en 1906 (ONM, 2005).

La production nationale totale a été évaluée par l'ONM en 2005 à 55 MT de fer, 324 MT de phosphates, 2.3 MT de plomb et 2 MT de zinc.

Aujourd'hui le plomb et le zinc ne sont plus exploités en Tunisie, malgré les travaux d'exploration menées en 2007 par les compagnies Albidon Ltd. et Maghreb Minerals, pour des raisons de rentabilité.

Les ressources minières exploitées en Tunisie se limitent aujourd'hui au fer (Mines de Jrissa et Tamra) et aux phosphates (bassin de Gafsa).

En tenant compte des minerais exploités et de leurs contextes géologiques, on distingue 3 provinces métallogéniques (Figure I.4 et I.5 et tableau I.4):

- la province tellienne polymétallique
- la province atlasique à Pb, Zn
- la province phosphatée

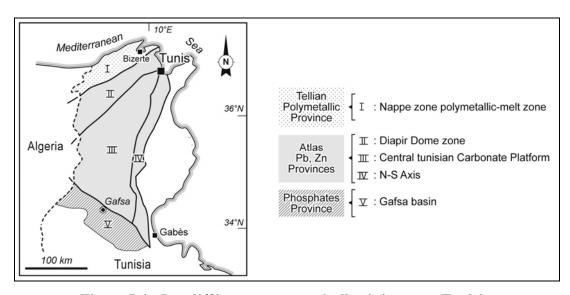


Figure I.4 : Les différentes zones métallogéniques en Tunisie.

Tableau I.4: Principaux gisements miniers en Tunisie

Province	Zone	Surface (km²)	principaux gisements	Tonnage
Tellienne polymétallique	Zone des nappes	6000	Tamera Fe, J. Hallouf-Bou Aouane Pb-Zn, Oued El Maden et El Arja Hg et Fej Hsine Pb-Zn.	1 MT Pb, 272 000 T Zn, 9 MT Fe, 74 000 T Hg
Pb-Zn	Zones des dômes	8000	Bougrine , Fej Lahdoum , Boujabeur Jerissa	1 MT Pb, 1,5 MT Zn, 82 000 T CaF <sub>2</sub> , 400 000T BaSO <sub>4</sub> , 41 MT Fe
	Plateforme carbonatée de la Tunisie centrale	34000	Loridga Trozza Touila Labeid Chaambi Ajred	120 000 T de Pb 20 000 T de Zn.
	Axe N-S (province fluorée)		Hammam Zriba Hammam Jdidi J. Ressas Sidi Taya	791 000T spath Fluor, 130 000 T Barytine, 163 000 T de Pb, 165 000 T de Zn.
phosphatée	Bassin de Gafsa	-	Métlaoui, Moularès, Redeyef, M'dhilla.	324 MT
	Bassin nord		Kalaa Khasba, Sraa Ouertene	

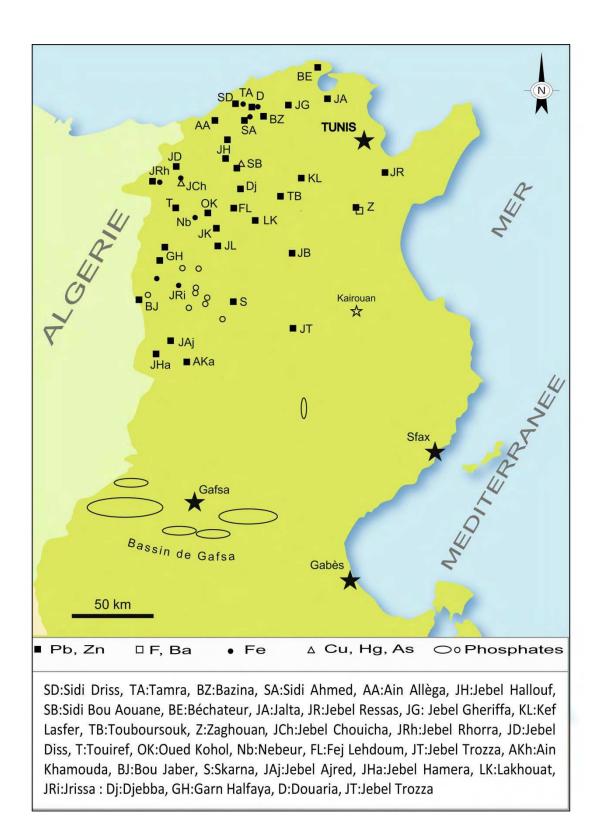


Figure I.5 : Carte métallogénique de la Tunisie (DGTP,1922)

#### III.2. Problématique scientifique et choix du site de Jebel Resssas

La fermeture de la quasi-totalité des sites miniers à la fin du 20<sup>ème</sup> siècle a laissé à l'abandon sans aménagement d'importantes quantités de déchets miniers qui sont soumis aux aléas climatiques spécifiques au bassin méditerranéen.

Ces anciens sites d'extraction et de traitement du minerai (minéralurgie et métallurgie) constituent des zones de forte pollution diffuse où les teneurs en métaux peuvent atteindre 10<sup>2</sup> à 10<sup>4</sup> fois les teneurs normales d'un sol. A cela s'ajoutent d'importantes quantités de déchets miniers riches en métaux lourds telsque Pb, Zn Cd Sb, As et Hg (Sebei, 2007; Boussen, 2010; Chakroun et al., 2006; Ghorbel et al., 2010).

En particulier, les anciens sites miniers de Pb-Zn posent un problème environnemental de contamination métallique. En effet, les gisements à Pb-Zn sont plus nombreux que les autres types de gisements et sont distribués sur l'ensemble du nord du pays où se concentre la majorité des ressources d'eau de surface et de vastes étendues de terres agricoles de la Tunisie.

De plus, sur plusieurs de ces sites miniers, même après la fermeture des mines, des populations habitent encore les anciens villages miniers. Un risque sanitaire pour ces populations exposées à Pb, Zn et Cd peut se poser.

Plusieurs études ont été réalisées pour la caractérisation des déchets des mines de Pb-Zn et leurs produits d'altération dans le bassin versant de la Mejerda et l'étude de leurs impacts sur l'environnement : Lakhouat, Jalta (Boussen, 2010), Jebel Hallouf Sidi Bou Aouane (Chakroun et al., 2006), Touiref (Othmani et al., 2006), et les déchets des bassins versants des oueds Mellègue et Tessa (Sebai, 2007; Sebei et al., 2006). Tous ces rejets sont situés dans un climat subhumide où la pluviométrie oscille entre 600 et 1000 mm par an. Ce travail, sera consacré à l'étude du site minier de Pb- Zn de Jebel Ressas, situé en Tunisie nord-orientale, où le climat est méditerranéen semi-aride, avec une pluviométrie moyenne annuelle de 575 mm.

Le site minier de Jebel Ressas a été parmi les importantes exploitations de Pb et Zn de la Tunisie. Ce site est caractérisé par de volumineux terrils de déchets de laverie issus du processus de concentration du minerai. Ces déchets miniers abandonnés subissent les conditions climatiques méditerranéennes caractérisées par de longues périodes sèches entrecoupées par des épisodes pluvieux intenses, des vents violents et par des températures élevées surtout en été.

La présence d'une population vivant dans l'ancien village minier et dans les exploitations agricoles environnante pose le problème du transfert de la contamination vers les compartiments de l'environnement (air, eau, sols) et de l'exposition des populations aux métaux toxiques.

Caractériser le niveau d'exposition de la population locale permet d'évaluer un risque sanitaire au regard des seuils de toxicité déterminés par les institutions de veille sanitaire tel que l'OMS ou l'USEPA. L'analyse de l'exposition doit s'intéresser non seulement aux taux d'exposition mais aussi à la spéciation des métaux qui détermine leur solubilité et leur disponibilité environnementale.

La variabilité matricielle et climatique détermine des conditions physico-chimiques particulières qui influencent à la fois les processus de dispersion de la contamination métallique et sa disponibilité environnementale.

Dans ce travail, « Contamination métallique issue des déchets de l'ancien site minier de Jebel Ressas : modélisation des mécanismes de transfert et conception de cartes d'aléa post-mine dans un contexte carbonaté et climat semi-aride. Evaluation du risque pour la santé humaine », nous étudions le transfert des contaminants métalliques depuis leur source vers les différents compartiments de l'environnement et l'être humain. La complexité du processus nous amène à faire appel à des disciplines différentes pour aboutir aux objectifs suivants :

- la caractérisation de la source de contamination (déchets de laverie) et la spéciation des métaux
- l'analyse par la modélisation des mécanismes de transfert vers les compartiments de l'environnement puis la spatialisation pour la prédiction de l'étendue de l'aire contaminée;
- l'analyse de l'exposition humaine et l'évaluation du risque sanitaire.

Contrairement aux études d'impact classiques qui établissent un état des lieux statique en instant donné, notre démarche, prédictive et dynamique, permet de traiter la problématique de contamination métallique dans son intégralité et permet d'aboutir à une quantification spatialisée de la dispersion de la contamination au cours du temps.

Le site minier de Jebel Ressas choisi pour cette étude est situé en Tunisie Nord-Orientale. Les minéralisations est sous forme gisements hydrothermaux fissuraux et karstiques à Pb et Zn encaissés dans les carbonates périrécifaux de la formation Ressas d'âge tithonique.

Les exploitations, en carrière et en mine, ont été arrêtées en 1951 laissant toutes les anciennes constructions et déchets d'exploitation et de traitement sur le site.

Suite à une étude préliminaire (Ghorbel, 2007), nous avons constaté que:

- les déchets de laverie ont été stockés sur 3 terrils faisant entre 6 et 10 m de hauteur. Deux terrils de couleur rougeâtre ont des surfaces planes. Une grande partie du troisième, plus grand et de couleur grise, a été transportée pour être utilisé dans des travaux à l'extérieur du site. Les volumes estimés des déchets sont variables entre 56.000 et 310.000 m<sup>3</sup>,
- aucune espèce végétale n'est observée sur les terrils et aucun aménagement spécifique n'a été conçu d'où leur exposition totale à l'altération physique et chimique depuis des décennies,
- jouxtant les déchets, se trouvent le village habité « Jebel Ressas », et des terres agricoles pour la culture des oliviers et des arbres fruitiers.
- les teneurs moyennes en Pb, Zn et Cd dépassent les normes dans les sols.

Le site de Jebel Ressas, avec ces différents cadres climatique, géologique et anthropique, est représentatif de la majorité des sites miniers de la province atlasique tunisienne. Il alors choisi pour être le site pilote pour notre méthodologie.

# **Chapitre II**

## PRESENTATION DU SITE D'ETUDE

#### Chapitre II: Présentation du site d'étude

#### I. Description du site : géographie

L'ancien site minier de Jebel Ressas est situé à 30 kilomètres au sud de la ville de Tunis. Il comprend, dans le massif montagneux de Jebel Ressas, le site d'extraction qui fut en activité jusqu'à 1951, et, au pied du massif, à quelques centaines de mètres vers l'ouest, le site de traitement du minerai où ont été laissés trois terrils de déchets de laverie. Le village de Jebel Ressas s'est développé entre la montagne et les terrils. La plaine est essentiellement occupée par des terrains agricoles (Figure I.1).

Le site d'étude s'étend sur une superficie d'environ 4 km² entre le flanc ouest de la montagne et l'oued Hma et entre l'extrémité nord du village jusqu'à l'extrémité sud de la montagne.

Le massif est très abrupt et formé de deux parties : le grand Ressas culminant à 793 m et le petit Ressas à 521 m. Le massif domine la plaine de Mornag faisant entre 60 et 150 m d'altitude.

Le réseau hydrographique est très peu développé; seuls quelques ruisseaux intermittents existent entre la montagne et le cours d'eau principal : Oued Hma qui rejoint Oued Méliane débouchant au Golfe de Tunis (Figure I.2).

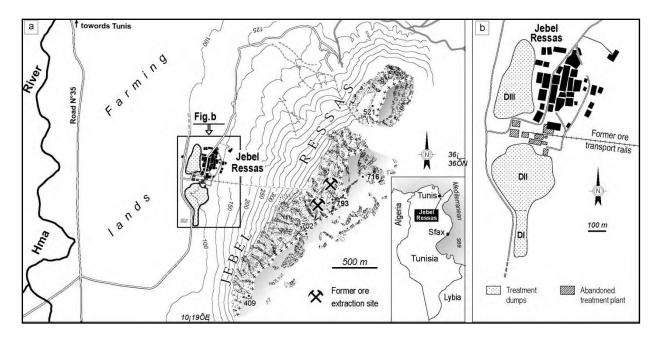


Figure II.1 : Localisation géographique de l'ancien site minier et du village de Jebel Ressas

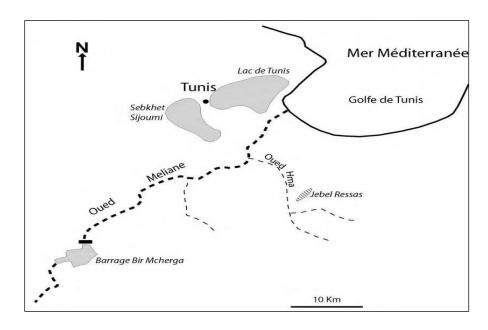


Figure II.2 : Principal réseau hydrographique (représenté en pointillés) drainant la plaine de Mornag et la localité de Jebel Ressas vers le golfe de Tunis

#### II. Cadre climatique

La zone d'étude appartient à la région où règne un climat thermoméditerranéen. Les données que nous présentons ci-après sont fournies par l'Institut National de Météorologie (INM) pour les périodes comprises entre 1996 et 2006 et entre 1981et 2005.

#### II.1. Température

Les températures moyennes mensuelles sont maximales en juillet (28°C) et en août (28,7°C), et minimale en janvier (12,1°C) (Figure I.3). Les durée d'ensoleillement nettement plus longues en été, réchauffent l'air et contribuent à l'élévation des taux d'évaporation moyenne en été jusqu'à 238 mm en juillet contre 68 mm en janvier.

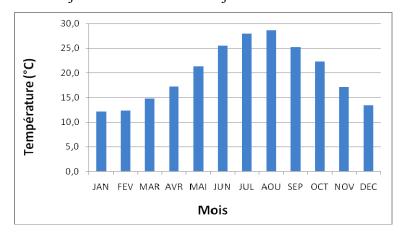


Figure II.3 : Températures mensuelles moyennes à la station de Tunis-Carthage sur la période entre 1996 et 2006 (source INM)

#### II.2. Vent

Les mesures au niveau de la station de Tunis Carthage montrent que les vents dominants soufflent W à NW (Figure I.4). La vitesse moyenne annuelle du vent est de 3,3 m/s pour la période entre 1996 et 2006. En général, en saison hivernale, les vents W à NW sont plus forts et plus fréquents. En été les vents soufflent principalement de l'est et sont moins forts et moins fréquents mais chauds et secs.

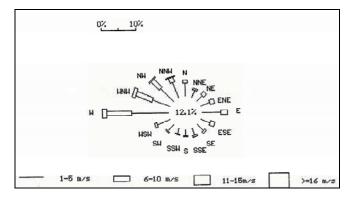


Figure II.4 : Rose des vents à la station Tunis-Carthage sur la période entre 1981 et 2005 (source INM).

Fréquence : directions du vent en % par tranche de vitesse

12,1%: Fréquence du vent calme <1m/s Nombre total d'observations horaires :214704

#### II.3. Précipitations

Les précipitations annuelles moyennes calculées entre 1996 et 2006 sont comprises entre 320 et 1011 mm/an. Les précipitations mensuelles sont très variables d'une année à l'autre suite à l'occurrence de pluies torrentielles de courtes durées caractéristiques du climat méditerranéen. Le calcul des précipitations moyennes mensuelles sur 10 ans montre que les mois de décembre et janvier sont les plus pluvieux de l'année avec respectivement 71 et 90 mm. Juillet est le mois le plus sec avec 4 mm en moyenne (Figure I.5).

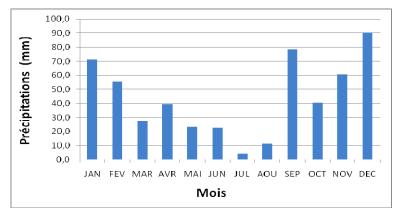


Figure II.5 : Précipitations mensuelles moyennes à la station de Tunis-Carthage sur la période entre 1996 et 2006 (source INM)

#### III. Contexte géologique

Jebel Ressas est l'avant dernier massif de la dorsale tunisienne qui est caractérisée par un alignement de massifs jurassiques bordés sur leurs flancs orientaux par la faille de Zaghouan. Une autre faille importante NW-SE sépare le grand et le petit Ressas par un col d'effondrement. D'autres fractures méridiennes apparaissent surtout au grand Ressas.

Selon Sainfeld (1952), le massif de Jebel Ressas est une extrusion jurassique qui a affleuré à travers la couverture crétacée en entrainant des niveaux triasiques. Les terrains en affleurement portés sur la carte géologique de Bujalka et al (1971) (Figure I.6) sont :

- Le Trias, extrusif, formé de gypse bariolé à quartz bipyramidal, de calcaires dolomitiques et d'argiles.
- Le Jurassique formé de la base au sommet de :
  - marnes et de marno-calcaires
  - calcaires noirs à rognons de silex
  - calcaires gris et calcaires dolomitiques bruns
- Le Crétacé composé d'alternance de marnes et de marno-calcaires
- La plaine ouest est formée de terrasses et d'alluvions quaternaires sur lesquels sont déposés les déchets de traitement du minerai.

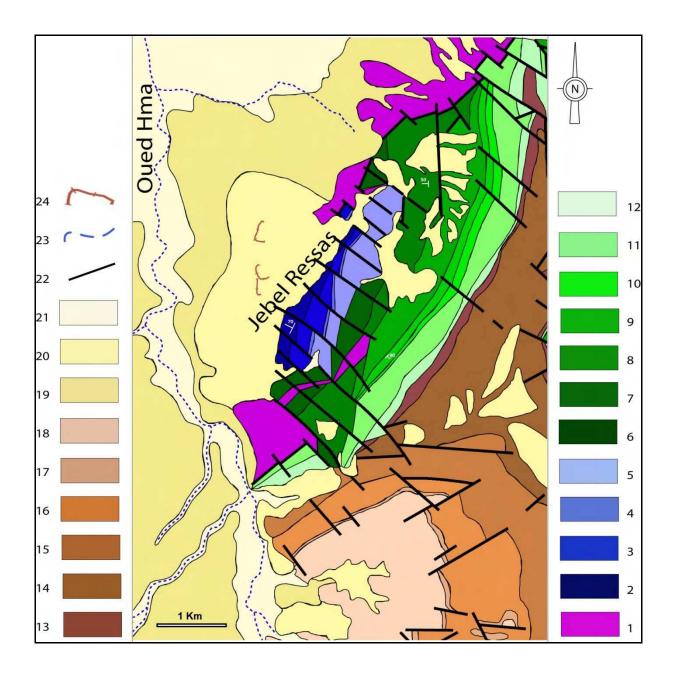


Figure II.6: Extrait de la carte géologique de Grombalia 1:50 000 (Bujalka et al., 1971)
1: Trias, 2: Hattangien-Sinémurien, 3: Pliensbachien, 4: Domérien-Kimméridgien,
5: Tithonique, 6: Valanginien-Hauterivien, 7: Barrémien, 8: Aptien, 9: Albien, 10: Cénomanien, 11: Turonien-campanien inférieur, 12: Maestrichien, 13: Paléocène, 14: Eocène, 15: Oligocène inférieur, 16: Oligocène supérieur, 17: Burdigalien, 18: Vindobonier,
19: Terrasses et alluvions anciennes, 20: Eboulis et sols éluviaux, 21: Alluvions, 22: Failles,
23: Réseau hydrographique, 24: Terrils de déchets.

#### IV. Minéralisations et historique des travaux miniers

Les minéralisations à Pb et Zn sont localisées principalement sur le flanc ouest du massif, dans les calcaires récifaux du Jurassique terminal (Sainfeld, 1952, Jemmali et al., 2011) (Figure I.7).

Elles se présentent sous formes d'amas séparés dans le massif et alignés sur environ 2,5 km de distance. Ces gisements résultent essentiellement de l'imprégnation des zones bréchiques et de remplissage des vides karstiques dans les calcaires.

#### Le minerai est constitué par :

- la galène (PbS), généralement fine (5 à 30μm), n'est pas argentifère,
- la sphalérite (ZnS), fine sauf dans les géodes ou elle apparaît en cristaux jaune miel,
- la smithsonite (ZnCO<sub>3</sub>), polymorphe, compacte, concrétionnée, ou feuilletée souvent accompagnée d'hémimorphite (Zn<sub>4</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (OH)<sub>2</sub> .H<sub>2</sub>O) et d'hydrozincite (Zn<sub>5</sub>(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>6</sub>) en masses, en stalactites et en fine aiguilles dans les géodes.

#### Les minéraux associés sont :

- la pyrite (FeS<sub>2</sub>), rare, très fine et comportant des inclusions de galène, la calcite (CaCO<sub>3</sub>), principal minéral de la gangue.

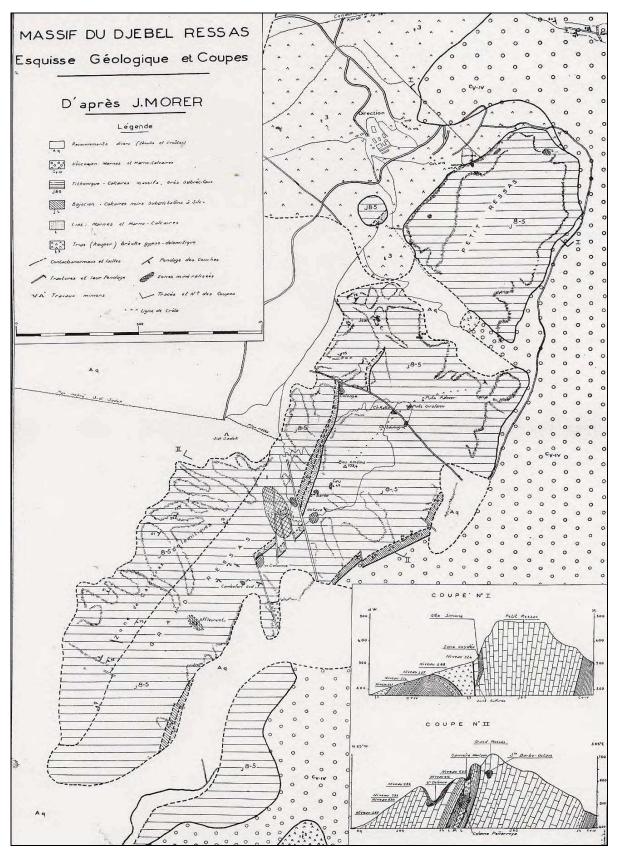


Figure II.7 : Localisation des minéralisations dans le Massif de Jebel Ressas (Sainfeld, 1952)

Les minéralisations métallifères de Jebel Ressas ont été exploitées depuis les époques romaines et Arabes.

Pendant la deuxième moitié du 19<sup>ème</sup> siècle, les anciens travaux ont été repris avec l'installation d'une fonderie et d'une laverie à gravimétrie au pied du massif.

De 1895 à 1930, les travaux ont particulièrement avancé avec les nouvelles découvertes et exploitations en carrière et en mine. En 1937 un atelier de flottation a été installé.

Les déchets de laverie, constitués par la fraction stérile du minerai broyé, ont été déversés en suspension dans l'eau, juste à coté de l'usine de traitement, sous forme de terrils à sommets plats.

Au final, les déchets de la laverie ont été stockés en trois terrils (DI, DII, DIII) qui occupent une surface totale d'environs 12 ha.

Le village minier qui a gardé le nom de « Laverie » s'est développé depuis la 2<sup>ème</sup> moitié du XXème siècle à côté de la laverie entre la montagne et le terril DIII (Figures II.8, II.9, II.10). A une distance de 1,5 km au nord se trouvent les lieux dits « La Fonderie » et « Le Bureau » où se trouvent les vestiges de l'administration et des bâtiments où le minerai était fondu pour extraire le métal (Figure II.11).



Figure II.8 : Extrait de la photo aérienne n°315 de 1947. Il montre la laverie et ses déchets stockés en terril à sommet plat en blanc et gris clair

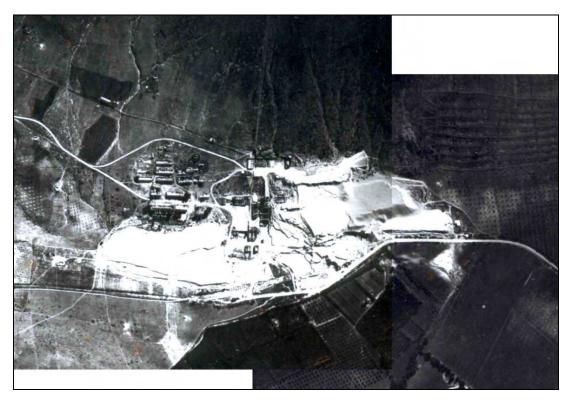


Figure II.9 : Extrait de l'assemblage des photos aériennes n°45 et 47 de 1963.

La surface couverte par les terrils de déchets (en blanc et gris clair) devient plus grande



Figure II.10 : Extrait de la photo aérienne n°1184 de 1998.

Il montre l'état actuel du site minier avec la disposition des terrils de déchets et l'élargissement de l'agglomération de Jebel Ressas

#### V. Description du site à son état actuel

Actuellement les déchets d'exploitation et de laverie sont encore sur place. Les terrains agricoles sont étendus sur la plaine à l'est du site miniers. Le principal cout d'eau de ce site est Oued Hma à environs 1,7 km à l'ouest de la laverie. Cet Oued circule de sud vers le nord pour rejoindre Oued Méliane

Actuellement, la population est concentré essentiellement au village de Jebel Ressas à proximité immédiate du terril DIII de son coté est. Il compte quelques centaines d'habitants et comprend une école primaire, un dispensaire, un bureau de poste,

Plusieurs constructions sont en cours ce qui montre l'évolution démographique croissante.

Entre le site minier et Oued Hma, les terrains agricoles sont étendus sur plusieurs centaines d'hectare où la densité de la population est plus faible qu'au village.



Figure II.11: Etat actuel du site

Les trois terrils de déchets jouxtent le village de Jebel Ressas. Du coté ouest des terrils se trouvent des fermes et des terrains agricoles puis le cours d'eau oued Hma.

## **CHAPITRE III**

# CARACTERISATION DE LA SOURCE DE CONTAMINATION: LES DECHETS DE LAVERIE

## Chapitre III : Caractérisation de la source de contamination: les déchets de laverie I. Méthodologie

#### I.1. Echantillonnage des terrils de déchets

Pour obtenir un échantillon global représentatif de chaque terril des carottes ont été prélevées en différents points éloignés des bordures. Les carottes ont été prélevées manuellement en enfonçant manuellement dans les terrils des tubes en PVC de diamètre 7 cm.

Le contenu du tube est récupéré dans un même sac d'échantillon (Figure III.1). Finalement 5 carottes ont été prélevées.

Terril DI : 1 carotte de 2 m de profondeur est prélevée au centre du terril.

Terril DII: 1 carotte de 3 m de profondeur

Terril DIII : 3 carottes de 4 m de profondeur. Ces trois carottes ont été mélangées pour en faire un échantillon unique représentatif.

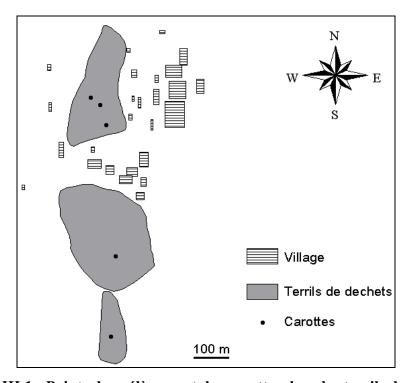


Figure III.1 : Points de prélèvement des carottes dans les terrils de déchets

#### I.2. Préparation des échantillons

Au laboratoire les échantillons de déchets ont été séchés à l'air libre, tamisés à 2mm, puis quartée pour les différents types d'analyse. Enfin tous les échantillons ont été conservés dans

un endroit sec dans des sacs en plastiques et des piluliers en polyéthylène portant leurs références.

#### I.3. Mesures des paramètres physiques des déchets

#### Granulométrie

Les échantillons des carottes C1, C2 et C3 ont été soumis à un tamisage par voie humide pour séparer la fraction fine. Après séchage, nous avons effectué l'analyse granulométrique, par voie sèche, de la fraction grossière sur une colonne de tamis de la norme AFNOR. La série décroissante des mailles de tamis en µm est : 2000, 1400, 1000, 500, 400, 355, 250, 180, 125, 90 et 63.

Des échantillons de l'horizon superficiel du terril DIII ont été prélevés sur chaque type parcelle sur une superficie de plusieurs centaines de cm² sur une épaisseur de 1 à 2 cm. Les échantillons ont été mélangés pour obtenir un échantillon représentatif de l'ensemble du terril. Pour effectuer la granulométrie, un échantillon d'environ 500 g a été quarté. Ensuite la fraction graveleuse de taille supérieure à 2 mm a été éliminée.

Dans cette étude il s'agit de déterminer la granulométrie « apparente » de l'échantillon contrairement à la granulométrie réelle qui implique la dissociation totale des particules.

La détermination de la granulométrie apparente a pour objectif d'analyser la distribution granulométrique des particules à la surface du terril qui vont être mobilisées par saltation et agir par sandblasting sur la surface pour mettre les particules et les agrégats fins en suspension dans l'air.

Nous avons procédé dans un premier temps à un tamisage par voie sèche sur une colonne de tamis AFNOR de mailles en µm : 1600, 1250, 630, 400, 355, 250, 200, 150, 125, 80 et 63 µm. Ensuite, la fraction inférieure à 63µm a été analysée avec un granulomètre laser Coulter LS 200 avec un intervalle de mesure allant de 0,393 à 905,1 µm. L'échantillon est introduit en suspension dans l'appareil sans activer l'agitation aux ultrasons. Les résultats de la granulométrie laser sont donnés en % de volume de particules pour chaque diamètre.

#### Mesure de la densité

La densité réelle des déchets a été mesurée au laboratoire. D'abord une quantité de déchets été pesée à la balance ensuite elle à été introduite dans une éprouvette contenant un volume V1 d'eau qui sera. V2 est le volume du mélange eau-déchets.

La densité le rapport de la masse et du volume de l'échantillon. Cette mesure a été reproduite 3 fois par terril pour calculer la densité moyenne.

#### Mesure de la perméabilité

La perméabilité a été mesurée au laboratoire avec 5 échantillons, en s'inspirant de la méthode décrite par Tobias (1968). On a mesuré la quantité d'eau qui passe à travers l'échantillon cylindrique de déchet par unité de temps. Les échantillons sont de diamètre 4,5 cm et de hauteur 20 cm.

La perméabilité est calculée par la loi de Darcy :

$$K = Ol/h.S$$

K : perméabilité (cm/min)Q : quantité d'eau ayant percolé l'échantillon durant un intervalle de temps défini (cm³/min)l : longueur de l'échantillon (cm)h : hauteur totale de l'eau (cm)S : surface de l'échantillon (cm²)

#### Mesures de la cohésion

La cohésion a été mesurée in situ en 25 points au niveau des premiers centimètres à la surface des trois terrils de déchets. Nous avons utilisé un cohésimètre GEONOR H60 qui peut mesurer des cohésions entre 0 et 260 kPa avec une précision de 1kPa.

#### I.4. Analyses chimiques des déchets

Les trois échantillons de carottes ont été analysés au laboratoire ALS MINERALS.

#### I.5. Analyses minéralogiques des déchets

La caractérisation minéralogique a concerné aussi bien les minéraux porteurs de métaux que les minéraux de gangue. Dans un premier temps nous avons procédé à la caractérisation globale de l'échantillon par Diffractométrie des Rayons X (DRX) et à l'identification des phases métallifères en section polie au microscope métallographique, au MEB et à la microsonde électronique. Pour préparer des sections polies d'échantillons enrichis en phases métallifères des séparations densimétriques ont été effectuées.

#### Séparations densimétriques

L'échantillon est ajouté dans un entonnoir rempli de bromoforme (d = 2,9). Après agitation et repos, le décantât est récupéré, lavé à l'éthanol puis séché sous une hotte.

La fraction lourde servira à la confection de sections polies qu'on analysera au MEB et à la microsonde.

#### Diffractométrie des rayons X

Les analyses aux rayons X ont été effectuées avec un diffractomètre XPERT-PRO en utilisant une anticathode en Co. Le temps d'acquisition est de 20 s sur un intervalle angulaire (teta) entre 1° et 30° avec un pas de 0,01. Le dépouillement des spectres obtenus est réalisé à l'aide du logiciel HIGH SCORE PLUS annexé à la machine.

Après avoir éliminé les bruits de fond et effectué un lissage avec une fonction polynomiale cubique, les pics sont identifiés en se référant à la base de données du logiciel. Toutefois cette méthode demeure inadaptée pour l'identification des phases minérales mineures (<1%).

#### Microscopie electronique

Le MEB couplé à un système EDS (Energy Dispersive Spectrometry) offre la possibilité d'observer la topographie des grains en mode électrons secondaires pour en déduire les types d'association des minéraux dans les grains polyphasés et éventuellement les figures d'altérations. Le mode rétrodiffusé renseigne sur la composition chimique du minéral. Plus le numéro atomique moyen d'un composé est élevé plus il apparait blanc sur les images MEB. Ces analyses ont été réalisées sur des grains et des sections de la fraction lourde avec un MEB du type JEOL JSM 6360 LV couplé à un système EDS du type PGT qui sert à identifier les éléments chimiques au point de l'analyse en se basant sur leurs rayonnements X. La tension du faisceau est fixée à 20kV et la chambre est maintenue à vide.

#### Analyses à la microsonde électronique

Ces analyses ont été réalisées avec un appareil du type CAMECA SX50 avec automatisation SAM'x. Deux programmes différents ont été utilisés selon qu'on analyse les sulfures ou les autres minéraux classés comme étant des oxydes. Pour les sulfures, la tension d'accélération est de 25kV et le courant est de 20nA. Le temps d'acquisition est fixé à 15 s pour tous les éléments sauf le Cd pour le quel ce temps est prolongé à 30 s pour diminuer la limite de détection de cet élément.

Pour les oxydes, la tension et l'intensité sont respectivement de 15kV et de 10nA. Le temps d'acquisition est de 15 s. Un autre programme a été conçu pour le Cd dans les oxydes avec 25 kV et 40 s de temps d'acquisition. La prolongation des temps d'analyse pour le Cd permet d'avoir des concentrations précises et significatives en diminuant la limite de détection.

### II. Caractérisation physique des déchets de laverie

#### Granulométrie

La première séparation granulométrique de la fraction inferieur à 63µm montre la dominance de celle-ci dans les trois carottes notamment dans le terril DII où elle représente 84% de l'ensemble de l'échantillon (Tableau III.1 et figures III.2).

Tableau III.1 : Pourcentage de la fraction inférieure à 63 μm.

Echantillon	Fraction inférieure à 63µm (%)
C1	54,6
C2	84
C3	64,2

La granulométrie par voie sèche de la fraction grossière des échantillons de carottes montre une distribution très similaire avec la dominance des sables fins.

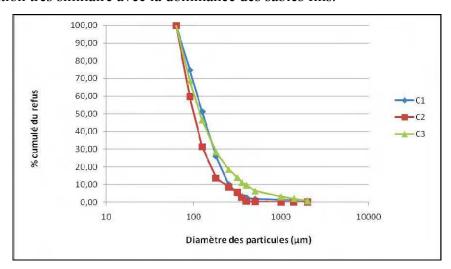


Figure III.2 : Distribution granulométrique de la fraction superieure à 63 μm dans les carottes

Les trois echantillons de dechets présentent des distributions tres similaires

L'analyse granulométrique de l'échantillon de surface du terril DIII (Figure III.3) montre la dominance des sables avec 85 % de sables de taille comprise entre 63 et 2000µm. c'est cette fraction qui va se mettre en saltation et qui va générer le flux d'émission. Les PM10 et les PM 2,5 representent respectivement 3,5 % et 1,4 % de l'échantillon total.

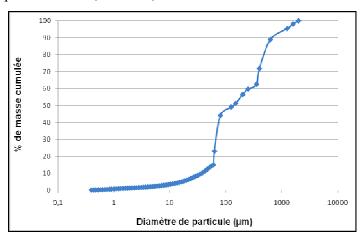


Figure III.3 : Distribution granulométrique de l'échantillon superficiel de DIII 85% de l'échantillon est formé des sable qui sera à l'origine du flux d'émission des Pm10 et des PM2,5

#### Densité

La densité moyenne de chaque terril sont donnée ci-dessous (tableau III.2). A l'exception de DII, les autres terrils sont plus dense que la calcite (d=2,7) et le quartz (d=2,65).

Tableau III.2 : Valeur de la densité dans les terrils de déchets de laverie.

	Densité (d)
DI	3,2
DII	2,7
DIII	3,5

#### Cohésion

La cohésion est très hétérogène sur un même terril et elle varie entre 15 et 124 kPa dans DI, entre 25 et 80 kPa dans DII et entre 12 et 68 kPa dans DIII (tableau III.3). L'augmentation de la cohésion des déchets est liée à un processus de cimentation des grains en présence d'eau et de carbonates et localement en surface à la formation de croûtes les âges des terrils semblent avoir une influence sur la cohésion du matériau sachant que DI est la plus ancien et le DIII est le plus récent.

Tableau III.3: Mesures de cohésion à la surface des 3 terrils de déchets

	Nombre de mesures	Cohésion moyenne (kPa)
DI	12	60
DII	7	53
DIII	6	43
Sol mou <sup>*</sup>	-	<25
Argile ferme* Argile raide* Argile très raide*	-	25-50
Argile raide <sup>*</sup>	-	50-100
Argile très raide <sup>*</sup>	-	>100

<sup>\*</sup>Association de Recherche en Géotechnique Marine (1987)

#### Perméabilité

Les mesures de la perméabilité moyenne des terrils sont données dans le ci-dessous (Tableau III.4). Les valeurs sont faibles, comprises entre les valeurs de perméabilité des silts  $(10^{-6} - 10^{-8})$  et des argiles  $(10^{-9})$ . Elles sont hétérogènes du fait de l'importante cohésion localement à la surface des terrils.

Tableau III.4 : Perméabilité mesurée sur les terrils de déchets

Terril	Perméabilité
Terrin	(m/s)
DI	3,77.10 <sup>-7</sup>
DII	1,26.10 <sup>-7</sup>
DIII	7,58.10 <sup>-8</sup>
Silts	$10^{-6} - 10^{-8}$
Argiles	<10-9

#### III. Composition chimique

L'analyse chimique des déchets (Tableau III.5) montre que Ca est l'élément dominant. Si et Fe sont présents en faibles concentrations.

Tableau III.5: Concentrations des éléments majeurs dans les déchets en % poids

	SiO2	Al2O3	Fe2O3	CaO	MgO	Na2O	K2O	TiO2	MnO	P2O5	SrO	BaO	P.F <sup>(*)</sup>
DI	3,83	0,4	1,12	47,6	0,59	0,05	0,03	0,02	0,03	0,01	0,54	0,11	36,8
DII	0,68	0,26	0,3	51,3	0,6	0,06	0,06	0,02	0,04	0,06	0,01	<0,01	39,4
DIII	5,61	0,75	1,48	40,4	0,99	0,05	0,13	0,05	0,04	0,14	0,15	0,19	36

<sup>(\*)</sup> Pertes au feu

L'analyse chimique des éléments métalliques a mis en évidence des concentrations très élevées de Pb, Zn et Cd qui dépassent de plusieurs ordres de grandeurs les seuils des concentrations dans les sols (Tableau III.6). Les trois terrils présentent des concentrations différentes de métaux. Le plus concentré est DIII.

Tableau III.6 : Concentration de Pb, Zn et Cd dans les carottes prélevées dans les terrils de déchets

Terril	Pb (% poids)	Zn (%poids)	Cd (mg.kg <sup>-1</sup> )
DI	1.27	5.20	170
DII	0.09	2.02	110
DIII	2.30	7.11	290
Concentration de référence pour les sols (Baize, 1997)	0.01	0.03	2

## IV. Composition minéralogique

## IV.1. Description des grains de déchets

L'aspect macroscopique des particules de déchets aussi bien de la fraction lourde que légère a été observé sous la loupe binoculaire. Le tableau ci-dessous récapitule l'ensemble des observations.

Tableau III.7 : Aspect des fractions séparées et description morphoscopique des grains métallifères

Description de la fraction lourde	- grains carbonatés blanc s sphéroïdaux - grains translucides blanchâtres et jaunâtres carbonaté ou non grains rouilles non carbonatés - grain mixtes en couleurs et en composition (partiellement réactifs avec HCI)	Terril DII - grains fins gris noirâtre d'éclat métallique non réactifs avec HCI - grains fins carbonatés vitreux ou translucides blanchâtres	Terril DIII  - Grains, carbonatés ou non ,translucides blanchâtres jaunâtres parfois orangés grossiers grains rouilles mats non carbonatés - grain mixtes en couleurs et en composition (partiellement réactifs avec HCl) - peu de grains carbonatés blanc sphéroidaux - peu de grains gris noirâtres
Photo de la fraction lourde		i me	Tm.
Photo de la fraction légère : généralement homogène est calcitique	1mm	1mm,	

La Diffractométrie des Rayons X (Figure III.4) a mis en évidence la calcite comme minéral majoritaire dans les trois terrils. DI et DIII présentent une minéralogie similaire avec la présence de l'hémimorphite. On note toutefois la présence de l'ankérite (Ca (Mg,Fe) (CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) dans DIII et de la dolomite (Ca Mg (CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) dans DI. DII présente en plus de la calcite du gypse. La sphalérite est le seul minéral métallifère détecté avec cette technique.

Des sections polies de la fraction dense des échantillons ont été observées avec le microscope métallographique.

L'échantillon de DII a montré la présence de sphalérite identifiable par ses réflexions internes rouges, ainsi que de pyrite et de galène.

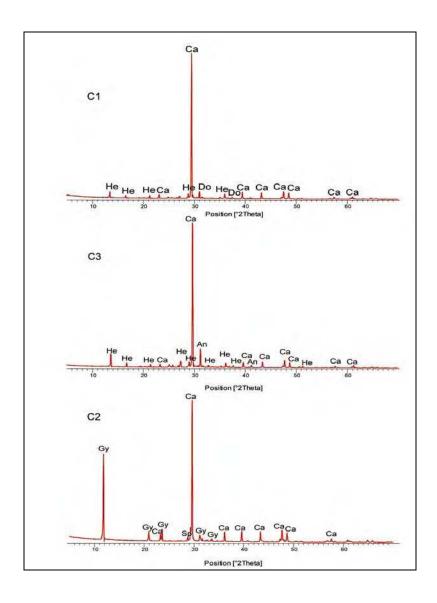


Figure III.4 : Diffractogrammes des RX sur les échantillons des carottes prélevées dans les terrils de déchets de laverie

Ca: Calcite, He: Hémimorphite, Do: Dolomite, An: Ankérite, Gy: Gypse, Sp: Sphalérite

L'observation des sections polies montre des dimensions de grains très variables de quelques microns à 1 mm et sont très souvent polyminéraux et de formes arrondies et anguleuses.

Dans DII les grains sont de tailles plus régulières et plus anguleuses que les deux précédents. On a pu identifier la pyrite, la galène, et la sphalérite souvent associées dans des grains carbonatés. La taille des sulfures disséminés est souvent de quelques microns. Quand ils sont monominéraux, leur taille peut dépasser 100 microns (Figure III.5).

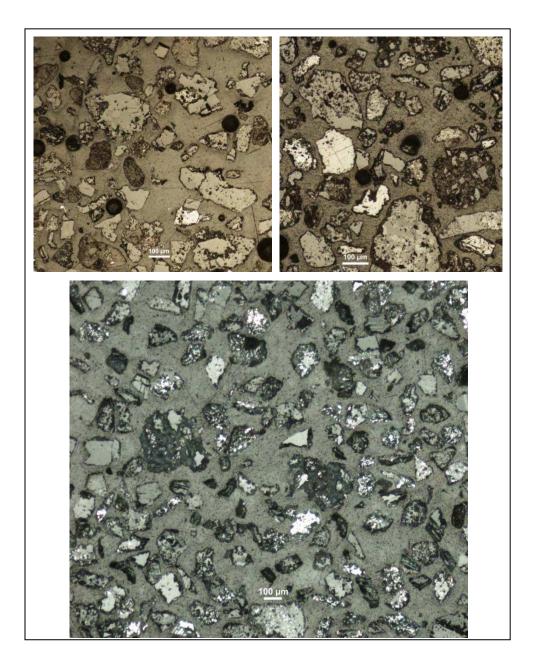


Figure III.5 : Observations au microscope métallographique des sections polies des échantillons de déchets de laverie

Dans la fraction dense, les minéraux transparents sont dominants par rapport aux sulfures (galène, sphalérite et pyrite)

La composition minéralogique globale des terrils de déchets de laverie est qualitativement récapitulée ci-dessous (Tableau III.8).

Tableau III.8 : Abondance qualitative des minéraux des déchets

Classe minéralogique	Minéral	Occurrence dans DI	Occurrence dans DII	Occurrence dans DIII
Carbonates	Calcite (CaCO <sub>3</sub> )	+++	+++	+++
Silicates	Hémimorphite	++	-	++
Sulfates	Gypse	-	++	-
Oxy- hydroxydes de Fe		++	-	++
Sulfures	Sphalérite (ZnS) Galène (PbS) Pyrite ((FeS <sub>2</sub> )	-	+++ + ++	+

<sup>(-)</sup> Le minéral n'a pas été observé ni détecté

#### IV.1.1. Phases porteuses de métaux dans les terrils DI et DIII

L'analyse de la composition des minéraux métallifères a été réalisée en couplant les résultats des analyses au MEB-EDS à ceux de la microsonde électronique (Tableaux III.9 et III.10).

#### Les carbonates :

Les minéraux métalliques sont présents essentiellement sous forme de carbonates : smithsonite (ZnCO<sub>3</sub>), cérusite (PbCO<sub>3</sub>), strontianite plombifère ((Sr,Pb)CO<sub>3</sub>). Ces carbonates peuvent être purs ou mixtes et associés à la calcite.

- L'hydrozincite est un carbonate de Zn hydraté et indiqué parmi les minéraux des gisements d'oxydation et exploité dans la mine de Jebel Ressas (Sainfeld, 1952). Sa structure lamellaire et fibreuse empêche sa distinction directe de la smithsonite. Ces deux minéraux se distinguent toutefois par leurs pourcentages poids en Zn qui sont de 60 % (hydrozincite) et 52% (smithsonite).

Les formules calculées sont respectivement (Zn <sub>4.93</sub> Mg <sub>0.03</sub> Pb <sub>0.03</sub> Ca <sub>001</sub>) (OH)<sub>6</sub> (CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> et (Zn<sub>0.97</sub>, Ca<sub>0.02</sub>, Mg<sub>0.01</sub>)CO<sub>3</sub>. Le Cd est présent dans ces carbonates jusqu'à une concentration de 0,5% dans la smithsonite.

La structure lamellaire des minéraux explique les teneurs significatives des cations secondaires comme Fe, Mg, Mn et Pb (jusqu'à 1,14 % poids dans l'hydrozincite et 0,98 % poids dans la smithsonite).

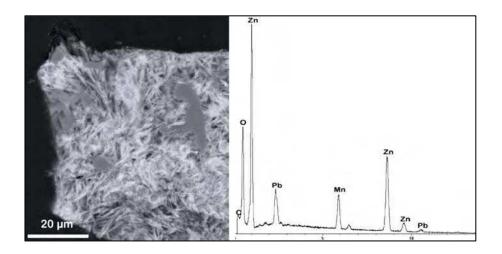


Figure III.6 : Grain de carbonate de Zn fibreuse observé au MEB en mode rétrodiffusé et spectre EDS montrant du Pb et du Mn comme cations secondaires

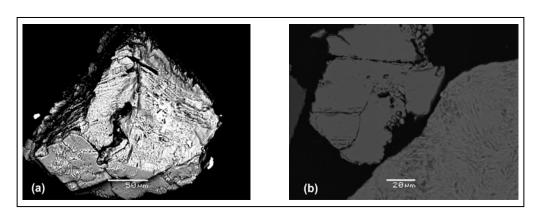


Figure III.7 : Carbonates de Zn observés au MEB en mode rétrodiffusé

(a) grain isolé de carbonate de Zn d'aspect feuilleté mais compact avec un dépôt finement fibreux et probablement secondaire de carbonate de Zn. Photo (b) : deux grains de carbonates de Zn en section polie

- La cérusite observée au MEB, se presente sous forme de grains monominéraux ou associées à d'autres grains (figure 16). En section, ce minéral, trés rarement pur, comporte souvent des cations comme Ca, Sr, et Zn.

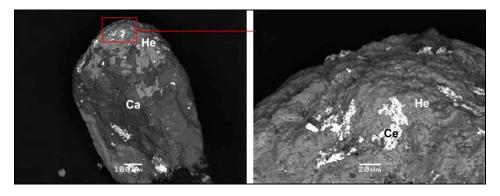


Figure III.8 : Cérusite (Ce) à la surface d'un grain composite de calcite (Ca) et d'hémimorphite (He) observé au MEB en mode rétrodiffusé. La cérusite pourrait être simplement précipitée à la surface de l'hémimorphite ou piégée à l'intérieur de celle-ci et affleurant à la surface

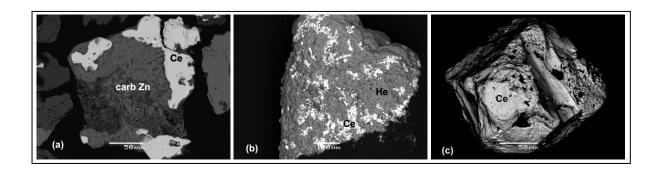


Figure III.9 : Différents aspects de la cérusite.

- (a) image en mode rétrodiffusé d'un agrégat de cérusite et d'hydrozincite en section. (b) image en mode rétrodiffusé de la cérusite à la surface d'un grain d'hémimorphite. (c) image en mode électrons secondaires d'un grain isolé de cérusite.
- Les carbonates métallifères mixtes : Pb et Zn ont été détectés en teneurs importantes dans des carbonates correspondants à la calcite et à la strontianite.

La strontianite plus ou moins plombifère est fréquemment rencontrée dans le terril DI (Figure III.10). Sr est toujours associé au Pb pour former ce carbonate. La formule structurale moyenne calculée à partir de 10 analyses à la microsonde est :

$$(Sr_{0.53-0.83}, Pb_{0.05-0.45}, Ca_{0.01-0.13}, Zn_{0.00-0.02}) CO_3$$

Des travaux antérieurs ont montré que la substitution Sr-Pb est possible étant donné que les rayons atomiques des deux cations se rapprochent et qu'il existe une solution solide isomorphe entre la cérusite et la strontianite dans le système orthorhombique (Speer et Hensley-Dunn, 1976).

Les analyses de calcite présentent jusqu'à 6,44 wt% de Pb. Les teneurs en Zn atteignent les 3,89 wt%. D'après Reeder (1999), de telles substitutions sont possibles et plus favorisées pour le Zn.

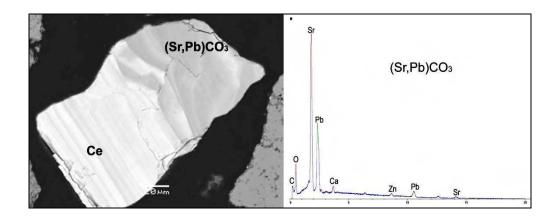


Figure III.10 : Observation au MEB en mode rétrodiffusé d'un grain polyphasé de strontianite plombifère (St) et de cérusite (Ce) en section polie.

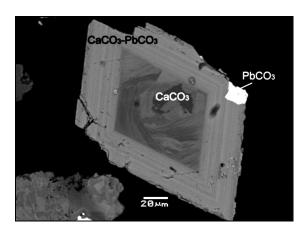


Figure III.11 : Grain de calcite en section polie observé au MEB en mode rétrodiffusé Rhomboèdre de calcite en section, la zone plombifère montre une alternance de couches plus ou moins claires selon les teneurs en Pb.

#### Les silicates

Bienque la DRX n'a montré que l'hemimorphite Zn<sub>4</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (OH)<sub>2</sub> .H<sub>2</sub>O comme silicate de Zn, les analyses microsonde ont mis en évidence la présence de la willémite Zn<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>

Au MEB, la surface des grains de silicates de Zn est plane ou rugueuses (figure 20). En section polie, ce minéral peut être sous forme de grains isolés automorphes à bordures rectilignes, de cristaux imbriqués dans d'autres minéraux ou encore associé à la calcite dans des grains d'aspect bréchique (figure III.12). On a rarement rencontré, les silicates de Zn contenant des reliques de sphalérite.Les analyses à la microsonde montrent la présence d'impuretés comme Ca, Fe et Pb.

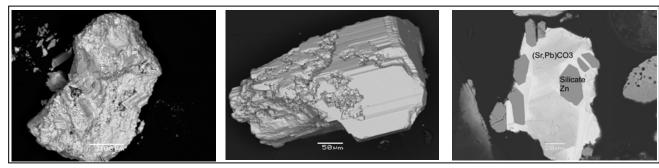


Figure III.12 : Quelques grains de silicates de Zn observés au MEB en mode électrons secondaires

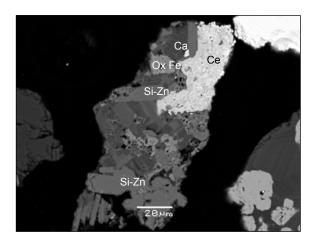


Figure III.13 : Grain composite de silicate de Zn (Si-Zn), calcite (Ca), cérusite (ce) et oxydes de fer (OxFe) observé en section polie au MEB en mode rétrodiffusé

#### Les sulfures

Un seul grain de barytine a été analysé dans la section DIII3. Par contre quelques grains de galène ont été détectés. Ce minéral apparait soit en gros grains isolés et montrant une frange d'altération en cérusite (Figure III.14), soit en très fins vestiges dans la cérusite indiquant un stade d'altération plus avancé.

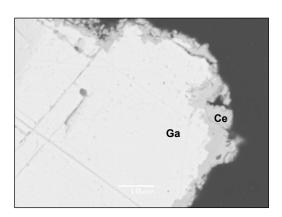


Figure III.14 : Grain de galène en section observé au MEB en mode rétrodiffusé : La bordure est en voie d'altération en cérusite.

#### Les sulfates

Seuls de rares grains de barytine et de céléstite ont été rencontrés, toutefois ces minéraux sont enrichis en Pb, Zn et Ca.

#### Les oxy-hydroxydes de Fer

Les oxy-hydroxdes de fer peuvent être soit en grains isolés soit aux bordures des grains zincifères notamment la smithsonite (Figure III.15). Ces minéraux constituent l'unique porteur de l'arsenic jusqu'à 1,5 % poids. On note également des traces de soufre ce qui implique l'origine du Fe et d'As héritée de la pyrite (Lee et al., 2005). Des concentrations importantes de Pb et de Zn, jusqu'à 8,5 et 8,70 % poids respectivement, ont été détectées.

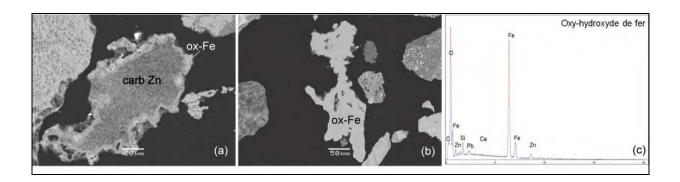


Figure III.15 : grains d'oxy-hydroxyde de fer observés au MEB-EDS en mode rétrodiffusé et exemple de spectre EDS.

(a) encroutement d'oxy-hydroxydes de fer à la surface d'un grain de smithsonite. (b) grain individualisé d'oxy-hydroxydes de fer. (c) exemple de spectre.

Tableau III.9: Résultats des analyses microsonde et formules structurales calculées pour les minéraux métallifères oxydés des déchets.

	Wille	mite [	31]	Hemim	orphit	e [5]	Smithson	ite ZnC0	O <sub>3</sub> [20]	Hydro				site [3	6]	Pb stron	ntianite	[10]	Oxy-hyd	lroxyde	de Fe
(*)	Zn	$_2$ SiO $_4$		Zn <sub>4</sub> Si	$_{2}O_{7}$ 2H	$_{2}O$	Z	CnCO <sub>3</sub>		$Zn_5$ (Ol		$O3)_2$	P	$bCO_3$		Sr <sub>1-x</sub> F	$Pb_x$ (C	O <sub>3</sub> )		[41]	
										wt %	ı										
	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max
MgO	nd	nd	nd	nd	nd	0.14	0.29	0.00	1.13	0.05	nd	0.21	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.18
$Al_2O$	na	na	na	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.14	nd	3.30
$SiO_2$	27	25	27.6	25.7	22.1	26.7	nd	nd	0.12	0.18	nd	0.31	nd	nd	0.14	nd	nd	nd	3.19	0.41	7.17
$SO_3$	na	na	na	nd	nd	nd	0.04	0.01	0.08	0.17	0.16	0.17	nd	nd	0.68	nd	nd	nd	0.16	0.01	0.54
CaO	nd	nd	nd	nd	nd	0.09	1.01	0.11	1.70	0.12	nd	0.52	0.26	nd	1.36	1.95	0.40	4.84	0.18	nd	0.52
MnO	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.11	0.01	nd	0.05	nd	nd	0.10	nd	nd	nd	nd	nd	0.19
$Fe_2O_3$	nd	nd	3.43	0.24	nd	0.33	nd	nd	0.28	0.11	nd	0.65	nd	nd	0.56	nd	nd	0.06	67.3	56.7	85.9
ZnO	72.5	69.9	74.7	67.6	66.5	69.1	62.7	61.5	64.8	72.7	70.2	74.8	0.32	nd	3.76	0.75	nd	1.17	6.26	1.21	10.8
$As_2O_3$	na	na	na	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	1.37	0.10	3.40
SrO	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	22.4	45.8	27	59.1	nd	nd	nd
CdO	nd	nd	nd	nd	nd	nd	0.21	nd	0.57	nd	nd	0.46	nd	nd	0.50	nd	nd	0.13	nd	nd	nd
PbO	nd	nd	0.44	nd	nd	nd	0.43	nd	1.07	0.95	0.54	1.23	81.7	54.4	84.3	25.3	7.2	49.7	5.2	2.2	9.2
							For	mule cal	lculée à	la base d	le la so	omme	des catio	ns							
	Σcat	ions =	: 3	Σcat	ions =	6	Σca	tions = 1	1	Σcat	ions =	5	Σcat	ions =	: 1	Σcat	ions =	1			
	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max	median	min	max
Mg	-	-	-	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00	0.04	0.01	0.00	0.03	=	-	-	-	-	-	-		
Al	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Si	1.00	0.95	1.04	2.04	1.81	2.12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
S	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Ca	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.04	0.01	0.00	0.05	0.01	0.00	0.06	0.06	0.01	0.13	-	-	-
Mn	-	-	-	-	-	-	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-	-	-	-	-	-
Fe	0.00	0.00	0.05	-	-	-	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Zn	1.99	1.96	2.04	3.96	3.88	4.17	0.96	0.95	0.99	4.95	4.91	4.96	0.01	0.00	0.11	0.02	0.00	0.03	-	-	-
As	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Sr	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.00	0.00	0.45	0.74	0.53	0.83	-	-	-
Cd	-	-	-	-	-	-	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	-	-	-
Pb	-	_	-	-	-	-	0.00	0.00	0.01	0.02	0.01	0.03	0.97	0.51	1.00	0.19	0.05	0.45	_	_	_

Pb - - - - 0.00 0.00 0.01 0.02 0.01 0.03 0.97 0.51 1.00 0.19 0.05 0.45 - - - Résultats obtenus avec les deux programmes standard et spécifique pour le Cd pour les minéraux oxydés. nd = non détecté. na = non analysé. - = non calculé. [n] = nombre d'analyses pour chaque minéral. (\*) = formule théorique du minéral.

Tableau III.10 : Résultats des analyses à la microsonde des phases porteuses de Cd

	Hydrozincite [1/8]	Pb strontianite [1/10]	Cérusite [1/36]	Smiths	onite [1	3/20]
		wt %				
				median	min	max
MgO	nd	nd	nd	nd	nd	nd
$SiO_2$	nd	nd	nd	nd	nd	nd
CaO	0.52	4.24	0.18	2.38	0.52	4.24
MnO	0.04	nd	nd	0.04	0.04	0.04
$Fe_2O_3$	nd	nd	nd	nd	nd	nd
ZnO	73.13	nd	0.57	73.13	73.13	73.13
SrO	nd	56.73	nd	28.37	nd	56.73
CdO	0.46	0.13	0.50	0.29	0.13	0.57
PbO	0.54	8.20	82.74	4.37	0.54	8.20
% CO <sub>2</sub> calculé	16.10	29.08	16.94	-	-	-
% H <sub>2</sub> O calculé	9.87	-	-	-	-	-
Total	100.67	98.38	100.93	-	-	-
LD (Cd)	0.08	0.08	0.29		0.07	

[m/n] = nombre d'analyses qui détectent Cd / nombre total d'analyses. nd = non détecté. -= not calculé. CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O sont calculés par stœchiométrie. LD = limite de détection de Cd. Les concentrations médiane, minimale et maximale données pour la smithsonite sont calculées à la base des 13 analyses où Cd a été détecté.

#### VI.1.2. Phases porteuses de métaux dans le terril DII

Dans le terril DII, les grains porteurs de métaux sont fins et de couleurs variables entre le blanc translucide, le vitreux et le gris-noir très souvent poly-phasiques.

Les analyses au MEB confirment le fait que les grains noirâtres sont des sulfures métallifères. Pyrite, sphalérite et galène sont fréquemment rencontrées en très fines plages engrenées et disséminées dans une matrice de calcite ou de dolomite (Figure III.16). Rarement la sphalérite et la pyrite forment des grains isolés et plus grossiers.

La galène est généralement très fine (< à  $5\mu m$ ), ne pouvant ainsi être analysée à la microsonde. Dans la pyrite la concentration de l'arsenic varie entre 0,18 et 0,79 wt%.

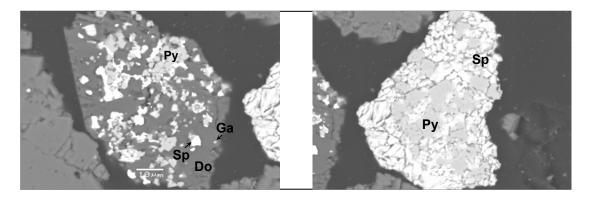


Figure III.16 : Quelques grains noirs, en section polie, observées au MEB en mode rétrodiffusé.

(a) fins grains de sulfures inclus dans la dolomite. (b) grain de sphalérite comportant des plages de pyrite.

De très rares grains de carbonates de zinc compacts ou lamellaires ont été rencontrés dans ce terril. Aucune figure d'altération des sulfures en carbonates n'a été rencontrée.

Tableau III.11 : Résultats des analyses microsonde et formules structurales calculées pour les minéraux métallifères sulfurés des déchets.

	I	Pyrite [16]		Sp	halérite [20	0]	(	Galène [8]	
		FeS <sub>2</sub>			ZnS			PbS	
					wt %				
	median	min	max	median	min	max	median	min	max
S	53.60	52.41	54.28	33.40	32.84	33.89	14.02	13.79	14.10
Fe	46.22	44.85	47.15	0.12	0.04	1.69	nd	nd	nd
Cu	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Zn	0.58	0.11	0.91	66.28	64.34	67.13	0.26	nd	1.08
As	0.40	0.18	0.79	nd	nd	nd	nd	nd	0.29
Cd	nd	nd	nd	0.52	0.16	0.98	nd	nd	nd
Sb	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
Pb	nd	nd	1.53	nd	nd	nd	86.51	85.46	87.13
			Formul	e calculée à la	a base de la	somme de	s cations		
	Σ	cations = 1		Σ	cations = 1	-	Σ	cations = 1	
	median	min	max	median	min	max	median	min	max
S	1.99	1.98	2.00	1.01	1.00	1.02	1.02	1.00	1.02
As	0.01	0.00	0.01	-	-	-	0.00	0.00	0.01
Fe	0.99	0.96	1.00	0.00	0.00	0.03	-	-	-
Zn	0.01	0.00	0.03	0.98	0.95	1.00	0.01	0.00	0.04
Cd	-	-	-	0.00	0.00	0.01	-	-	=
Pb	0.00	0.00	0.01	-	-	-	0.97	0.96	0.98

Résultats obtenus avec le programme sulfures. nd = non détecté. na = non analysé. - = non calculé. [n] = nombre d'analyses pour chaque minéral. (\*) = formule théorique du minéral.

#### IV.2. Composition minéralogique normative des déchets

Disposant des compositions chimique et minéralogique détaillées des déchets, nous avons effectué le calcul normatif des minéraux qui permettra de connaître les proportions relatives des minéraux dans les déchets (Tableau III.12).

En se basant sur la composition chimique et minéralogique nous avons effectué le calcul normatif des minéraux dans les déchets. Notons que les silicates de Zn sont considérés sous forme d'hémimorphite et tout le Fe est considéré sous forme d'oxyhydroxyde.

Tableau III.12 : Minéraux présents et leurs compositions normatives dans les terrils de déchets en % poids

Minéral	DI	DII	DIII
Calcite (CaCO <sub>3</sub> )	86,27	93,78	78,0
Quartz (SiO <sub>2</sub> )	1,44	0	2,7
Cérusite (PbCO <sub>3</sub> )	1,66	0	1,5
Strontianite (SrCO <sub>3</sub> )	0,7	0	0
Hémimorphite (Zn <sub>4</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>7</sub> 2H <sub>2</sub> O)	9,06	0	6,2
Smithsonite (ZnCO <sub>3</sub> )	0	0	0,5
Dolomite (CaMg ((CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> )	0	2,81	2,2
Hydrozincite Zn <sub>5</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> (OH) <sub>6</sub>	0	0	1,2
Oxy-hydroxydes de fer	0,61	0	0,9
Barytine (BaSO <sub>4</sub> )	0,17	0	0,3
Célestite (SrSO <sub>4</sub> )	0,1	0	0,3
Pyrite (FeS <sub>2</sub> )	0	0,22	0
Sphérique (ZnS)	0	3,09	0
Galène (PbS)	0	0,1	0

#### VI.3. Caractérisation des croûtes à la surface des terrils

La formation des croûtes est un phénomène naturel bien connu dans les sols (Thornber et al., 1987). Elle résulte de l'exposition d'un matériau réactif contenant une fraction de fines particules à des périodes de pluies intenses et des taux d'évaporation élevés. En contact avec l'eau de pluie les minéraux se dissolvent. Ensuite, durant l'évaporation, l'eau interstitielle contenant des concentrations relativement élevées d'éléments dissous migre vers le haut par capillarité. L'eau s'évapore et les éléments dissous précipitent sous forme de minéraux secondaires, agglutinant les particules du sol et formant une croûte (Rammlmair, 1996, 2002).

#### IV.3.1. Description des croûtes

Sur le toit des déchets oxydés, nous constatons la présence d'une croute rougeâtre durcie qui occupe une grande partie de leur surface notamment celle du terril DI où la croûte fait

plusieurs décimètres d'épaisseur, très dure et de couleur rougeâtre à grise et où la cohésion dépasse 124 kPa. A la surface de DIII, ont poussé des mousses vertes qui noircissent quand elles dessèchent.

Sur les talus, nous avons observé des croutes plus minces de quelques millimètres d'épaisseur, plus ou mois facilement détachables et friables entres les doigts avec une cohésion est inférieure à 15 kPa. En quelques endroits à la surface de ces croûtes nous avons observé des dépôts blancs poudreux.

Sur les déchets sulfurés, on a remarqué une fine couche rougeâtre très claire qui enrobe la surface du terril gris. Vue de plus prés, la croute de quelque millimètres d'épaisseur est de couleur variable entre le gris clair et le rouge clair.

Comme on l'a précédemment indiqué, ce terril est souvent fréquenté par des engins pour emporter le déchet, ce qui empêche la formation d'une croute bien développée sauf aux quelques endroits non atteints.

Les différents aspects de croutes ont été échantillonnés et analysés aux RX.



Figure III.17 : Photos des croûtes et dépôts secondaires à la surface des terrils de déchets.

a : croûte grise et épaisse à la surface de DI. b : fine croûte sur le talus des déchets oxydés c : mousses à la surface de DIII. d,e,f : dépôt poudreux blanc sur les talus des déchets oxydés. g,h : croûte à la surface des déchets sulfurés (DII).

#### IV.3.2. Composition minéralogique des croûtes

#### Déchets oxydés

Les différents échantillons de croûte révèlent une composition minéralogique identique à celle des déchets : calcite, hémimorphite et cérusite en plus faible proportion.

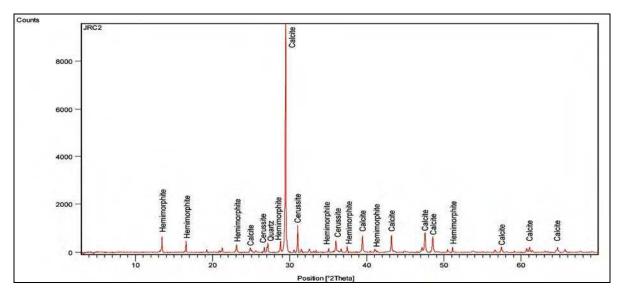


Figure III.18 : Diffractogramme de RX obtenu sur un échantillon de poudre blanche sur une croûte à la surface du déchet DIII

#### Déchets sulfurés

Tous les échantillons montrent des diffractogrammes identiques montrant la dominance de la calcite et du gypse avec parfois la sphalérite. Cette technique ne montre aucune autre phase minérale secondaire porteuse de métaux caractéristique des croûtes sur les déchets sulfurés comme la jarosite par exemple.

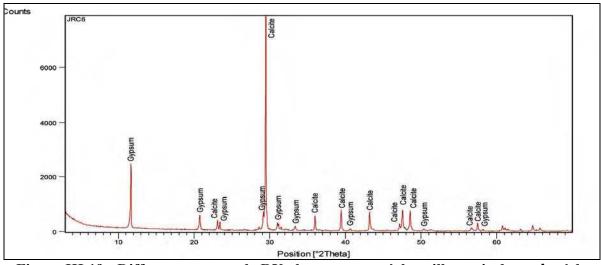


Figure III.19 : Diffractogramme de RX obtenu sur un échantillon gris de croûte à la surface du déchet DI

#### IV.3.3. Discussion

La majorité des travaux réalisés sur les encroutements des déchets miniers ont concernés les déchets sulfurés (McGregor et Blowes, 2002; Courtin-Nomade et al., 2003; Moncur et al., 2005 ; Gunsinger et al., 2006 et Graupner et al., 2007). Les croûtes sont le résultat de la précipitation secondaire de minéraux stables en conditions oxydantes. Suite à la dissolution des sulfures de Pb et Zn, la rétention de Pb se fait principalement par la jarosite probablement par substitution du K par Pb (Dutrizac et Jambor, 2000). Zn est essentiellement retenu dans les oxy-hydroxydes de fer grâce à leur importante affinité de fixation des cations notamment Zn (Graupner et al., 2007). Le ciment de ces croûtes peut être soit la goethite, la jarosite soit le gypse. Selon McGregor et Blowes (2002), le gypse est le ciment primaire le plus commun. Il se forme à partir du Ca issu de la dissolution des carbonates et du SO<sub>4</sub> résultant de l'oxydation des sulfures.

Dans le cas des déchets de Jebel Ressas, aucune phase minérale secondaire à celle des déchets n'est identifiée par les RX. La croûte épaisse et dure aux sommets des terrils oxydés résulterait de la dissolution et la reprécipitation de la calcite qui devient un ciment. Au cours du temps, la cimentation touche des niveaux de plus en plus profonds du terril.

Sur les talus, la vitesse de l'écoulement de l'eau est plus importante d'où la formation de croûtes calciques plus fines et plus facilement érodables aux moments des crues. Après l'évaporation, la calcite peut reprécipiter en efflorescence sur le talus sous forme de dépôt blanc poudreux.

A la surface des déchets sulfurés, le gypse apparait avec une proportion plus élevée que celle dans l'ensemble du terril ce qui indiquerait une altération des sulfures à la surface du terril comme cela a été expliqué ci-dessus. La technique de DRX ne montre aucune autre phase minérale secondaire porteuse de métaux caractéristique des croûtes sur les déchets sulfurés comme la jarosite par exemple.

En comparaison avec les croûtes des déchets sulfurés de la mine de Jalta (NW de la Tunisie), (Boussen, 2010) a mis en évidence la présence des caractéristiques typique des croûtes de ce type de déchets (coloration ocre, présence de plombojarosite, de la marcassite et de la magnétite). Le facteur expliquant la différence entre nos résultats pourrait être la taille des sulfures qui peuvent atteindre 100µm dans les déchets de Jalta et ne dépassent pas 10µm dans les déchets de Jebel Ressas sans oublier leur enveloppe carbonatée qui leur protège contre l'altération.

La précipitation de phase secondaires stables et porteuses de métaux rendent les croûtes comme zones d'accumulation de métaux et limitant leur mobilité à l'état dissous (McGregor et Blowes, 2002 et Graupner et al., 2007)

Le durcissement de ces croûtes réduisent la porosité et la perméabilité des déchets (Graupner et al., 2007). En effet, les couches cimentées peuvent agir comme barrières hydrauliques qui inhibent le transport de l'eau interstitielle et la diffusion des gaz (O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>) dans les pores (Kohfahl et al., 2010).

Cette faible porosité est due à la précipitation des minéraux secondaires qui remplissent les pores (Moncur et al., 2005) (tels la jarosite, la goethite, la ferrihydrite le gypse et la calcite comme c'est le cas à Jebel Ressas).

D'autre part, les couches superficielles cimentées présentent une forte cohésion ce qui leur procure une résistance mécanique protégeant des déchets contre l'érosion hydrique et éolienne.

En conclusion, les croûtes présentent un effet d'atténuation naturelle de la contamination métallique à partir des déchets miniers. La formation de croûte artificielle à la surface des terrils de déchets miniers a été proposée comme une technologie d'inertisation des déchets (Kontopoulos et al., 1995 et Komnitsas et al., 1998).

# Chapitre IV TRANSFERT HYDRIQUE EN SOLUTION DE LA CONTAMINATION METALLIQUE

#### Chapitre IV: Transfert hydrique en solution de la contamination métallique

#### I. Introduction

Le passage en solution des métaux est la conséquence de la dissolution des phases minérales porteuses de métaux dans les solutions issues des eaux de pluie qui circulent ou percolent dans les déchets. Les concentrations des espèces métalliques en solution sont contrôlées par l'état de saturation des solutions par rapport aux phases minérales présentes qui se dissolvent et aux nouvelles phases minérales porteuses des métaux et susceptibles de précipiter.

Avec la modélisation géochimique, nous prédirons l'évolution de la composition chimique d'une eau de pluie s'infiltrant et interagissant avec les déchets et nous calculerons les concentrations maximales des métaux contrôlées par l'arrêt de la dissolution des phases en contact avec la solution et par la précipitation des phases minérales secondaires dans cet environnement. Ces concentrations maximales caractériseront le degré de contamination des eaux de surface et de nappe par les eaux de lessivage des déchets.

La méthodologie est basée entièrement sur la simulation de réactions chimiques entre les minéraux des déchets et l'eau.

Dans le nord de la Tunisie où se localise le site minier de Jebel Ressas, l'environnement géologique qui va contribuer à la qualité des eaux de surface et de nappe est carbonaté et localement salin, caractérisé par la prédominance de terrains calcaires mésozoïques avec des intrusions du trias salifère. Le rôle de cet environnement dans la qualité des eaux en présence de déchets miniers va être étudié.

Les objectifs sont :

- l'estimation de l'ordre de grandeur des concentrations maximales des métaux en solution en contexte carbonaté,
- la prédiction de l'évolution des concentrations des métaux en solution en cas de l'augmentation de la salinité de l'eau.

#### II. Généralités

#### II.1. Production de drainage minier neutre

En contexte carbonaté, l'acidification du milieu générée par la dissolution des sulfures est tamponnée par les carbonates dissous. Les cations libérés participent à la formation de minéraux secondaires tels que les carbonates, les hydroxydes et les sulfates qui piègent les métaux dissous de l'eau.

L'acidité générée par l'oxydation des minéraux sulfurés peut être tamponnée : (i) par l'eau, lorsque celle-ci possède une charge alcaline suffisante (fortes concentrations en bicarbonates)

ou (ii) par la dissolution de certains minéraux (Banks et al., 1997) comme les carbonates Salomons, 1995 ; Younger et al., 1998 ; et autres).

La réaction générale de neutralisation avec la calcite s'écrit :

$$CaCO_{3 (sd)} + 2H^+ \leftrightarrow Ca^{2+} + H_2CO_3$$

En présence d'une phase gazeuse, H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>(aq) se décompose partiellement selon la réaction

$$H_2CO_3 \leftrightarrow CO_2 + H_2O$$

Lorsque la neutralisation du DMA est maximum la réaction produit du bicarbonate (HCO<sup>3-</sup>) selon l'équation

$$CaCO_{3(sd)} + H^+ \leftrightarrow Ca^{2+} + HCO_3^-$$

La quantité de calcite nécessaire pour neutraliser une quantité donnée d'effluents acides dépend du comportement du CO<sub>2</sub> durant la neutralisation et du pH atteint. On distingue deux situations extrêmes (Rose et Cravotta, 1998) entre lesquelles se situent les sites miniers naturels:

Si le pH≥ 6.3 et que le CO2 ne peut pas être expulsé dans une phase gazeuse :

$$\text{FeS}_{2(\text{sd})} + 4\text{CaCO}_{3(\text{sd})} + 3.75\text{O}_{2(\text{g})} + 3.5\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Fe(OH)}_{3(\text{sd})} + 2\text{SO}_4^{2-} + 4\text{Ca}^{2+} + 4\text{HCO}_3^{-1}$$
  
Si tout le CO2 peut être expulsé dans une phase gazeuse et que le pH est voisin de 5 :

$$\text{FeS}_{2(\text{sd})} + 2\text{CaCO}_{3(\text{sd})} + 3.75\text{O}_{2(\text{g})} + 3.5\text{ H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Fe}(\text{OH})_{3(\text{sd})} + 2\text{SO}_4^{2-} + 2\text{Ca}^{2+} + 2\text{H}_2\text{CO}_3$$

Dans le premier cas, la neutralisation de l'oxydation d'une mole de pyrite requiert quatre moles de calcite. Dans le second cas, la neutralisation de l'oxydation d'une mole de pyrite requiert deux moles de calcite. Dans la pratique, la quantité de calcite nécessaire à la neutralisation du DMA a une valeur intermédiaire comprise entre ces deux extrêmes.

En contexte carbonaté, la neutralisation de l'acidité et les réactions de précipitation de minéraux secondaires limitent le passage en solution des métaux (Al et al., 2000, Xenidis et al., 2003). Par conséquent, le risque de contamination de l'environnement par les métaux dans ce contexte est plus faible qu'en contexte de DMA. C'est pourquoi la contamination des eaux par transfert hydrique dans ce contexte, reste très peu étudiée.

En Tunisie, la majorité des sites miniers sont encaissés dans les carbonates et les concentrations en métaux analysées dans les eaux de surface par les différents auteurs sont faibles comme attendu dans ce contexte. Le travail effectué par Sahnoun et al (2009) sur les eaux du bassin versant de la Mejerda (sites miniers, cours d'eau et lacs collinaires), a montré que les concentrations mesurées sont inférieures aux concentrations de référence pour les

eaux de surface données par l'OMS (1987) (dans les eaux de drainage de 3 sites miniers sur le bassin versant de Oued Mejerda : Pb entre 5 et 11 ppb, Zn entre 5 et 9 ppb et Cd entre 0,5 et 0,9 ppb.) Les eaux prélevées à l'entrée des mines ne montrent pas des concentrations en métaux très différentes de celles dans les autres échantillons.

Mlayah et al (2005 et 2009) a montré que les concentrations des métaux dans les sédiments de Oued Mellègue et ses affluents qui draine la zone des dômes connue comme un district minier à Pb, Zn et Ba, sont voisines ou légèrement supérieures aux concentrations moyennes dans les roches du bassin versant de la Medjerda, de la zone des dômes et du fond géochimique de la région. Les métaux toxiques ne sont présents qu'à proximité des déchets des anciennes activités minières. Le même auteur souligne que la présence du trias salifère et des carbonates peut avoir un rôle important dans la fixation des métaux lourds à proximité de la source de contamination.

Jdid et al (1999) a montré que depuis l'arrêt des activités minières, les concentrations des métaux (Tableau IV.1) dans les eaux ont considérablement diminué dans les eaux de Oued Mejerda et son affluent El Melah qui draine le site de Fej Hcine. Toutefois les concentrations des métaux en solution peuvent avoir des pics qui dépassent les normes sanitaires à l'occasion de pluies intenses.

Tableau IV.1 : Intervalles de concentrations des métaux dans les eaux de surfaces analysés à l'aval de sites miniers en Tunisie

Auteur	Concentration Pb (ppb)	Concentration Zn (ppb)	Concentration Cd (ppb)
Eau de Oued Mejerda et ses affluents (Sahnoun et al., 2009)	4,71 – 11,3	4,91 - 9,26	0,508 - 0,914
Eau de Oued Mèlegue drainant la zone des dômes (Mlayah et al., 2005)	1 - 5	1 - 12	0,2 – 2,9
Eau de Oued El Melah drainant le site minier de Fej Hcine (Jdid et al., 1999)	27 - 175	71 - 1052	5 - 38

Dans notre démarche dédiée à l'étude des mécanismes de transfert avec une approche prédictive, l'étude du transfert en solution de la contamination est traitée par modélisation. Cette démarche est transposable à d'autres sites contaminés où les résultats peuvent être confirmés ou précisés par des analyses ponctuelles.

Les concentrations des références données pour les eaux potables sont basées sur des considérations sanitaires. Elles varient selon le pays (Tableau IV.2).

Tableau IV.2 : Concentration de références (μg/l) recommandée pour les métaux dans les eaux potables

Métal	OMS (2006)	USEPA (1986)	Norvège (1987)	Norme tunisienne NT-0914
As	10	50	10	-
Cd	3	5	1	5
Cr	-	50	10	50
Cu	1300	1300	100	-
Hg	-	3	0.05	-
Pb	10	20	5	50
Zn	3000	-	300	5000

#### II.2. Devenir des métaux passés en solution

Le passage en solution des métaux favorise leur dispersion dans l'environnement vers les sols, la végétation et l'eau. Cependant, des mécanismes de précipitation, d'échange et d'adsorption peuvent limiter leur mobilité.

En effet, les conditions oxydantes et la présence des ions carbonates favorisent la précipitation de minéraux secondaires métallifères. D'autre part, les sols et les sédiments contiennent de nombreux sites de rétention des espèces métalliques, comme des sites à charges permanentes, présents notamment dans les phyllosilicates. La rétention pouvant être réversible, tous les éléments métalliques retenus sur un sol ou un sédiment sont potentiellement remobilisables, lors du changement d'un paramètre physico-chimique (Leleyter et Baraud, 2005). Les principaux changements sont: (1) l'acidification du milieu, car la baisse du pH favorisera à la fois la dissolution des précipités et également la désorption, (2) le changement des conditions d'oxydo-réduction, car une baisse de l'oxygène dissous peut provoquer une dissolution (partielle ou complète) des hydroxydes et donc un relargage des métaux qui y étaient associés par adsorption ou coprécipitation, (3) l'augmentation de la force ionique, qui a pour effet d'accroître la solubilité des métaux.

Les eaux de ruissellement sur des sols contaminés peuvent transporter de grandes quantités de métaux vers les lacs et les rivières sous forme particulaire ou dissoute.

Les métaux lourds dans les eaux ont une spéciation variable en fonction des variations des paramètres physico-chimiques. Certains paramètres comme le pH et la teneur en humus affectent la spéciation des métaux et par conséquent leur toxicité.

Le temps de résidence des eaux dans les cours d'eau et les rivières varie entre quelques jours à quelques semaines. Par conséquent les métaux sous forme dissoute ou colloïdale peuvent être transportés sur de longues distances dans les rivières, ainsi une augmentation ponctuelle des concentrations des métaux dans une rivière peut affecter considérablement l'écosystème sur de longues distances à partir du point de l'introduction de la contamination.

Pour les lacs, suivant leurs dimensions, le temps de résidence des eaux est de l'ordre de plusieurs mois à plusieurs années. Les métaux sont susceptibles de migrer de la colonne d'eau vers les sédiments par sédimentation des particules sur lesquels les métaux ont été adsorbés.

Les eaux profondes sont protégées par les couches sus-jacentes, et ont un pH alcalin. Leur contenu en métaux est alors plus faible que celui des eaux de surface ceci est lié à la faible solubilité des hydroxydes métalliques à pH neutre à alcalin.

Les sédiments des eaux douces sont les receveurs des métaux lourds contenus dans les eaux. Ceci améliore la qualité de l'eau et protège les organismes qui y vivent mais dégrade la qualité des sédiments et les rend défavorable pour les espèces benthiques.

## II.3. Contrôle de la composition de la solution par les minéraux et effet de la salinité sur la concentration des ions en solution

La modélisation géochimique que nous effectuerons sera basée sur des réactions de dissolution-précipitation. Ces réactions contrôlent la composition de la solution par les minéraux.

L'équilibre minéral –solution est gouverné par la loi d'action de masse. Elle fait intervenir le la constante d'équilibre K de la réaction de dissolution/précipitation et l'activité des ions en solutions.

Prenons l'exemple de la calcite dont la réaction de dissociation en solution est la suivante

$$CaCO_3 \subseteq Ca^{2+} + CO_3^{2-}$$

A l'équilibre et pour une température et pression données, la constante d'équilibre de l'équation s'écrit :

$$\log K = \frac{\alpha_{\text{CaCO}_3}}{\alpha_{\text{Ca}^{2+}} \cdot \alpha_{\text{CO}_3^{2-}}}$$

Avec  $\alpha_i = \gamma_i m_i$ 

Où  $\alpha_i$  = activité de l'ion i.

L'activité des phases minérales pures est égale à 1. Ainsi,  $[CaCO_3] = \alpha_{CaCO_3} = 1$  $m_i = concentration de l'ion i$   $\gamma_i$  est le coefficient d'activité de l'ion i. Il traduit les interactions entre l'espèce i et les autres constituants du système.

Dans le cas d'une solution dont la force ionique I vaut 0,5 (~30g/l de NaCl) on utilise la loi de Debye-Hückel qui est :

$$\log(\gamma) = -\frac{Az^2\sqrt{I}}{1 + Ba_i\sqrt{I}}$$

z<sub>i</sub> est sa charge;

A et B sont des constantes qui ne dépendent que de la température ;

a<sub>i</sub> est un paramètre représentant la taille de l'ion i en solution ;

Au-delà de 0,5 mol/L pour la force ionique la formule devient celle de Debye-Huckel étendu :

$$\log(\gamma_i) = -\frac{Az_i^2 \sqrt{I}}{1 + Ba_i \sqrt{I}} + b_i I$$

Pour un log K constant ( $\alpha_i$  constants), si la force ionique I de la solution augmente, le coefficient d'activité  $\gamma_i$  ionique doit diminuer et les concentrations  $m_i$  des ions en solutions augmentent.

Ainsi, les concentrations des espèces en solution contrôlées par des équilibres chimiques sont plus grandes lorsque la force ionique (salinité) augmente.

#### III. Méthodologie

## III.1. Mise en œuvre de la prédiction de la composition des solutions en interaction avec les déchets miniers de Jebel Ressas

La spéciation aqueuse des éléments chimiques ainsi que les indices de saturation (SI) de la solution vis-à-vis des différentes espèces minérales sont calculés avec le code PhreeqcI pour Windows version 2.15.0 écrit par David L. Parkhurst et C.A.J. Appelo (1999). Il est diffusé par United States Geological Survey et le code source est disponible et gratuit sur internet à l'adresse <a href="http://wwwbrr.cr.usgs.gov/projects/GWC">http://wwwbrr.cr.usgs.gov/projects/GWC</a> coupled/phreeqc/index.html.

Pour une phase solide donnée, l'indice de saturation SI est défini comme le rapport du produit d'activité ionique (IAP) par le produit de solubilité (K).

$$SI = IAP / K$$

L'état de saturation d'une solution est directement déduit du logarithme de SI :

- si log SI > 0, la solution est sursaturée et la phase minérale est susceptible de précipiter,

- si log SI = 0, la solution est à l'équilibre avec la phase minérale considérée, les concentrations des espèces en solution sont contrôlées par cette phase minérale,
- si log SI <0, la solution est sous-saturée et la phase minérale est susceptible de s'y dissoudre. Les données thermodynamiques sont appelées à partir du fichier « llnl.dat » qui représente la base de données la plus complète délivrée avec le code.

#### Principe de la prédiction

La modélisation géochimique est utilisée comme outil de prédiction de l'évolution d'un système d'interaction eau/roche. A partir d'une minéralogie initiale et d'une composition chimique de fluide initial, elle donne l'évolution chimique de la solution aqueuse et de l'assemblage minéralogique en équilibre avec cette solution. La modélisation permet de tester l'influence de certains paramètres physico-chimiques sur l'évolution du système. Dans le cas du devenir des déchets miniers de Jebel Ressas, la modélisation géochimique permet de préciser les mécanismes qui contrôlent la mobilité des métaux en solution et d'évaluer les concentrations maximales en métaux dans les eaux de drainage sous contrôle de la précipitation de phases minérales porteuses de métaux.

#### III.2. Conditions initiales à la modélisation

Les conditions initiales pour la modélisation sont les suivantes :

- Le volume de solution est fixé à 1L et toutes les dissolutions et précipitations de minéraux secondaires sont modélisées par rapport à ce volume de solution,
- La température est constante et vaut 25°C,
- Les réactions se déroulent sous la pression atmosphérique et dans un milieu oxydant.
- La nature et la proportion des phases minérales observées dans les déchets de laverie est une donnée d'entrée de la modélisation (Tableau IV.3). Le paramètre SI permettra de différencier parmi ces phases minérales, celles qui sont réactives vis-à vis des eaux de drainage et celles qui contrôlent les concentrations maximales de métaux en solution.
- Seules les phases minérales pures sont considérées. La modélisation a été simplifiée en considérant uniquement les minéraux sulfurés, carbonatés et silicatés ainsi que les mécanismes de dissolution-précipitation à partir de phases minérales pures. Les phases cadmifères ne seront pas considérées car Cd ne forme pas de phase minérale pure dans les déchets miniers de Jebel Ressas. Les solutions solides ne sont pas intégrées dans cette modélisation (voir exemple dans Annexe 1).
- La modélisation utilise la base de données la plus complète llnl.dat. Elle contient des données thermodynamiques pour tous les minéraux observés dans les déchets à l'exception de

l'hémimorphite (Zn<sub>4</sub> Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(OH)<sub>2</sub> H<sub>2</sub>O). Nous avons donc implémenté la banque de données avec le logK de dissolution de l'hémimorphite à 25°C en nous basant sur le travail de McPhail et al (2006). Ces auteurs ont déterminé expérimentalement les logK de la réaction à 50 et à 80°C:

#### Hémimorphite + $8H^+ \rightarrow 4Zn^{2+} + 2SiO_2 + 6H_2O$

- Nous avons extrapolé ces données à 25°C en nous basant sur la relation linéaire entre logK et l'inverse de la température (1/T) et obtenu la valeur de logK = 23,66 à 25°C.

La base de données Ilnl.dat implémentée a été utilisée pour tous les scenarios modélisés.

La modélisation ne peut intégrer l'hémimorphite que s'il y a de la silice en solution. A défaut de concentration mesurée dans les eaux de drainage, nous considérons que la dissolution de l'environnement carbonaté (carbonates + quartz) est congruente et que la quantité de silice en solution est directement proportionnelle à celle de calcite dissoute.

- La cinétique chimique des réactions de dissolution-précipitation et les mécanismes d'adsorption-désorption n'ont pas été pris en compte.

#### III.3. Scenarios modélisés

Nous proposons trois scenarios pour déterminer les concentrations maximales de métaux dans trois différents cas possibles sur le site en question.

Rappelons que nous avons distingué deux types de déchets. Un déchet oxydé où les minéraux sulfurés sont quasiment absent. Un déchet où les sulfures sont les principaux porteurs de métaux avec une matrice calcique.

Ainsi nous proposons deux scenarios pour modéliser la réaction des minéraux de chaque type de déchet avec l'eau. Le troisième scénario aura pour objectif de tester l'évolution des concentrations des métaux quand la salinité de l'eau augmente à l'occasion de dissolution du sel triasique ou un mélange avec des eaux plus salées.

Pour chaque scénario, on calculera les indices de saturation des phases minérales secondaires et les concentrations maximales des métaux dissous.

Dans ce qui suit, nous allons chercher l'effet de la dissolution des sulfures contenus dans les déchets sur l'évolution chimique du déchet lui-même et sur celle des eaux percolantes et de drainage. Les précipitations météoriques sont considérées être l'origine des eaux de drainage, la composition chimique initiale de la solution est une eau pure à 25°C soumise à la pression atmosphérique.

Dans la modélisation les minéraux secondaires sont autorisés pour précipiter lorsque leur valeur de SI est positive. Arbitrairement un minéral qui n'est pas observé dans les déchets

sera interdit de précipitation dans la modélisation afin de ne pas biaiser le calcul des concentrations maximales en métaux par le contrôle d'une phase minérale exotique. Pour représenter l'évolution possible des eaux de drainages, quatre scénarios sont proposés qui testent l'influence de l'environnement carbonaté sur l'évolution des déchets. Le scénario 1 se rapporte aux déchets miniers des terrils DI et DIII ou il n'y a pas de sulfures mais des phases métallifères oxydées. Les scénarios 2 et 3 se rapportent aux déchets miniers du terril DII ou des sulfures sont encore présents.

**Dans le scenario 1,** nous considérons la dissolution des minéraux d'oxydation observés dans les terrils DI et DIII.

**Dans le scenario 2**, dans une eau de drainage en équilibre avec l'environnement carbonaté, on simule la dissolution des sulfures.

**Dans le scénario 3**, on reprend le scenario 2 et on teste l'influence de la salinité sur la teneur maximale des eaux de drainage en métaux.

Dans les trois scenarios nous utiliserons un assemblage molaire qui respecte les proportions molaires relatives de chaque sulfure observé dans les déchets (Tableau IV.3). A partir de cet assemblage nous simulerons la dissolution d'un nombre de µmoles progressivement croissant.

Tableau IV.3: Proportion molaires des minéraux dans les déchets de laverie

Minéral	Formule chimique	% m	olaire
	_	Déchets oxydés	Déchets sulfurés
Calcite	CaCO <sub>3</sub>	87,12	93,83
Cérusite	PbCO <sub>3</sub>	0,97	-
Oxy-hydroxides de	-	0,89	-
Fe			
Hémimorphite	$Zn_4 Si_2O_7(OH)_2$	2,56	-
	H <sub>2</sub> O		
Smithsonite	ZnCO <sub>3</sub>	0,22	-
Hydrozincite	$Zn_5(CO_3)_2(OH)_6$	0,12	-
Dolomite	$CaMg(CO_3)_2$	1,41	1,53
Quartz	SiO <sub>2</sub>	3,7	1,16
Barytine	BaSO <sub>4</sub>	0,11	-
Célestite	SrSO <sub>4</sub>	0,11	-
Gypse	CaSO <sub>4</sub>	-	0,09
Strontianite	SrCO <sub>3</sub>	0,25	-
Pyrite	$FeS_2$	-	0,18
Sphalérite	ZnS	-	3,17
Galène	PbS	-	0,04

## IV. Prédiction de la dynamique des métaux dans les eaux de drainage des déchets et dans les eaux naturelles

#### IV.1. Dynamique des métaux dans les eaux de drainage des terrils de déchets

#### Scenario 1 : Dissolution des déchets oxydés

Les minéraux des déchets des terrils DI et DIII à leur état actuel sont mis en solution pour calculer les indices de saturation des espèces susceptibles de se former ainsi qui les concentrations maximales de Pb et Zn libérées en solution aqueuse.

#### Réaction des minéraux oxydés dans l eau

Le tableau IV.4 donne les quantités de minéraux qui ont été dissoutes dans l'eau en respectant leurs proportions relatives dans les déchets. 7 assemblages minéraux sont obtenus en dissolvant 10, 100, 1000, 2000, 3000, 4000 et 5000 µmoles de déchets.

Tableau IV.4 : Quantités de minéraux mis en réaction dans chaque assemblage

Quantités de déchets dissoutes dans 1 litre d'eau (µmol)	10	100	1000	2000	3000	4000	5000
Assemblage N°	1	2	3	4	5	6	7
Calcite (µmol)	8,71	87,12	871,20	1742,4	2613,6	3484,8	4356,0
Quartz (μmol)	0,37	3,70	37,00	74,00	111,00	148,00	185,00
Cérusite (µmol)	0,10	0,97	9,70	19,40	29,10	38,80	48,50
Smithsonite (µmol)	0,02	0,22	2,20	4,40	6,60	8,80	11,00
Hydrozincite (μmol)	0,01	0,12	1,20	2,40	3,60	4,80	6,00
Hémimorphite (μmol)	0,26	2,56	25,60	51,20	76,80	102,40	128,00
Dolomite (μmol)	0,14	1,41	14,10	28,20	42,30	56,40	70,50
Barytine (µmol)	0,01	0,11	1,10	2,20	3,30	4,40	5,50
Célestine (µmol)	0,01	0,11	1,10	2,20	3,30	4,40	5,50
Strontianite (µmol)	0,03	0,25	2,50	5,00	7,50	10,00	12,50
Fe(OH)3 (µmol)	0,09	0,89	8,90	17,80	26,70	35,60	44,50

La précipitation n'est pas autorisée et pour chacun des 7 assemblages nous calculons les log des indices de saturation (log SI) des minéraux mis en solution. De plus nous intégrons à cette liste l'hydrocerusite qui pourrait aussi être présente dans ce contexte (Tableau IV.5 et Figure IV.1).

Tableau IV.5 : Résultats obtenus suite à la simulation de la mise en réactions des minéraux des déchets DI et DIII

Assemblage	Déchets dissouts (µmoles)	рН	log SI Hydrocerusite	log SI Hydrozincite	log SI Hemimorphite	log SI Smithsonite	log SI Cerusite	log SI Calcite
1	10	8,97	-1,50	-2,40	8,92	-3,28	-1,32	-2,98
2	100	9,80	2,74	3,47	15,13	-2,07	0,11	-0,31
3	1000	10,30	5,98	8,70	20,52	-0,95	1,23	1,62
4	2000	10,38	6,94	10,37	22,19	-0,56	1,58	2,06
5	3000	10,40	7,49	11,39	23,19	-0,31	1,79	2,29
6	4000	10,41	7,88	12,13	23,92	-0,12	1,94	2,45
7	5000	10,41	8,17	12,72	24,49	0,03	2,06	2,57

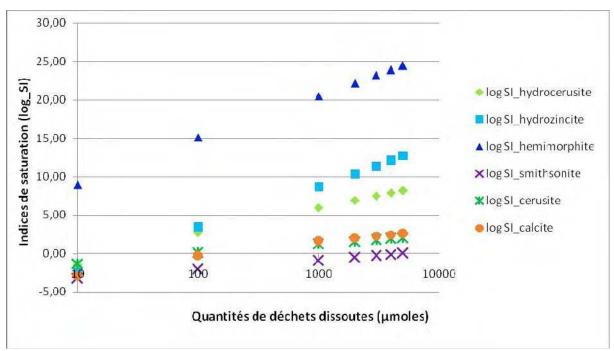


Figure IV.1 : Evolution des indices de saturation des minéraux suite à la mise en réaction des minéraux des déchets oxydés avec l'eau de pluie

Le pH de l'eau pure étant de 7 passe à 8,97 suite à la dissolution de 10 µmole de déchets. Le pH continue à augmenter avec la quantité de déchet dissoute pour se stabiliser à 10,4 à partir de 3000 µmoles. La nature à dominante carbonatée des minéraux dissouts est responsable de la basicité du pH.

Les indices de saturation de tous les minéraux tendent à l'augmentation, à l'exception de l'hémimorphite qui est sursaturée dès les plus faibles quantités de déchets dissoutes, les autres minéraux n'atteignent la saturation qu'à différents niveau de la réaction de dissolution :

- L'hydrozincite atteint sa saturation à partir de 30 µmoles dissoute de l'assemblage minéral.
- La cérusite atteint sa saturation à partir de 90 μmoles dissoutes de l'assemblage minéral soit à 0,87 μmole de cérusite initiale dissoute.
- La calcite atteint sa saturation à partir de 1400 μmoles dissoutes de l'assemblage minéral soit à 121,97 μmole de calcite initiale dissoute.
- La smithsonite atteint sa saturation à partir de 4800 μmoles dissoutes de l'assemblage minéral.

#### Résultats à l'équilibre des minéraux secondaires avec l'eau

Pour obtenir les concentrations maximales des métaux en solution, l'équilibre des minéraux secondaires avec l'eau est imposé autrement dit la précipitation est permise pour permettre le contrôle de la composition de la solution par les minéraux qui précipitent (Tableau IV.6 et Figure IV.2). Les concentrations maximales de Pb et Zn en solution sont calculées pour deux états d'équilibre :

**Equilibre 1:** comprenant l'eau avec les minéraux observés réellement sur le terrain : calcite, cérusite, smithsonite, hydrozincite et hémimorphite,

**Equilibre 2:** comprenant l'eau avec les minéraux observés sur le terrain auxquels nous ajoutons l'hydrocérusite qui est une phase susceptible de précipiter mais qu'on n'a pas observée.

Tableau IV.6 : Concentrations maximales de Pb et Zn en solution suite à la dissolution des minéraux oxydés et comparaison aux normes de l'OMS

quantité de	équil	ibre 1	équili	ibre 2	
déchets	Concentra	tion (µg/l)	Concentration (µg/l)		
dissouts (µmol)	Pb	Zn	Pb	Zn	
10	20	1,00	20	1,00	
100	161	0,20	25	0,20	
1000	123	0,06	21	0,06	
2000	99	0,04	18	0,04	
3000	83	0,03	16	0,03	
4000	72	0,03	15	0,03	
5000	65	0,03	15	0,03	
Norme	10	3000	10	3000	

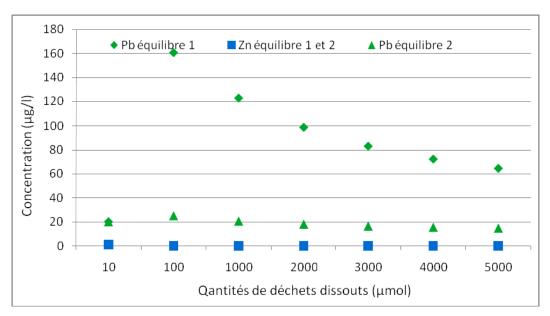


Figure IV.2 : Concentrations maximales de Pb et Zn en solution suite à la dissolution des minéraux oxydés

Dans les deux états d'équilibre l'hémimorphite contrôle le Zn en solution à des concentrations ne dépassant pas 1µg/l.

Pb en solution est contrôlé par la cérusite dans le premier équilibre et sa concentration maximale est de 161 μg/l. Dans le deuxième équilibre où la précipitation de l'hydrocérusite est permise la concentration maximale de Pb est de 25 μg/l. Elle est donc contrôlée par ce minéral. La diminution de la concentration de Pb par rapport à l'équilibre 1 provient du fait qu'une mole d'hydrocérusite nécessite 3 moles de Pb et 2 moles de CO<sup>3-</sup>. Etant donné l'abondance des carbonates dans la solution en équilibre avec la calcite, la précipitation de ce minéral est favorisée.

$$2 \text{ H}_2\text{O} + 2 \text{ H}\text{CO}_3^- + 3 \text{ Pb}^{2+} \implies \text{Pb}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2 + 4 \text{ H}^+$$

Dans ce scenario 1, les concentrations de métaux en solution tendent à la diminution quand les quantités de déchets dissoutes augmentent car la saturation de la solution avec les phases plombifères et zincifères est plus rapidement atteinte en raison de l'abondance des ions carbonates et du silicium provenant de la dissolution de la calcite et du quartz, phases majeures dans ces déchets.

#### Scenario 2 : Dissolution des sulfures dans une eau en équilibre avec la calcite

Dans le scenario 2, nous considérons que l'eau atteint l'équilibre avec la calcite et nous permettons aux phases secondaires observées sur le terrain (hydrozincite, hémimorphite,

smithsonite, cérusite et gypse) de précipiter si la solution devient sursaturée. Dans cette modélisation on n'a pas permis la précipitation de l'hydrocérusite du fait que ce minéral n'a pas été observé dans les déchets d'une part, et qu'il empêche la précipitation de la cérusite dont la présence a bien été mise en évidence d'autre part.

Le calcul sera réalisé avec des quantités croissantes de sulfures correspondant aux quantités contenues dans 100, 500, 1000, 1500, 2000 et 2500 µmol de déchets. Le tableau IV.7 présente les quantités relatives des différents minéraux dans chaque assemblage en respectant leur pourcentage molaire dans les déchets. La quantité de quartz est maintenue fixe à 1,16 µmole pour permettre aux autres phases zincifères de précipiter et pour limiter le contrôle des concentrations de Zn par l'hémimorphite.

Les concentrations des minéraux sont calculées dans l'eau en équilibre avec les phases minérales secondaires : hémimorphite, smithsonite, hydrozincite, cérusite, hydrocérusite et calcite en permettant à ces phases de précipiter s'ils atteignent la saturation dans la solution.

Les quantités de déchets mis en solution sont choisies de façon à ce qu'elles soient suffisantes pour permettre d'atteindre l'équilibre avec les différentes phases considérées et calculer les concentrations métalliques maximales en solution contrôlées par ces équilibres.

Tableau IV.7: Quantités de minéraux mis en réaction

Assemblage	1	2	3	4	5	6
Quantités de déchets dissoutes dans 1 litre d'eau (μmol)	100	500	1000	1500	2000	2500
sphalérite (µmol)	3,17	15,85	31,7	47,55	63,4	79,25
galène (µmol)	0,04	0,2	0,4	0,6	0,8	1
pyrite (µmol)	0,18	0,9	1,8	2,7	3,6	4,5

La dissolution de la calcite libère des ions carbonates dont la concentration augmente de 84 à 143 µmol ce qui favorise la précipitation des carbonates de Pb et Zn en réduisant la concentration de ces deux métaux dans la solution.

En présence de silicium dans la solution, l'hémimorphite précipite en premier lieu et contrôle les concentrations de Zn en solution. Quand l'apport de Zn en solution est suffisant, l'hydrozincite commence à précipiter à partir de 4,75 µmoles de sphalérite dissoute, tandis que la smithsonite reste sous-saturée.

L'hydrocérusite atteint l'équilibre pour 0,11 µmoles de galène dissoutes alors que le log SI de la cérusite reste négatif.

Les résultats de la modélisation montrent que hydrozincite et hydrocérusite sont les deux minéraux carbonatées qui devraient précipiter suite à l'altération des sulfures (Tableau IV.8). Toutefois, la smithsonite et la cérusite ont été également observées dans les déchets.

Tableau IV.8 : Indices de saturation des minéraux secondaires dans une solution en équilibre avec la calcite

Quantités de sulfures dissoutes (µmol /l)	pН	log SI Hydrocérusite	log SI Hydrozincite	log SI Hémimorphite	log SI Smithsonite	log SI Cérusite	log SI Gypse
100	9,9	-1,37	-12,65	0,00	-5,30	-1,26	-4,94
500	9,8	0,86	0,00	0,00	-2,70	-0,48	-4,21
1000	9,7	1,91	0,00	0,00	-2,62	-0,09	-3,87
1500	9,6	2,02	0,00	0,00	-2,53	0,00	-3,65
2000	9,5	1,88	0,00	0,00	-2,44	0,00	-3,48
2500	9,4	1,73	0,00	0,00	-2,36	0,00	-3,35

Les concentrations maximales de Pb et e Zn sont respectivement de 83 et 132 µgL<sup>-1</sup> (Figure IV.3). Pb est 8 fois plus élevé que la norme OMS contrairement à Zn qui est beaucoup plus faible. Les concentrations de métaux en solutions diminuent au delà de 1000 µmoles dissoutes de l'assemblage sulfuré sous l'effet du contrôle qu'exerce les minéraux secondaires (hydrozincite et cérusite) dont les quantités précipitées augmentent.

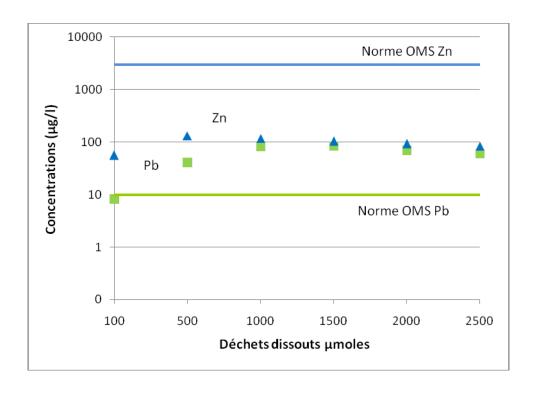


Figure IV.3 : Concentrations de Pb et Zn dans une solution aqueuse en équilibre avec la calcite.

Des quantités croissantes de déchet ont été utilisées. Les normes sanitaires pour Pb et Zn sont représentées par les lignes droites. Les concentrations de Pb sont représentées par des losanges, celles de Zn par des carrées.

## IV.2. Dynamique des métaux dans les eaux naturelles loin des déchets : cas de l'augmentation de la salinité

Le scenario 3 considère les mêmes conditions initiales du scenario 2 à savoir la mise en réaction des sulfures dans une eau en équilibre avec la calcite et contenant 1,16 µmole de silicium. La quantité de minéraux mis en réaction correspond à celle qui se trouve dans 1500 µmoles de déchets. Cette quantité a été choisie parce que d'après le scenario précédent elle permet d'avoir un état d'équilibre de la solution avec la majorité des minéraux secondaires qui contrôlent les concentrations de Pb et Zn en dissouts.

Les quantités de sulfures mis en réaction sont données dans le tableau IV.10.

Tableau IV.9 : Quantités de minéraux mises en réaction

Quantités de déchets dissoutes dans 1 litre d'eau (μmol)	1500
sphalérite (µmol)	47,55
galène (µmol)	0,6
pyrite (µmol)	2,7

Les conditions ci-dessus ont servi à la simulation à quatre valeurs de salinités différentes correspondantes à différents type d'environnement: 0 g/l, 2g/l (eau de rivière), 35 g/l (eau de mer) et 58 g/l (eau lagunaire ou lacustre)

Tableau IV.10: Résultats de la simulation du scénario 3

Salinité (g/l)	Force ionique I (mol/l)	pН	γ <sub>Pb2+</sub>	Yzn2+	Pb (μg/l)	Zn (μg/l)
0	0,001	9,6	0,955	0,956	84	105
2	0,035	9,7	0,743	0,758	101	119
35	0,576	9,9	0,493	0,550	124	181
58	0,939	9,9	0,460	0,526	124	215

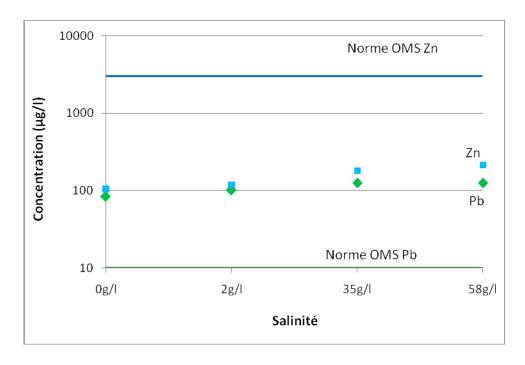


Figure VI.4: Concentration de Pb et Zn suite à la dissolution des sulfures des déchets dans des eaux de salinité croissantes

Les normes sanitaires pour Pb et Zn sont représentées par les lignes droites. Les concentrations de Pb sont représentées par des losanges, celles de Zn par des carrées.

Le pH passe de 9,6 à 9,9 suite à l'augmentation de la quantité de calcite dissoute pour maintenir l'équilibre de la solution.

Les indices de saturations des minéraux secondaires (smithsonite, cérusite et hydrocérusite) montent des légères diminutions. L'hémimorphite et l'hydrozincite gardent l'équilibre avec la solution (Figure VI.5). Ceci explique l'augmentation des concentrations des métaux en solution (figure VI.4). Toutefois, cette augmentation reste sans effet significatif sachant que même si la salinité augmente d'un facteur 2, les concentrations de métaux n'augmentent pas autant.

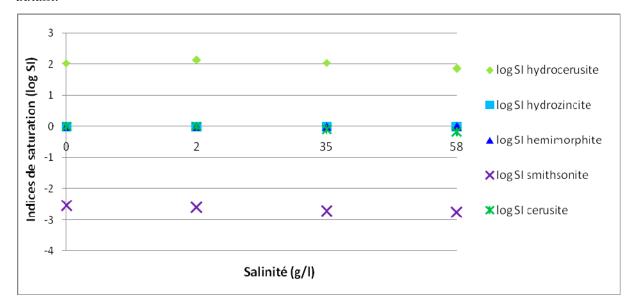


Figure VI.5 : Indices de saturation des minéraux secondaires suite à la dissolution des sulfures des déchets dans des eaux de salinité croissantes

#### V. Conclusion

La modélisation géochimique avec le code Phreeqc a intégré des phases pures de sulfures, silicates et carbonates, en conditions atmosphériques. Les résultats confirment en partie les observations minéralogiques. En effet, la simulation de la dissolution de la galène et de la sphalérite dans une eau contenant du silicium et équilibrée avec la calcite favorise la formation de l'hémimorphite et des carbonates hydroxylés (hydrozincite et hydrocerusite). Ce type de carbonate et les carbonates simples (cérusite et smithsonite) n'arrivent à être en équilibre dans la même solution pour des considérations de cinétique chimique qui à pH basique favorise la précipitation des carbonates hydroxylées. En revenche, l'étude minéralogique des déchets a montré la présence conjointe de la smithsonite à l'hydrozincite mais l'hydrocérusite n'a pas été identifiée. Seule la cérusite serait la phase carbonatée plombifère présente dans ces déchets.

En l'absence d'analyses chimiques des eaux de drainage, la modélisation a permis le calcul des concentrations de Pb et de Zn dans une solution où coexistent les minéraux observé dans les déchets avec l'hydrocérusite pour un autre cas. Les concentrations obtenues varient entre 15 et 161 μg/L pour Pb et entre 0,03 et 1 μg/l pour Zn. Ainsi, il n'y que Pb qui dépasse les normes de concentrations dans les eaux potables données par l'OMS jusqu'à 16 fois.

Dans un contexte carbonaté similaire (site de Sentein en France), Brunel (2005) indique des concentrations en Pb et en Zn varient respectivement entre 0,1 et 21,2 µg/l et entre 34 et 169 µg/l analysées dans des drainages miniers neutres. Ces concentrations sont comparables à nos valeurs malgré les différences qui seraient liées aux proportions des minéraux à l'état d'équilibre au moment de l'échantillonnage.

Par contre, dans le cas d'un drainage minier acide les concentrations sont beaucoup plus élevées. Romero et al (2007) indique, dans des eaux de pH entre 1,9 et 4,4, les intervalles de concentrations suivants : Zn (36,7–2435 mg/1) et Pb (<0,01–0,6 mg/1).

L'influence de l'augmentation de la force ionique de l'eau a été testée dans ce même contexte. Le but été de prédire les concentrations maximales dans un environnement plus salé, à l'occasion d'un mélange avec les eaux naturelles (exemple eaux marines), ou d'une dissolution des sels du trias salifère fréquent dans le nord de la Tunisie. Les minéraux secondaires montrent des légères diminutions quand la salinité passent de 0 à 58 g/l. par conséquent, les concentrations de Pb et Zn augmentent mais pas de la même ampleur que la salinité. Pour  $1500~\mu g/l$  de déchets mis en réaction, Pb passe de 85 à  $124~\mu g/l$  alors que Zn double de 105 à  $215~\mu g/l$  entre les deux extrêmes de salinité. Ainsi, le passage en solution des métaux reste toujours très limité par présence des carbonates.

Quelque soit la salinité des eaux, l'environnement carbonaté exerce une limitation du passage en solution des métaux en les figeant dans les phases minérales solides. Les concentrations des métaux sont très faibles par rapport à celle dans un drainage minier acide. Les concentrations de Zn de plusieurs ordres de grandeurs inférieures aux normes de l'OMS (1987). Par conséquent les concentrations de Cd doivent également être très faible puisqu'il ces deux éléments sont liés aux même minéraux. Seul Pb atteint des concentrations dépassent largement les normes de l'OMS (1987). Cependant étant donné le faible débit (drainage intermittent au moment des pluies), la dilution naturelle permettrait de ne pas craindre de contamination importante des cours d'eau et des nappes dans le voisinage des déchets.

En conclusion, l'évolution minéralogique et géochimique, des déchets miniers (oxydés ou sulfurés) de Jebel Ressas, est contrôlée par les carbonates en plus de l'hémimorphite qui contrôle fortement les concentrations de Zn. Ces phases fixent les métaux par précipitation sous forme de minéraux stables en conditions oxydantes et génèrent des drainages miniers neutres peu concentrés en métaux solubles et pouvant être dilué à la rencontre du réseau hydrographique. Par conséquent, l'altération chimique de ces déchets ne pose pas de risque de contamination des eaux et des sols par Pb, Zn et Cd.

Si, comme il a été montré, la mobilisation des métaux par altération chimique des déchets est négligeable, le transfert des métaux par érosion mécanique peut devenir un mécanisme efficace. En particulier, à l'occasion de pluies torrentielles, des grandes quantités de déchets pourront être démantelées et transportées par voie hydrique. Le transport éolien est également possible et efficace dans ce climat semi-aride. L'érosion est d'autant plus facilitée que la granulométrie des particules de déchets est fine. Les particules métallifères pourront ainsi être directement ingérées par l'homme ou avoir un impact sur des milieux ou les conditions physico-chimiques sont favorables à leur mobilité.

### **CHAPITRE V**

## TRANSFERT HYDRIQUE PARTICULAIRE

#### Chapitre V: Transfert hydrique particulaire de la contamination métallique

#### I. Introduction

Le climat méditerranéen est globalement caractérisé par des précipitations limitées, toutefois la variabilité saisonnière et annuelle des précipitations est importante avec l'occurrence de pluies torrentielles à la fin de la saison sèche notamment entre septembre et novembre (Martinez-Casanovas et al., 2002). Ces événements pluvieux sont brefs mais favorisent l'érosion hydrique liée à la forte énergie cinétique de l'eau.

Le bassin méditerranéen a fait l'objet de plusieurs études sur l'érosion hydrique afin de mettre en œuvre de nouvelles techniques de quantification de la charge solide des rivières et de la perte de sols notamment avec l'équation universelle de la perte des sols établie par Wischmeier et Smith, 1978 (Ben Cheikha et Gueddari, 2008, et autres), ainsi que pour étudier l'effet de la cohésion, du couvert végétal et de l'occupation des sols sur leur exposition à l'érosion hydrique (Poesen et Hooke, 1997; Martinez-casanovas, 1998, Cerda, 1994; Chisci, 1994, Porta, 1994; Pastor et Castro, 1995).

Sous ces conditions climatiques méditerranéennes, les déchets miniers abandonnés dans la nature, sont aussi très vulnérables face à l'érosion hydrique. Leur faible granulométrie et cohésion les rendent particulièrement fragiles sous l'action des pluies torrentielles. Au cours des années, ces déchets déposés en terrils soutenues par des digues généralement redressés, perdent progressivement leur stabilité et peuvent s'effondrer.

Suivant l'énergie de l'eau et la morphologie du terrain, les quantités de déchets démantelées des terrils sont transportées dans les ravines pour rejoindre les cours d'eau ou bien pour se déposer sur les sols plus ou moins loin des lieux de stockage.

En Tunisie, plusieurs travaux de recherches sur la contamination métallique des sols et des sédiments par les déchets miniers ont traité cet aspect de contamination avec :

- des approches analytiques prospectives en menant des suivis le long des cours d'eau et des dans les sols pour évaluer leur contenu en métaux, identifier les phases minérales porteuses et étudier la dynamiques des métaux dans ces environnements (Boussen, 2010, Sbei, 2007, Chakroun et al., 2006).
- des approches rétrospectives basées sur les techniques d'analyse de l'imagerie spatiale qui permet la détection des minéraux métallifères issues de déchets miniers et dispersé aux environs de sites miniers (eg. Mezned et al., 2006 et Gannouni et al., 2009).

Le site de Jebel Ressas avec les terrils de déchets entreposés au pied du flanc ouest du massif soumis aux conditions climatiques méditerranéennes, apparait dans un contexte climatique et géographique qui peut favoriser la dispersion des déchets vers les sols agricoles avoisinants. La plaine de Mornag est drainée par l'oued Meliane qui se déverse dans le Golfe de Tunis. Ce dernier reçoit les apports de son affluent de la rive droite, oued El Hma. Les apports hydriques de ces deux cours d'eau sont contrôlés par deux barrages de stockage. De ce fait le débit de l'eau est tributaire des apports des bassins intermédiaires et éventuellement des volumes déversés ou évacués volontairement lors des crues. Les résultats des travaux menés dans la partie aval de la plaine montrent la présence d'une contamination par des métaux lourds (Mezned et al., 2006). En effet, au niveau du bassin aval de l'oued Hma, les déchets miniers du site de Jebel Ressas pourraient être érodées et les particules transportées jusqu'à ce cours d'eau par ruissellement le long des petites ravines lors des évènements pluvieux intenses.

Dans ce chapitre, nous développons une méthode de caractérisation rapide et facilement reproductible du transport des particules de déchets depuis les terrils vers les sols. Cette méthode se base sur la cartographie des facteurs morphologiques contrôlant l'érosion.

La démarche adoptée consiste à reconstituer le relief avec un modèle numérique de terrain de haute résolution, puis en déduire le réseau hydrographique et les zones de dépressions. Les ravines connectant les terrils aux dépressions mettent en évidences des zones privilégiées d'accumulation des particules contaminées dans les sols. Cette cartographie intègre également le facteur anthropique qui influence la dynamique naturelle de l'érosion hydrique par la présence de constructions, des chemins et des monticules au tour des parcelles de terrain. Elle aboutit à la construction d'une carte d'aléa lié au transfert hydrique particulaire, à savoir une cartographie des zones potentiellement contaminées par les particules métallifères provenant de l'érosion des terrils et constituant donc un danger.

#### II. Méthodologie

#### II.1. Observations in situ

Il s'agit de noter pendant le beau-temps et au moment d'un événement pluvieux torrentiel des observations de l'état du terrain :

- figures de d'érosion sur les déchets et les sols
- observation des différents cours d'eaux possibles pouvant connecter les déchets aux sols et à Oued Hma.

- Chercher les zones d'accumulations des eaux dans les sols

Ces observations permettent de délimiter dans l'espace un secteur d'intérêt sur lequel on modélisera l'aléa de dispersion de la contamination par voie hydrique particulaire.

#### II.2. Construction de la carte du transfert hydrique particulaire

Notre objectif n'étant pas la quantification des déchets érodés, nous n'utilisons pas l'équation universelle de perte des sols, mais nous nous basons sur la morphologie détaillée du terrain qui est déterminante pour la compréhension de l'ensemble des cheminements préférentiels de l'eau. Elle permet également de déterminer la répartition, la forme et la connectivité entre les terrils (source de la contamination) et les dépressions (récepteurs de la contamination).

#### - Construction du Modèle Numérique de Terrain (MNT) :

Le MNT est une grille raster régulière de valeurs d'altitude (Z) à la surface d'un terrain.

Sur le site de Jebel Ressas, un MNT de résolution 3m, est construit en utilisant le logiciel ENVI avec des photoaériennes à recouvrement stéréoscopiques de l'année 1998.

La méthode de production du MNT est basée sur une procédure de corrélation automatique sur les comptes numériques des pixels de plusieurs images stéréoscopiques (Kraus et Waldhäusl, 1998). Cette technique permet de retrouver les points homologues entre les diverses images et ainsi de calculer, pour chaque pixel, l'altitude en ce point. Cette méthode nécessite deux ou plusieurs clichés stéréoscopiques se recouvrant sur la zone d'étude, ainsi qu'un certain nombre de points de calage, bien répartis et connus en (X, Y, Z). Les points de calage ont été introduits à partir d'une image satellite SPOT du site.

- extraction de la carte du réseau hydrographique : le réseau hydrographique théorique est calculé à partir du MNT avec le logiciel ILWIS. La méthode se base sur le suivi du ruissellement naturel des eaux entraînées par la gravité et guidées par la topographie.

Les directions d'écoulement de l'eau en chaque pixel sont déterminées à partir des valeurs altimétriques du MNT, sachant que l'eau emprunte le chemin défini par la ligne de plus grande pente. Ainsi, les cellules se déversent les unes dans les autres en fonction de la pente locale, et le chemin de ruissellement est tracé.

- carte des dépressions : elle est obtenue par la simulation d'un remplissage par l'eau ou « inondation », jusqu'à la côte de 80m, qui comble les zones basses du terrain connectés aux rigoles drainant les terrils de déchet.

- carte des facteurs anthropiques : Les constructions qui peuvent agir sur le circuit naturel de l'eau comme les murs et les routes sont digitalisés à partir de la carte topographique puis superposés au MNT.

La carte d'aléa du transfert hydrique particulaire des déchets est obtenue en combinant ces trois cartes au MNT ce qui permettra de visualiser les zones d'érosion sur les terrils, les ravines dans les sols qui conduisent les particules de déchets vers les zones dépôt à plus faible altitude et liées à l'atténuation de la pente.

## II.3. Analyses de Pb, Zn et Cd dans les sols agricoles et les sédiments de Oued HmaII.3.1. Echantillonnage

Les échantillons de sol dans la parcelle agricole concernée par le ruissellement à partir de terril DIII sont prélevés suivant un transect (Figure V.1) dont le choix répond aux points suivants :

- perpendiculaire à la ligne de pente qui est la direction du transfert hydrique particulaire
- transversalement à la plus importante dépression identifiée par modélisation et par les observations de terrain, dans laquelle peut avoir lié l'accumulation de la contamination.

  Les points sont choisis de façon à pouvoir déterminer les limites de la zone d'accumulation de la contamination pour pouvoir comparer aux résultats du modèle et des analyses chimiques.

  L'échantillon **Ch** est prélevé sur le chemin qui passe devant le terril DI pour déterminer s'il y a un cheminement de la contamination depuis le DI par cette voie vers les terrains agricoles. Il est à noter la présence d'une clôture qui détourne le circuit naturel de l'eau vers le chemin. Huit échantillons de sol d'environ 1,5 kg ont été prélevés à la surface du sol (premières dizaines de centimètres) dans des sacs en plastiques.

D'autre part, pour savoir si la contamination est capable d'atteindre Oued Hma, deux échantillons de sédiments superficiels dans Oued Hma ont été prélevés. L'échantillon Sd1 est prélevé à l'aval des terrils de déchets, Sd 2 est prélevé à l'amont des déchets (Figure V.1). La masse de chacun est d'environ 1,5 kg.



Figure V.1 : Points d'échantillonnage dans les sols S1 à S10 sont des échantillons de sols prélevés suivant un transect. Ch est un échantillon de sol prélevé sur un chemin passant à coté des terrils DI et DII



Figure V.2: Points d'échantillonnage des sédiments dans Oued Hma

#### II.3.2. Préparation

Au laboratoire, les échantillons sont séchés à l'air libre, puis tamisés à 2 mm pour enlever la fraction graveleuse. Ensuite ils ont été homogénéisés et quartés pour obtenir une fraction représentative pour les analyses.

Cette fraction a été finement broyée avec un mortier en agate et conservée dans des piluliers en polypropylène.

#### II.3.3. Analyses chimiques

Les échantillons de sols et de sédiments ont été analysés pour leur concentration en Pb, Zn et Cd au laboratoire ALS Minerals.

Le solide a subi une attaque acide totale à chaud (quatre acides), ensuite la solution a été analysée par ICP-MS.

#### III. Résultats

#### III.1. Description de l'action érosive de l'eau sur les déchets et de leur transport

Les bordures des terrils, témoignent d'une érosion hydrique poussée avec développement de ravines, écoulement de l'eau en micro-cascade, entrainement des particules de déchets vers la base des terrils et des effondrements localisés de déchets.

A la surface des terrils, les ravines se forment et se propagent dans des zones de faible cohésion, et montrent un écoulement de l'eau à l'ouest des terrils vers les terrains agricoles.



Figure V.3 : Surface ravinée du terril DII dans les zones de faible cohésion

Au pied des talus du terril DII, la cohésion est faible mais le terrain est plat, les ravines sont peu profondes et peu nombreuses

Le terril DII est très perturbé par des creusements par des engins qui prélèvent des grandes quantités de déchets pour utilisation à l'extérieur du site ce qui crée des zones instables en

forme de falaises. Soumis à l'action de l'eau depuis plusieurs décennies, même les parties consolidées du terril, se fissurent progressivement et finissent par s'effondrer en blocs.



Figure V.4 : Aspect de la surface du terril DII après l'enlèvement d'importante quantité de déchets par les engins

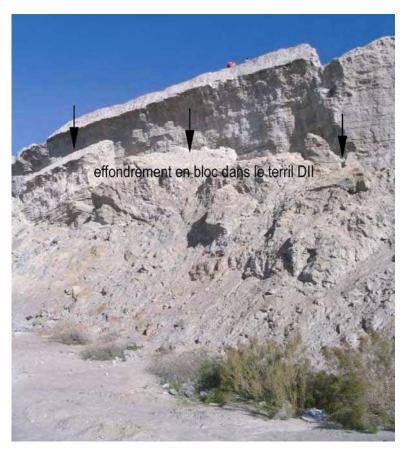


Figure V.5 : Instabilité et fragilisation du terril DII suite à l'effondrement de blocs de déchets

Vue l'inclinaison générale de la topographie du site vers l'ouest, les particules de déchets érodées par l'eau doivent circuler vers les terrains agricoles de la plaine de Mornag pour rejoindre Oued Hma.

Ce site est particulièrement caractérisé par un contraste très prononcé de la pente entre le massif qui est très redressé (80°) et la plaine.

Les observations sur le terrain, la carte topographique et les images Google Earth confirment le fait que le réseau hydrographique entre les déchets et Oued Hma est très peu étendu et incisé. Seulement quelque ruisseaux intermittents existent et assurent le transfert des particules des déchets érodés. Le ruissellement loin des déchets est, de ce fait, très limité et la matière érodée devrait se concentrer sur des terrains proches des terrils.

En Avril 2009, on a eu l'occasion d'être sur le terrain quand une pluie torrentielle à eu lieu. On a remarqué que :

- à la surface de DIII, l'eau stagne sur la partie nord du terril pendant quelques semaines. Sur cette partie la perméabilité est très faible et la surface est légèrement en dépression.
- du coté ouest du terril, des anciennes ravines sont réactivées et l'eau ruisselle perpendiculairement à la route et rejoint d'autres ravines sur les parcelles agricoles voisines. L'énergie de l'eau est rapidement affaiblie avec la diminution de la pente.

Les images Google Earth du 31 août 2009 ont été prises tout de suite après un autre événement pluvieux violent. Sur ces images on voit clairement des déchets entrainés dans les quelques ravines réactivées et se déposant et traversant la route.

En face de DI et DII les chemins de l'eau sont barrés par un long mur construit autour des terrains agricoles. La pente étant très faible, le chemin naturel de l'eau est facilement modifié par les actions humaines: murs, chemins entre et dans les parcelles de terrains, labour, haies et monticules.

Ces observations in situ ont permis de localiser une zone affectée par l'érosion hydrique au niveau du terril DIII donnant lieu à un transport particulaire le long de rigoles vers une zone de terrains agricoles à l'ouest du terril. En raison de ces observations la zone qui à été consacrée à l'étude présentée ci-dessous a été définie entre les terrils de Jebel Ressas à l'est et l'Oued Hma à l'ouest pour identifier un éventuel transport hydrique particulaire vers le cours d'eau drainant ce bassin versant.

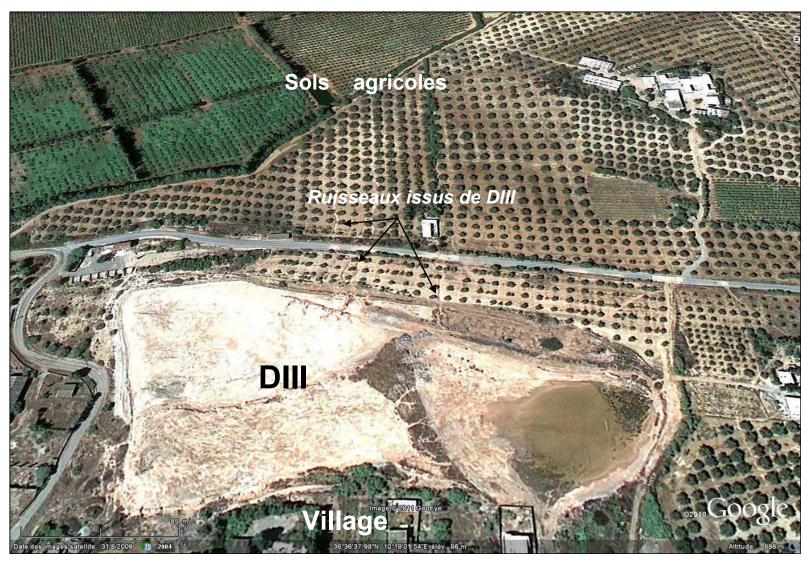


Figure V.6: Image Google Earth montrant les ravines d'érosion à partir du terril DIII

Le déchet érodé est transporté vers les sols agricoles principalement par les quelques ravines qui sont réactivées pendant les épisodes pluvieux

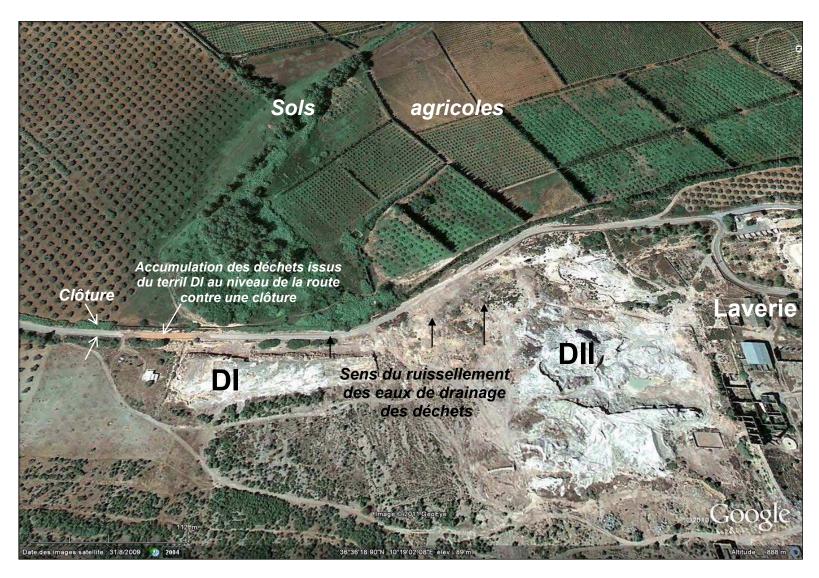


Figure V.7: Image Google Earth montrant les ravines d'érosion à partir des terrils DI et DII

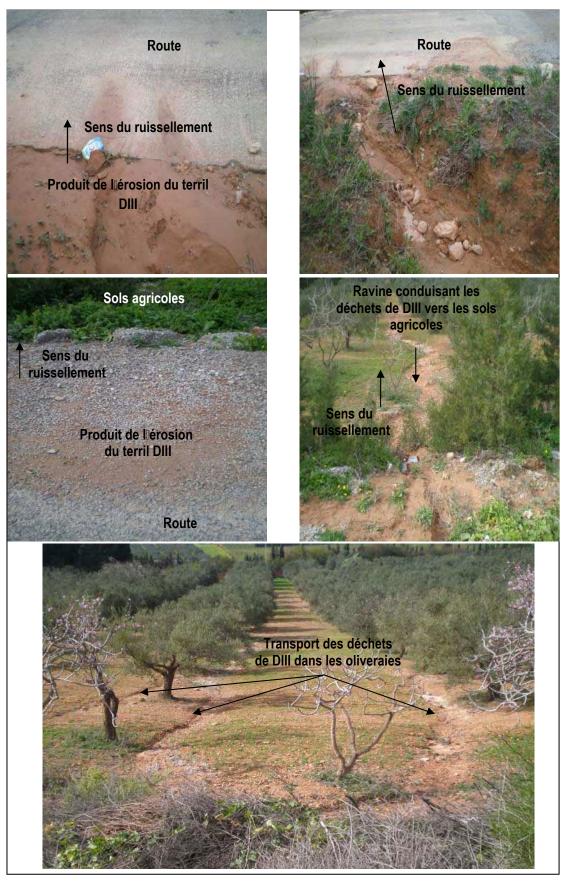


Figure V.8 : Photos montrant le ruissellement sur la route puis dans des ravines dans les oliveraies en face du terril DIII

#### III.2. Carte prédictive de l'aléa transfert hydrique

Le MNT: Le MNT a été réalisé sur la zone depuis les terrils de Jebel Ressas à l'est jusqu'à l'Oued Hma à l'ouest. L'altitude du terrain est comprise entre 133 m du coté de la montagne et 59 m du coté de Oued Hma. Le MNT a été réalisé avec une résolution de 3m et est représenté en niveaux de gris. La couleur foncée correspond aux basses altitudes (Figure V.10).

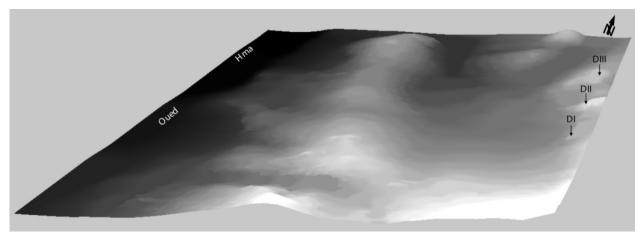


Figure V.9 : Modèle Numérique de Terrain de résolution 3m Morphologie plate du terrain entre les terrils de déchets et oued Hma avec un léger soulèvement au milieu ce qui forme une zone basse entre celui-ci et les terrils.

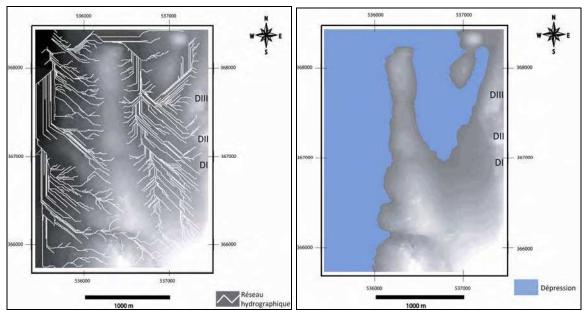


Figure V.10 : Carte du réseau hydrographique et des zones basses calculée à partir du MNT

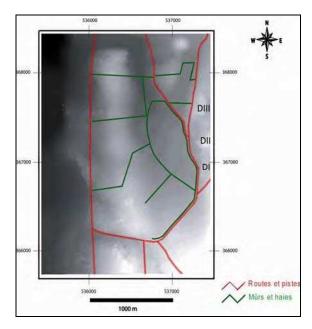


Figure V.11 : Carte des chemins et des séparations entre les parcelles de terrains

# Carte du réseau hydrographique

Le MNT montre que l'écoulement se produit vers l'ouest depuis les terrils, en accord avec les observations in situ. Il ne fait pas apparaître de cheminement de l'eau depuis les terrils jusqu'à l'Oued Hma. Il montre que la distance parcourue par l'eau de ruissellement depuis les terrils ne dépasse pas 600 m et s'arrête dans les terrains agricoles en raison de la présence d'un léger relief (Figure V.11).

# Carte de dépression

La topographie plane des sols ne permet pas de montrer des dépressions à partir d'un MNT de 3m de résolution. Toutefois on a mis en évidence une zone basse entre l'altitude 59 m qui est la valeur la plus basse du MNT au niveau d'oued Hma, et la côte 80 m qui est la côte la plus basse qui reçoit directement les eaux de ruissellement des terrils de déchets (Figure V.11).

# Carte des chemins et des séparations entre les parcelles de terrains

Elle a été digitalisée à partir de la photo aérienne de 1998 (Figure V.12)

#### Carte de l'aléa transfert hydrique particulaire

La carte de l'aléa lié au transfert hydrique particulaire obtenue par la combinaison des différentes données permet de mettre en évidence un transport par voie hydrique particulaire à une faible distance et une zone d'accumulation de la contamination délimitée d'une part par la topographie et d'autre part par les aménagements anthropiques (Figure V.13). Cependant, une zone un peu plus large a pu recevoir de la contamination avant la construction des murs autour des terrains agricoles.

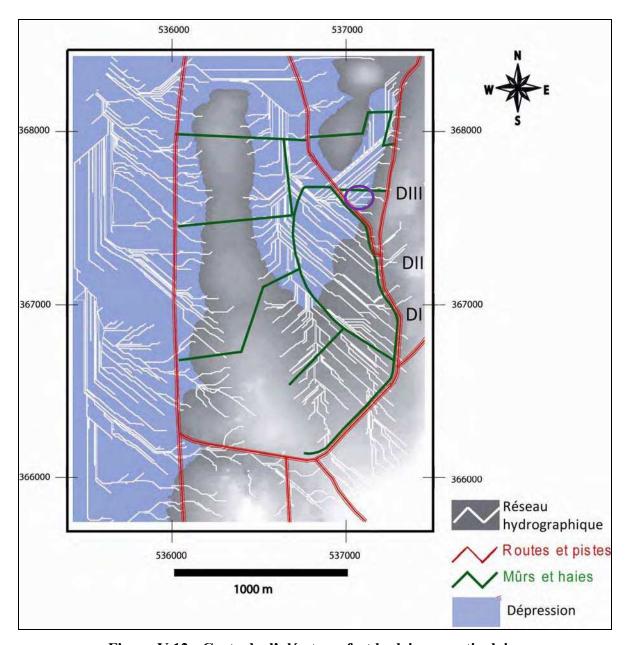


Figure V.12 : Carte de l'aléa transfert hydrique particulaire

Zone la zone encerclée en violet est celle qui accumule préférentiellement les particules de déchets. Elle reçoit les déchets du terril DIII pas deux ravins (Figure V.6 et V.8) et elle est fermée à son Est par la topographie, par une haie au Nord et par un monticule qui borde la route à son SE. Elle est traversée longitudinalement par la partie du transect portant les échantillons S1 jusqu'à S7 (Figure V.1)

### III.3. Concentrations des métaux dans les sols et les sédiments

La zone basse d'accumulation déduite du modèle est confirmée par les analyses des échantillons prélevés dans la parcelle agricole.

Les concentrations varient entre 1,12 et 4,44% de Zn, 0,45 et 1,78% de Pb et 47 et 200 ppm de Cd (Tableau V.1 et Figure V.14). Les concentrations sont maximales au point S6 situé au point le plus bas à une altitude de 79,4 m de la dépression.

Ces concentration dépassent les normes de concentrations dans les sols jusqu'à 148 fois pour Zn, 178 fois pour Pb et 100 fois pour Cd. Les concentrations minimales sont notés au point S1 situé à l'extrémité nord du transect à une altitude de 80m.

Tableau V.1 : Concentrations des métaux dans les échantillons de sols

Sols	Zn (%)	Pb (%)	Cd (ppm)
S1	1,120	0,450	47
S2	1,580	0,670	69
\$3	1,690	0,660	72
S4	1,370	0,550	60
<b>S</b> 5	3,590	1,380	169
S6	4,440	1,780	200
S7	2,350	0,910	100
S8	1,520	0,574	61,5
S9	0,669	0,249	27,1
S10	0,695	0,265	27,9
Ch	0,280	0,120	12
Normes dans les sols (Baize, 1997)	0,030	0,010	2

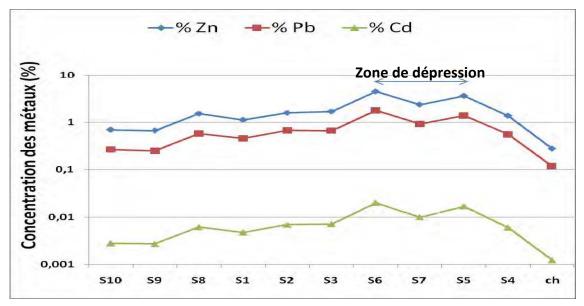


Figure V.13 : Concentrations des métaux dans échantillons de sols S1 à S10 transect en face du terril DIII et Ch prélevé sur un chemin passant devant DI et DII.

Tableau V.2 : Concentrations des métaux dans les échantillons de sédiments

Sédiments	Pb ppm	Zn ppm	Cd ppm
Sd1	62,3	221	0,92
Sd2	8,4	54	0,12
Seuils USEPA	127	520	3

Le prélèvement à l'aval de l'oued montre des concentrations plus élevées que celui à l'amont mais les concentrations sont faibles et n'atteignent pas les seuils (Tableau V.2). Ces résultats montrent que la présence de déchets miniers dans le bassin versant a très peu d'impact sur les sédiments de l'Oued Hma. Ces valeurs sont largement inférieurs aux seuil de l'USEPA pour lesquels un impact environnemental est observé.

#### **IV. Conclusion**

La topographie de la zone qui jouxte les déchets de laverie de Jebel Ressas limite le transport hydrique particulaire des métaux. De plus l'occupation des sols pour l'exploitation agricole avec la construction d'un mur autour de certaine parcelles proches des terrils DI et DII limite le transfert en piégeant les déchets érodés dans des surfaces très réduites soit au niveau de la route en contrebas à l'ouest des terrils DI et DII, soit dans une petite dépression façonnée à la fois par la topographie du terrain et par les haies et les monticules faits par l'homme pour délimiter les propriétés de terrain agricole. La carte d'aléa construite à partir du MNT en connectant les zones d'érosion, d'écoulement et de dépôt a permis de délimiter une zone potentielle d'accumulation de la contamination particulaire dans les terrains agricoles à 100 m à l'ouest du terril DIII et d'une superficie réduite d'environ 1,5 ha.

Les analyses de Pb, Zn et Cd dans les sols confirment les résultats du modèle théorique du transfert particulaire que nous avons construit à partir du MNT. Les concentrations sont plus élevées au centre de la dépression (4,440 % Zn, 1,780 % Pb et 200 ppm Cd) par rapport aux bordures (1,120% Zn 0,450 % Pb et 47 ppm Cd).

D'autre part les analyses des sédiments de Oued Hma en amont et en aval des déchets montrent des concentration de Pb, Zn et Cd faibles aussi bien en amont qu'en aval du site de Jebel Ressas. On s'aperçoit toutefois d'une légère augmentation des concentrations en métaux dans le point de prélèvement à l'aval liée la présence des déchets miniers. Ces résultats confirment qu'il n'y a pas de transport hydrique effectif depuis les terrils. Cette légère augmentation pourrait en revanche être liée au transfert éolien.

# **CHAPITRE VI**

# TRANSFERT EOLIEN DE LA CONTAMINATION METALLIQUE

#### Chapitre V: Transfert hydrique particulaire de la contamination métallique

# I. Introduction et problématique

Dans les deux chapitres précédents nous avons démontré que le transfert de la contamination métallique est négligeable par passage en solution des métaux, et très limité dans l'espace par voie hydrique particulaire. Dans ce chapitre nous prospectons la contribution de la voie éolienne dans le transfert de la contamination.

Sous le climat méditerranéen de la zone d'étude, les particules porteuses de métaux sont susceptibles d'être soulevées par le vent, transportées puis déposées plus ou moins loin de la source. Ce processus peut générer une auréole de contamination de l'air des sols, des eaux et des lieux de vie de la population.

Notre objectif est de déterminer l'extension potentielle de l'auréole de contamination ainsi que les concentrations de Pb, Zn et Cd dans l'air ainsi que le taux de poussières contaminées déposées.

Ce chapitre vise aussi à développer une méthode pour l'étude du transfert éolien de particules métallifères depuis des déchets miniers qui reste jusqu'aujourd'hui très peu étudié.

Pour cette partie nous nous basons sur deux approches :

- Une approche indirecte basée sur la modélisation du transfert de la contamination avec un modèle de dispersion et de dépôt (FDM). La modélisation du transfert nécessite, parmi les données d'entrée, le flux d'émission qu'on déterminera également avec un modèle d'émission. Cette approche utilisera les données météorologiques enregistrées in situ durant 1 mois de la saison estivale. Pour simplifier la modélisation une seule source sera considérée, constituée par le terril le plus important du site et situé en bordure du village (DIII).
- Une approche directe basée sur des mesures in situ des concentrations de Pb, Zn et Cd dans l'air et dans les poussières déposées en un point dans le village.

Notre démarche consiste, dans un premier temps à étudier le transfert éolien pendant la saison estivale. Ce choix provient du fait que cette saison est caractérisée par l'absence des précipitations et par des hautes températures, ce qui constitue, en présence de vents forts, des conditions propices pour l'émission de poussières à partir des terrils de déchets.

Cette partie permettra d'obtenir l'extension de la dispersion de la contamination sur le site avec un ordre de grandeur des concentrations des métaux dans l'air ainsi que dans les poussières déposées.

Les sols agricoles et population riveraine seront considérés comme les récepteurs de la contamination de première importance.

Nous nous intéressons aux deux fractions d'aérosols inhalables: PM10 et PM2,5. Ce sont les fractions les plus communément documentées quant à leurs niveaux de concentration dans l'air ambiant qui sont réglementés et pour lesquels les études épidémiologiques ont mis en évidence des effets sur la santé (Afsset, 2004).

#### II. Généralités

# II.1. L'atmosphère terrestre

L'atmosphère est l'enveloppe gazeuse qui entoure la terre. Elle est composée de différentes couches superposées (Figure VI.1). De haut en bas, on distingue notamment :

- la thermosphère
- la mésosphère
- la stratosphère
- la troposphère où on distingue :
  - la couche libre, partie supérieure de la troposphère.
  - la couche limite atmosphérique (CLA), partie proche de la surface terrestre. Le sol y perturbe l'écoulement de l'air et donne naissance à une forte agitation appelée turbulence.

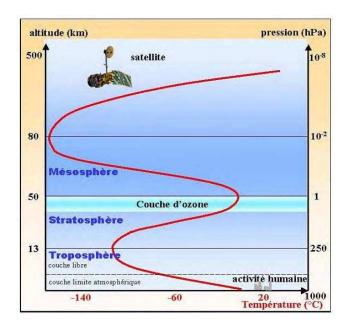


Figure VI.1 : Les différentes couches de l'atmosphère terrestre

#### II.2. Le vent

# II. 2.1. Origine du vent

Les 9/10<sup>èmes</sup> de la masse de l'air atmosphérique sont situés à une altitude de moins de 16 km, dans les basses couches atmosphériques. Au sein de ces couches, le déplacement des masses d'air, appelé vent, est le résultat de la mise à l'équilibre d'un ensemble de forces qui sont :

- Les forces de pression : ces forces génèrent les déplacements des masses d'air constituant le vent. Elles proviennent des différences locales de pression dues aux différences de température en fonction de la latitude, et des influences continentales et océaniques.
- La force de Coriolis : cette force est liée à la rotation de la Terre sur son axe. Elle n'est significative que pour les déplacements atmosphériques de haute altitude en raison de la faiblesse relative des autres forces en présence.
- Les forces de frottement : ces forces traduisent la friction turbulente de l'air sur le sol. Elles sont déterminées par la topographie et par la rugosité de la surface du sol.

# II.2.2. Le vent dans la Couche Limite Atmosphérique (CLA)

Dans la CLA les forces de frottement s'appliquent est induisent un comportement complexe des masses d'air.

La CLA est la zone d'interactions entre l'atmosphère et la surface terrestre (Stull, 1988 et Garatt, 1992). La hauteur de la CLA varie dans le temps et dans l'espace en moyenne entre 100 et 3000 mètres.

La CLA se divise en deux parties distinctes (Figure VI.2) :

- La couche d'Ekman est la partie supérieure de la CLA. Les masses d'air y subissent à la fois le frottement de l'air sur la surface terrestre, la stratification thermique de l'air et la force de Coriolis. Si l'altitude augmente, les forces de frottements deviennent négligeables devant la force de Coriolis. La direction du vent subit donc une rotation (vers l'est dans l'hémisphère Nord) et s'aligne à son sommet avec le vent géostrophique.
- La couche de surface, de dix à quelques dizaines de mètres d'épaisseur, représente environ 10 % de la CLA. La turbulence y est homogène, et la force de Coriolis négligeable devant les forces de frottement dues au sol. La direction du vent (composante horizontale de la vitesse) ne varie pas avec la hauteur alors que son intensité est proportionnelle au logarithme de l'altitude.

La partie inférieure de la couche de surface est la sous-couche rugueuse est, directement en contact avec la surface terrestre. C'est une zone de mélange des sillages des obstacles

rencontrés par le vent. L'écoulement de l'air est fortement hétérogène et turbulent et les forces de frottement y sont prépondérantes. Son épaisseur (z<sub>0</sub>) définit la rugosité aérodynamique qui est très variable en fonction de la nature du terrain (Marshall, 1971, Arya, 1975), de quelques millimètres en mer à quelques dizaines de mètres en zone urbaine.

La rugosité aérodynamique est définie par comme étant la hauteur au dessus du sol à laquelle il convient d'admettre que le vent s'annule pour tenir compte de la présence des aspérités. Plus généralement, cette rugosité caractérise l'influence globale de la sous-couche rugueuse sur le vent.

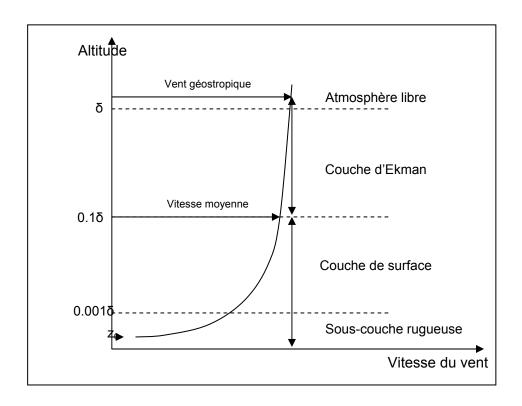


Figure VI.2 : Représentation de la CLA en couches en fonction des forces dominantes

Notre domaine d'application est la couche de surface. Au sein de cette couche, les forces de frottement issues de l'écoulement de l'air sur la surface rugueuse impliquent une forte activité turbulente du fluide atmosphérique.

#### II.2.3. La turbulence

La turbulence peut être d'origine mécanique, générée par le cisaillement et les obstacles (Voir paragraphe II.2.2.), ou d'origine thermique.

La turbulence d'origine thermique est générée par les différences des vitesses de refroidissement des masses d'air ascendantes et le gradient adiabatique qui est le taux de décroissance de la température d'une masse d'air s'élevant adiabatiquement. L'atmosphère est instable si la température de l'air décroît plus vite avec l'altitude que le gradient adiabatique. Dans ce cas, les masses d'air qui s'élèvent se refroidissent moins vite que le milieu environnant et ont tendance à continuer leur ascension, tandis qu'elles sont remplacées, près du sol par des masses d'air froides issues des couches supérieures. Cet état est source de turbulence. Dans le cas contraire l'atmosphère est dite stable et la turbulence est atténuée. Enfin l'atmosphère est dite neutre quand le gradient adiabatique est égal au taux de décroissance de la température de l'air avec l'altitude. Dans ce cas la turbulence mécanique devient prépondérante.

#### II.3. Les aérosols

Retenons que l'atmosphère se décompose en trois groupes : les molécules d'air sec et les gaz permanents, le contenu en eau et les aérosols.

- L'air, principalement concentré dans la troposphère, est composé essentiellement d'azote et d'oxygène. L'air propre et sec est constitué de 78 % d'azote, 21 % d'oxygène, 1 % d'argon, et de 0,33 % de dioxyde de carbone.
- L'eau, à l'état de vapeur qui détermine l'humidité de l'atmosphère
- Les aérosols

#### II.3.1. Définition des aérosols

Les aérosols sont les particules solides ou liquides en suspension dans l'air. On les distingue de la phase condensée de l'eau atmosphérique (cristaux de glace ou de pluie).

Les aérosols dans la troposphère peuvent avoir comme origines, l'érosion éolienne des surfaces, l'émission anthropogénique et les réactions chimiques se déroulant dans l'atmosphère.

L'érosion éolienne constitue le principal facteur de production de l'aérosol minéral. La formation et l'augmentation des concentrations d'aérosol dans l'atmosphère peuvent affecter la qualité de l'air du fait que ces derniers sont capables de réduire la visibilité, de poser un danger pour les animaux et les humains suite à l'inhalation, et d'affecter le climat aux échelles régionale et globale.

# II.3.2. Caractéristiques des aérosols

- Composition chimique : la composition chimique des aérosols varie en fonction de leur origine et peut évoluer à travers les réactions qui peuvent se dérouler dans l'atmosphère. Les

aérosols peuvent être organiques provenant surtout de la combustion fossile et de la biomasse ou minéraux provenant de l'érosion éolienne des surfaces et du dégagement des fumées industrielles (Sportisse, 2008).

- Taille : La taille est une caractéristique très importante des aérosols parce qu'elle détermine leur temps de résidence dans l'atmosphère, leurs effets sur la diffusion de la lumière et leur dépôt dans l'appareil respiratoire après leur inhalation. La taille des aérosols varie de quelques nm à quelques dizaines de μm. On désigne par PMx les aérosols dont le diamètre aérodynamique est inférieur ou égal à x μm. Le diamètre aérodynamique est par définition le diamètre d'une sphère de masse volumique 1 g/cm³ (masse volumique de l'eau) qui aurait une vitesse de chute égale à celle de la particule. Pour les plus petites particules, la déviation est faible par rapport au diamètre réel (Sportisse, 2008).

Les aérosols sont classés selon leur granulométrie (Figure 3) comme suit (Godish, 1997):

- Les particules fines : elles ont un diamètre <1 μm. ces particules regroupent :
  - \* Les particules de taille inférieure à  $0.08\mu m$  formées par nucléation et par condensation de gaz
  - \* les particules de taille comprise entre 0.1 et  $1~\mu m$  formées par accumulation de nucléi.
- Les particules grossières : elles ont un diamètre > 1µm et elles regroupent les particules désertiques, volcaniques et urbaines et elles sont issus de processus mécaniques.

Ce travail s'intéresse à cette dernière classe d'aérosols générée mécaniquement par érosion éolienne du terril de déchets de laverie et plus particulièrement aux aérosols totaux (TPM : Total Particulate Matter), les PM10 et les PM2.5 qui sont les classes d'aérosols faisant l'objet des réglementations et des normes.

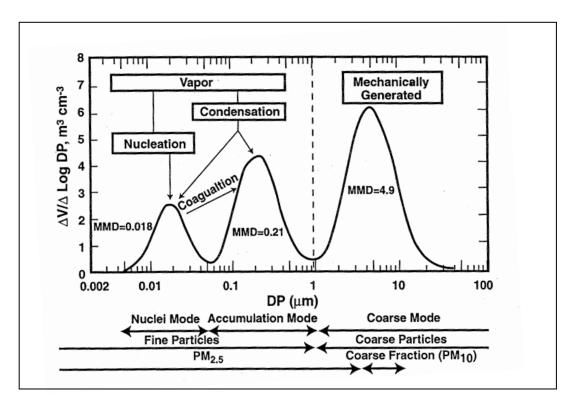


Figure VI.3 : Classes de tailles des aérosols (USEPA, 1995 EPA/600/AP-95/001c, in Godish, 1997)

# II.4. Erosion éolienne de la surface du sol et la production de l'aérosol minéral

L'érosion éolienne est le processus de mouvement des particules de la surface du sol par la force du vent.

# II.4.1. Bases physiques de la mise en mouvement des particules de la surface par le vent

Le mouvement de particules amorcé par le vent est contrôlé par les forces agissant sur eux. Pour une particule au repos, ces forces sont le poids P, les forces de cohésion interparticulaire  $F_c$  et la force de soulèvement du vent  $F_s$  et la force de friction du vent à la surface  $F_f$ . Les premières dépendent de la taille des grains, les dernières dépendent du transfert de l'énergie éolienne à la surface érodable (Figure VI.4) (Kardous 2005).

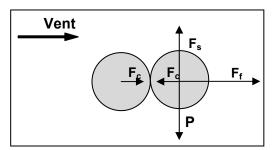


Figure VI.4 : Représentation des forces appliquées à une particule sphérique soumise à l'action du vent (Kardous 2005 d'après Greeley et Iversen 1985).

F<sub>c</sub>: forces de cohésion interparticulaire, F<sub>s</sub> force de soulèvement du vent, F<sub>f</sub> force de friction du vent à la surface

L'ensemble de ces forces décrites ci-dessus détermine la vitesse de friction seuil du vent nécessaire pour amorcer le mouvement des particules.

En effet, l'écoulement du vent à la surface est accompagné d'un frottement de l'air contre la surface, représenté par la contrainte tangentielle T (kg/m².s) (figure 4). Suite à ce frottement, la vitesse du vent se trouve freinée et on définit la vitesse de friction du vent  $\mathbf{U}^*(m/s)$  en fonction de la masse volumique de l'air  $\rho$  (kg/m³):

$$U^* = (T/\rho)^{1/2}$$

La vitesse de friction seuil est  $U_t^*$  est la vitesse de friction minimale à partir de laquelle le mouvement des particules est amorcé et l'érosion éolienne a lieu.

A partir des mesures effectuées aussi bien au laboratoire (O'Loughlin et Annambhotla, 1969; Alfaro, 1994) que sur le terrain (Arya et Shipman, 1981; Pendergrass et Arya, 1984), il a été montré que le profil vertical de la vitesse du vent est logarithmique (Figure VI.5):

$$U(z) = \frac{U^*}{k} \ln \frac{z}{z_0}$$

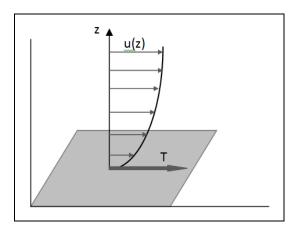


Figure VI 5 : Représentation de l'effet du sol sur l'écoulement de l'air (Alfaro, 1997).

Le profil de la vitesse du vent est donné par la composante horizontale de la vitesse à différentes altitudes z

# II.4.2. Modes de mouvements des particules

Trois modes majeurs de mouvement de grains sont définis (Figure VI.6): le rampement, la saltation et la suspension (Bagnold, 1941).

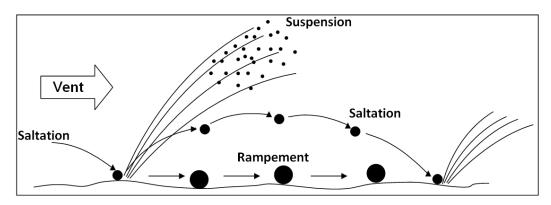


Figure VI.6 : Modes de mouvements des particules suite à l'érosion éolienne (Greeley et Iversen, 1985 modifiée).

# - Le rampement

Les particules trop grandes ( $> 2000~\mu m$ ) ou trop lourdes pour être soulevées roulent et rampent le long de la surface. Le total de la matière en mouvement est localisé près de la surface dans le niveau de saltation. Quand les particules roulent, elles frottent contre la surface et libèrent d'autres particules. Ce mode de transport ne constitue qu'entre 5 et 25% du transport total lors d'un événement éolien.

#### - La saltation

Les particules en saltation sont directement mises en mouvement par les forces aérodynamiques. Leurs tailles sont comprises entre 60 et 2000 µm. Elles sont capables d'être soulevés de la surface à une hauteur de quelques dizaines de centimètres. La hauteur maximale de la couche de saltation est de l'ordre de 1 m (Marticorena et Bergametti, 1995). Ce mode de mouvement constitue le principal processus de l'érosion éolienne. Les particules en saltation suivent des trajectoires distinctes sous l'effet de la force motrice du vent et de la gravité. Elles sont entraînées dans l'atmosphère dans un flux vertical ascendant et leur vitesse horizontale augmente. Ensuite, sous l'effet de la gravité, ils retournent à la surface et percutent la surface avec un angle faible. Cet impact libère de nouvelles particules dans l'air (Chane kon et al., 2007).

# - La suspension

Les particules les plus fines (< 60µm), sont assez petites pour être transportées en suspension vers le haut par des remous turbulents, parfois très loin des sources (Marticorena et Bergametti, 1995). Généralement, le vent à lui seul ne peut pas mettre directement les fines particules en suspension dans l'air étant donnée la forte cohésion qui relie ces particules (Shao et al 1993). Toutefois, les fines particules sont mises en suspension suite à la collision des

particules en saltation avec la surface érodable. Leur énergie cinétique est suffisante pour réaliser ce processus (Chane kon et al., 2007).

Le flux d'érosion se partage entre flux horizontal et flux vertical : *le flux horizontal* représente la masse de particules traversant par unité de temps une surface verticale, perpendiculaire au sens de l'écoulement, de hauteur infinie et de largeur unitaire. Il est essentiellement constitué par les particules mobilisables en **reptation et en saltation**. *Le flux vertical*, représente la masse de particules fines produites par unité de surface horizontale et par unité de temps. Il concerne les particules mises en *suspension* qui arrivent à s'extraire du flux horizontal (Kardous, 2005).

# - Dépôt des particules

Les particules se redéposent à la surface par voie humide quand elles sont entraînées par les précipitations, ou par voie sèche quand elles sont entraînées par la gravité sous l'effet de leur propre poids, ou par la diffusion turbulente (Shao, 2008) qui agite les particules et les rabat à la surface où elles seront retenues par adsorption ou par impaction.

Ainsi, la vitesse du dépôt des particules est influencée par leur taille. En effet, la vitesse de dépôt des particules assez grossières pour vaincre la diffusion turbulente, est égale à leur vitesse de chute par gravité. Par contre, la vitesse de dépôt des particules fines est différente de leur vitesse de dépôt gravitaire (Winges, 1992).

#### II.4.3. Paramètres influençant l'érosion éolienne

On a vu précédemment que la vitesse de friction du vent à la surface est le moteur de l'érosion éolienne. Cette vitesse est fortement influencée par les caractéristiques de la surface notamment la rugosité qui dissipe une partie de l'énergie éolienne, et la cohésion entre les particules. En effet, la cohésion peut augmenter avec l'humidité de la surface, la faible granulométrie et la minéralogie.

# III. Etat de l'art sur les méthodes d'estimation directe et indirecte de l'émission, du transport et du dépôt

#### III.1. Méthodes de l'estimation de l'émission

Le flux d'émission est un paramètre très important pour l'estimation du transport et du dépôt des poussières. Notons que le flux d'émission de particules dans l'atmosphère est représenté par le flux vertical puisque ce sont les particules fines qui seront transportées loin de la

source. Le flux horizontal est formé de particules en saltation qui bombardent la surface pour libérer les particules fines. En effet, le mouvement des particules fines n'est pas amorcé directement par la friction du vent sur la surface érodable, mais exige le processus de bombardement pour dissocier les agrégats et produire les particules de poussières qui seront mises en suspension (Gillette, 1979, Gomes et al., 1990, Shao et al., 1993).

Le flux de poussières émises à partir d'une source pourrait être déterminé soit directement avec des mesures sur le terrain, soit par modélisation avec des codes de calculs.

#### III.1.1. Méthodes de mesures directes de l'émission

#### III.1.1.1 Les souffleries

La compréhension de l'érosion éolienne et des relations entre les flux d'émission et la vitesse de friction du vent ont commencé avec des expériences en soufflerie sous des conditions contrôlées. Ces expériences peuvent se dérouler aussi bien au laboratoire que sur le terrain avec des souffleries portables dans le but de travailler dans des conditions de surface réelles pour comprendre l'influence de ces conditions naturelles sur l'érosion.

L'équipement consiste en un tunnel suffisamment long et large pour permettre la saltation. A l'un des bouts du tunnel, il y a un générateur d'un flux de vent de vitesse contrôlable.

A l'autre bout, un dispositif est mis en place pour collecter les poussières émises à différentes hauteurs (Shao et al., 2008).

# III.1.1.2. Les pièges à sable

Les pièges à sables servent pour quantifier le flux de saltation. Ils peuvent être de type et de dimensions variables. Les uns sont actifs, équipés de pompes qui assurent un flux d'air entrant. Les poussières sont retenues sur des filtres de faible porosité ( $<2\mu m$ ). Les autres sont passifs et collectent les poussières entraînées simplement par le flux de vent entrant. Leurs filtres ont une porosité  $>40\mu m$  (Shao et al., 2008).

# III.1.2. Méthodes de modélisation de l'émission

Les premières investigations sur l'érosion éolienne ont commencé avec le travail de Bagnold (1941) qui a été concentré sur la physique des mouvements des grains de sables avec le vent. Plus tard, plusieurs études ont eu pour objectif, le développement de modèles de quantification de l'émission de poussières suite à l'érosion éolienne. Ces modèles sont largement utilisés pour la modélisation de l'émission dans les régions désertiques et dans les

terrains agricoles situés en climat aride et semi-aride. Le flux d'émission est représenté par le flux vertical de poussières constitué de particules fines capables d'être transportées loin de la source.

Certains modèles sont simples (Gilette et Passi, 1988, Uno et al., 2001, Lin et al., 2007, Shao, 2000, Yin et al 2007) et donnent le flux vertical de poussières (F) en g/m²/s en fonction de la vitesse de friction U\* (m/s) sous la forme :

$$F = f(U^{*n})$$

La relation entre F et U\* est déterminée en se basant sur des expériences en souffleries menées en différents types de terrains (désert, terrains agricoles, sites de constructions, etc...). Ces modèles sont par conséquent pointus sur des cas particuliers et ne peuvent pas êtres généralisés.

D'autres modèles sont avancés et basés sur la physique de l'érosion éolienne et sur les caractéristiques de la surface érodée (Marticorena et Bergametti, 1995, Shao et al., 1996, Alfaro et al., 1997, Shao, 2004)

Ces modèles comprennent deux paramètrisations essentielles : l'une pour le flux horizontal G (flux de saltation) et l'autre pour le flux vertical F (flux d'émission). Il est important d'insister ici sur le fait que les grains de sables mis en saltation par le vent sont à l'origine du flux d'émission. Sous l'effet du simple choc ou par le sandblasting qui désagrège les particules fines de la surface. Ainsi, les deux flux sont reliés avec une fonction de la forme :

$$F = \alpha G$$

# - Le flux d'émission (F)

Sachant que l'émission est constituée notamment de particules fines et en se basant sur des données expérimentales du rapport (F/G), Gillette (1979) et Marticorena et Bergametti (1995) proposent que α soit une fonction de la teneur d'argiles (%) dans le sol.

$$F = G [0.01 \exp(0.308 \eta_c - 13.82)]$$

D'autre part, et dans un contexte où la surface du sol présente des forces de cohésion, Alfaro et al (1997) proposent que α soit une fonction du rapport des énergies de cohésion dans le sol et l'énergie cinétique des grains de sable qui percutent la surface.

$$F = G [(\pi/6) \rho_p \beta p_{idp} d_i^3/e_i]$$

Où:

ρ<sub>p</sub> est la densité des particules

β est une constante de proportionnalité

 $p_{idp}$  est la fraction de l'énergie cinétique libérée par la classe de taille dp pour libérer les aérosols du mode i

d<sub>i</sub> est masse de diamètre médian des aérosols du mode i

ei énergie de cohésion entres les aérosols du mode i

le flux total est obtenu en intégrant tout les flux résultant de toutes les classes de diamètres des particules du sol, ensuite en faisant la somme sur toutes les classes d'aérosols

# - Le flux horizontal (G)

Le flux horizontal représente la masse de particules traversant par unité de temps une surface verticale, perpendiculaire au sens de l'écoulement, de hauteur infinie et de largeur unitaire. Il est essentiellement constitué par les particules mobilisables en reptation et en saltation.

Le modèle de Marticorena et Bergametti (1995) est un parmi les modèles les plus connus et utilisés.

Le flux horizontal (G) de chaque diamètre (dp) de particules est exprimé en fonction de la vitesse de friction, la vitesse de friction seuil du vent et la proportion de la surface érodable donnée par l'expression :

$$G(dp) = EC \frac{\rho_a}{g} U^{*3} \left[ 1 + \frac{U^*_{t}}{U^*} \right] \left[ 1 - \left( \frac{U^*_{t}}{U^*} \right)^2 \right]$$

Le flux horizontal total est calculé en intégrant la distribution précédente sur toute la gamme de diamètres de particules étudiées :

$$G = EC \frac{\rho_a}{g} U^{*3} \int_{dp} \left[ 1 + \frac{U^*_t}{U^*} \right] \left[ 1 - \left( \frac{U^*_t}{U^*} \right)^2 \right] \delta S_{rel}(dp) \delta dp$$

où:

E est la proportion de surface érodable de la surface totale,

 $\mathbf{R} = [U_t^* (dp, z_0, z_{0s})/U^*]$  rapport de la vitesse de friction seuil et de la vitesse de friction du vent.

C = 2,61 est une constante de proportionnalité déterminée à partir d'expériences en soufflerie (White, 1979). Cette valeur a été confirmée par les résultats des expériences de Greeley et al (1994).

 $\rho_a$  est la densité de l'air

g est la force de la pesanteur

d<sub>p</sub> est le diamètre des particules

 $S_{rel}$  Surface relative occupée par la surface basale des grains de diamètres  $D_p$ 

 $\mathbf{U}^*$  est la vitesse de friction du vent. Cette variable dépend de la vitesse du vent mesurée insitu et des caractéristiques de la surface notamment la rugosité aérodynamique  $z_0$  et de la rugosité lisse  $z_{0s}$ .

Ainsi les principaux paramètres d'entrée au modèle physique de l'émission

- La granulométrie de la source d'émission
- Les données météorologiques du site
- La rugosité (z<sub>0</sub>) de la surface de la source

U\* dépend aussi d'autres caractéristiques de la surface du sol : texture, humidité, présence de croûtes et d'éléments non érodable (végétation, cailloux...). Ces facteurs sont hétérogènes dans l'espace et peuvent varier lentement au cours du temps. Certains paramètres peuvent varier au cours du processus de l'érosion comme la granulométrie à la surface qui peut devenir de plus en plus grande quand les particules fînes sont transportées par le vent. Ainsi, la rugosité aérodynamique augmente quand les agrégats non érodables émergent à la surface du sol.

Les effets de la surface sont tenus en compte pour le calcul de la vitesse de friction seuil avec l'approche suivante :

$$U_{t}^{*}(dp; z_{0}, w, s, c, ...) = U_{t}^{*}(dp) f(z_{0}) f(w) f(s) f(c)...$$

 $U_t^*$  (dp) est la vitesse de friction seuil pour des particules de sable de taille dp dans un sol idéal; sec sans éléments non érodables et non encroûté. Dans ce cas  $U_t^*$  est fonction uniquement de la taille des grains. Les multiplicateurs  $f(z_0)$ , f(w), f(s) et f(c) sont des fonctions de correction liés respectivement à la densité  $\lambda$  des éléments non érodables, à l'humidité (w), à la concentration des sels (s) et la présence de croûte (c) à la surface.

Toutes ces fonctions de correction doivent avoir des valeurs  $\geq 1$ , par conséquent,  $U_t^*(dp)$  est la valeur minimale de  $U_t^*(dp; z_0, w, s, c, ...)$ .

Je rappelle que ces modèles physiques ont été conçus et validés pour l'érosion éolienne dans les déserts et les sols agricoles sous un climat aride à semi-aride. Dans la littérature, le travail de Chane Kon et al (2007) est le seul travail qui a été mené sur la quantification de l'émission de poussières à partir de terrils de déchets miniers. Ce travail consiste au développement d'un modèle basé sur le schéma de saltation de Marticoréna et Bergametti (1995) et sur le schéma du flux vertical de Lu et Shao (1999). Le modèle permet l'estimation d'un flux d'émission horaire compte tenu de la turbulence du vent avec une fonction de densité de probabilité qui décrit les fluctuations de la vitesse du vent. Ce travail a été validé avec des résultats d'expériences en soufflerie et sur le terrain. Il montre ainsi que les modèles développés pour les déserts et les terrains agricoles sont valables aussi pour les déchets industriels minéraux dont les particules peuvent avoir des caractéristiques (sphéricité et densité) différentes de celles des particules désertiques (quartz).

La majorité des travaux portants sur l'érosion éolienne des terrils de stockage de matériau granulaires et des déchets miniers s'intéresse à l'influence de la forme du terril sur l'écoulement de l'air et sur les quantités de poussières émises (Torano et al., 2009 ; Turpin et Harion 2009 ; Badr et Harion, 2005 et 2007). Ceci dans le but de trouver la géométrie optimale permettant de minimiser l'émission de poussières. Ces travaux utilisent généralement les modèles et les facteurs d'émission donnés dans les rapports de l'USEPA tel que USEPA (1995). Dans ces modèles, les paramètres de surface et leurs effets sur la physique de l'érosion ne sont pas exhaustivement pris en compte et subissent plusieurs approximations. Aussi, les taux d'émission fournis sont des moyennes journalières ou annuelles et ne traduisent pas convenablement l'effet intermittent et bref de l'érosion éolienne.

Par rapport à cet état de l'art, nous sommes situé dans le cas d'une source d'émission de géométrie irrégulière et avec une surface qui n'est pas parfaitement plate ni homogène. Ainsi le mieux serait d'adopter un modèle physique en y intégrant toutes les caractéristiques de surface qu'on peut acquérir dans la limite du temps accordé pour ce travail de thèse.

# III.2. Méthodes d'estimation du transport et du dépôt

Une fois émises, les poussières peuvent être transportées par le vent à des distances variables plus au moins loin de la source avant d'être déposées.

La compréhension de ces processus est d'une grande importance pour des applications dans différents domaines. En particulier, la concentration des particules fines est un parmi les indicateurs de la qualité de l'air qui permettent de prospecter le risque pour la santé humaine.

# III.2.1. Méthodes de mesure directes du transport et du dépôt

# III.2.1.1. Mesure des concentrations de poussières dans l'air

Les collecteurs d'aérosols sont largement utilisés pour mesurer les concentrations de particules en suspension dans l'air. Ces instruments sont équipés de pompes pour aspirer l'air, de débitmètres, de compteur pour afficher le nombre de m³ d'air filtré, de têtes de coupure permettant la séparation granulométrique des aérosols.

L'air entre par la tête de coupure dont la forme génère un mouvement tourbillonnaire à l'intérieur. Les forces centrifuges projettent les particules fines, de taille inférieure au seuil de coupure, contre la paroi de la tête de coupure alors que les grosses particules restent au centre de la tête de coupure et se déposent sur un support couvert de graisse. Les particules fines sont acheminées dans une conduite vers le filtre en téflon ou elles sont piégées.

A la fin de la période de prélèvement, le filtre est enlevé du collecteur, et est pesé pour déterminer la masse d'aérosol. Connaissant le volume d'air filtré, la concentration d'aérosols dans l'air peut être calculée.

# III.2.1.2. Mesure des taux de dépôt des particules

Le dépôt de poussières sur une surface est affecté notamment par les propriétés de la surface, la vitesse du vent et la concentration d'aérosol dans l'air. Dans les expérimentations en souffleries, une méthode utile pour l'étude du processus de dépôt consiste à utiliser des surfaces qui imitent les surfaces naturelles et qui présentent l'avantage d'être facilement installées et utilisées. Différents types de surfaces ont été testé comme, l'eau, le verre, du papier humide, des surfaces collantes, de la graisse, des surfaces en métal, en plastique, en verre ou en marbre (Sow et al., 2006).

Toutefois, pour des études de dépôt à plus long terme sur le terrain, l'utilisation de ces surfaces devient difficile et des collecteurs de poussières déposées sont utilisés. Ces collecteurs sont variables, de simples bassines aux matériels spécifiques. Jusqu'à maintenant il n'existe pas de collecteur standard pour les poussières déposées car leur efficacité reste limitée en fonction de la taille des particules, de la vitesse du vent et de la configuration du collecteur. Deux types de collecteurs sont le plus souvent utilisés : Marble Dust Collector (Goossens, 2006) et Inverted Frisbee Collector (Hall et al., 1994). Goossens (2006) a testé

l'efficacité des ces deux collecteurs en comparant leur données à celles obtenues avec une surface d'eau, considérée comme une référence, et il a conclu qu'ils sous-estiment le dépôt d'au moins 50%.

# III.2.2. Méthodes de prédiction du transport et du dépôt

Les modèles de dispersion les plus utilisés et qui sont bien validés sont liés aux polluants gazeux. Selon la taille des particules, ces modèles peuvent ou ne peuvent pas être adaptés pour la dispersion particulaire (Abdul-Wahab, 2006).

Actuellement, Industrial Source Complex model (ISC), CALPUFF et Fugitive Dust Model (FDM) sont appropriés pour modéliser les émissions de poussières fugitives. De plus, il y a quelques modèles de trajectoire de particule comme Particle Trajectory Model (PTM) qui peut être utilisé pour modéliser la dispersion et le dépôt de particules grossières (≥75 µm) dans l'atmosphère (Vesovic et al., 2001).

Le Fugitif Dust Model (FDM) est recommandé par l'USEPA pour le calcul de la concentration de poussières fugitives dans l'air ainsi que leur taux de dépôt (Vesovic et al., 2001). Ce modèle sera appliqué pour le cas de Jebel Ressas.

FDM est un modèle gaussien de dispersion spécifiquement développé par l'USEPA pour calculer les concentrations des particules en suspension dans l'air. Ce modèle comprend également un sous-programme qui calcule la vitesse et le taux de dépôt des particules.

FDM peut traiter, à la fois, jusqu'à 121 sources ponctuelles, linéaires ou surfaciques et 1200 récepteurs ponctuels.

# III.2.2.1. Base mathématique de FDM

FDM (Winges, 1992) est basé sur les équations d'Ermak (1977) qui décrivent la dispersion et le dépôt des particules émises par une source ponctuelle. Pour les sources linéaires et planes, FDM se base sur les algorithmes du modèle CALINE 3 (California Department of Transportation, 1979) (Chaulya et al., 2003)

# III.2.2.1.1. Calcul de la concentration des aérosols avec FDM

A partir du flux d'émission de la source (g/m²/s), FDM calcule les émissions relatives pour chaque classe granulométrique préalablement définis par l'utilisateur, et donne la concentration de poussière dans l'air (g/m³) en fonction de tous les paramètres d'entrées et en tout point récepteur défini par l'utilisateur.

La fonction de calcul de la concentration C (g/m³) des aérosols dans l'air a été corrigée par Winges (1992) en introduisant une fonction de correction q(x) qui dépend de la distance horizontale de transfert et qui assure le respect de la loi de la conservation de masse:

$$C = \chi q(x)$$

La fonction de correction q(x) est donnée par:

$$\log(q(x)) = b_0 + b_1 \log(x) + b_2 (\log(x))^2 + b_3 (\log(x))^3 + b_4 (\log(x))^4$$

b<sub>0</sub>..b<sub>4</sub> sont des constantes internes du modèle qui dépendent des vitesse de vent, des classes de stabilités, des classe de diamètres des particules et des hauteurs.

 $\chi$  est la concentration (g/m<sup>3</sup>) des aérosols avant la correction :

$$\chi = \frac{Q}{2\pi \sigma_y \sigma_z u} e^{\frac{y^2}{2\sigma_y^2}} e^{\left[\frac{v_g(z-h)}{2K} \frac{v_g^2 \sigma_z^2}{8K^2}\right]} \left[e^{\frac{-(z-h)^2}{2\sigma_z^2}} + e^{\frac{-(z+h)^2}{2\sigma_z^2}} - \sqrt{2\pi} \frac{v_l \sigma_z}{K} e^{\left[\frac{v_l(z+h)}{K} + \frac{v_l^2 \sigma_z^2}{2K^2}\right]} erfc\left[\frac{v_l \sigma_z}{\sqrt{2}K} + \frac{z+h}{\sqrt{2}\sigma_z}\right]\right]$$

où:

Q: taux d'émission à partir de la source (g/sec)

u: vitesse du vent (m/sec)

 $\sigma_y, \sigma_z$ : écart types des concentration dans les directions y et z (m)

x,y,z : coordonnées des récepteurs (m)

v<sub>g</sub>: vitesse du dépôt par gravité (m/sec)

h: hauteur de l'axe du panache (m)

K: diffusion turbulente (m<sup>2</sup>/sec)

u<sub>d</sub>: vitesse du dépôt (m/sec).

 $v_1 : u_d - v_g/2$ 

#### III.2.2.1.2. Calcul du taux de dépôt avec FDM

Le taux de dépôt (g/m²/s) pour chaque classe granulométrique est le produit de la concentration d'aérosols C (g/m³) et de la vitesse de dépôt des particules u<sub>d</sub> (m/s).

La modélisation de la vitesse de déposition est basée sur l'équation d'Eramk (1977). Elle est calculée à partir de deux paramètres : la vitesse gravitationnelle et la vitesse de dépôt en m/s.

La vitesse gravitationnelle implique le dépôt de particules par la gravité. Ce mécanisme est significatif seulement pour les particules assez grosses pour vaincre les turbulences.

La vitesse de dépôt représente le déplacement de particules par tous les autres modes comme l'interception, l'impaction, la diffusion et la turbulence qui conduisent à la combinaison de la particule à une autre particule plus grande ou à une molécule de gaz. Ces phénomènes obligent la particule à ne plus suivre le courant du vent et à se redéposer.

Pour les fines particules la vitesse de dépôt diffère significativement de la vitesse gravitationnelle, tandis que pour de grandes particules elles sont quasiment les mêmes (Nifong et Winchester, 1970).

Le taux de dépôt total D  $(g/m^2/s)$  est la somme des taux de dépôt calculés pour toutes les classes granulométriques. D est également corrigé par la fonction q(x):

$$D = u_d q(x)C|_{z=0}$$

La résolution de l'équation de dispersion atmosphérique dans FDM repose sur les conditions initiales suivantes :

- (1) Le matériau est composé de classes granulométriques différentes.
- (2) La diffusion horizontale est moins importante que l'advection par le vent dans cette direction.
- (3) La diffusion est fonction seulement de la distance et indépendante du temps de transport loin de la source.

# III.2.2.2. Données requises par FDM

Les données d'entrés à FDM sont :

- les taux d'émission
- la granulométrie des poussières émises
- les données météorologiques : vitesses du vent, direction, températures, hauteur de la couche limite atmosphérique, la classe de stabilité
- les nombres et les coordonnées des sources et des recteurs
- la densité des particules
- le nombre d'heures de données météorologiques traités
- autres paramètres et options du modèle.

# IV. Modélisation du transfert éolien des PM10 et des PM2,5 depuis les déchets de laverie de Jebel Ressas

# IV.1. Conditions et description de la zone d'étude

La zone d'étude a été choisie en fonction de la localisation de la source et de la géomorphologie pour évaluer la dispersion de la contamination par voie éolienne à une échelle kilométrique. Cette zone s'étend sur une surface de 3,9x5 km² (figure VI.7). Elle est

comprise horizontalement entre les amorces 535 000 et 539 000 du quadrillage kilométrique Lambert Carthage et verticalement entre 366 100 et 371 000.

Cette zone comprend le flanc ouest de Rebel Ressas, les terrils de déchets de laverie, le village de Jebel Ressas, des terrains agricoles, des fermes habitées et le réseau hydrographique jusqu'au Oued Hma.

Pour ce travail de thèse nous considérons uniquement le terril DIII comme source de poussières contaminée pour les raisons suivantes :

- sa proximité du village où la population humaine est la plus dense,
- sa richesse en minéraux porteurs de Pb, Zn et Cd par rapport aux deux autres terrils,
- la simplification de la modélisation en réduisant le nombre de sources et des paramètres qui leurs sont propres.

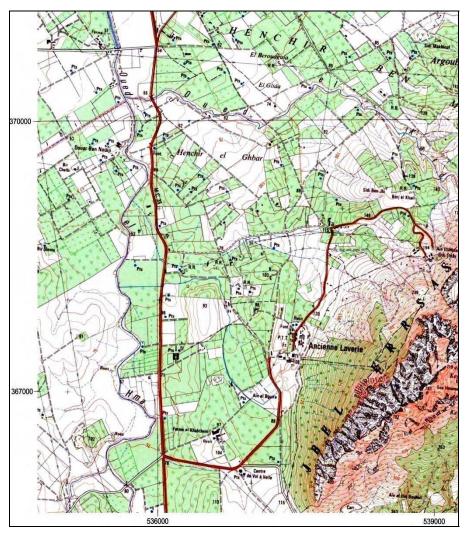


Figure VI.7: Zone concernée par la modélisation du transfert éolien des particules métalliques. Extrait de la carte topographique de Grombalia NO (OTC, 1984) au 1 :25 000. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage.

# IV.2. Modélisation de l'émission des PM10 et des PM2,5

L'objectif de cette partie est de déterminer le flux de PM10 et de PM2,5 émis depuis la surface du terril DIII. Après la présentation de la méthodologie de la modélisation les résultats obtenus à la sortie du modèle seront donnés en kg/m²/s pour chaque valeur de vitesse de vent.

# IV.2.1. Méthodologie de la modélisation

#### IV.2.1.1. Modèle d'émission utilisé et mis en œuvre

Le modèle utilisé est a pris en compte plusieurs paramétrisations développées par différents auteurs afin qu'il soit adapté au mieux à la nature de notre source. Les paramétrisations sont les suivantes :

- La paramétrisation de Marticorena et Bergametti, (1995) pour le calcul du flux de saltation.

Le modèle physique de Marticorena et Bergametti, (1995) décrit l'émission, dans des zones désertiques, comme une fonction de la rugosité aérodynamique de la surface et de la vitesse du vent.

$$G = EC \frac{\rho_a}{g} U^{*3} \int_{dp} \left[ 1 + \frac{U^*_t}{U^*} \right] \left[ 1 - \left( \frac{U^*_t}{U^*} \right)^2 \right] \delta S_{rel}(dp) \delta dp$$

Ce modèle a été validé sur des zones désertiques où la source est formée de grains de quartz, de forme sphérique. Dans ce modèle, l'effet de croûte et de l'humidité de la surface ne sont pas pris en compte, bien qu'ils influencent la cohésion et la vitesse de friction seuil.

- La paramétrisation de Fécan qui consiste à une fonction de correction de la vitesse de friction seuil en fonction de la teneur en eau de la surface de la source d'émission (voir paragraphe III.1.2).

L'eau capillaire entre les grains du sol exerce des forces capillaires qui augmentent la cohésion entre les grains. De ce fait la vitesse de friction seuil du vent augmente quand la teneur en eau dans le sol augmente.

Fécan et al (1999) propose une paramétrisation du rapport des vitesses de friction seuil sur une surface à l'état humide et à l'état sec en fonction de la teneur en eau de la surface.

Quand la teneur en eau (w) du sol est inférieure à la quantité maximale d'eau adsorbée (w'), la teneur en eau n'a pas d'influence significative sur l'érosion.

w' est déterminée par une relation empirique en fonction du pourcentage d'argile  $(\eta_c)$  dans le sol. Les différents coefficients des relations sont déterminés expérimentalement.

$$\begin{cases} f(w) = \frac{U *_{tw}}{U *_{td}} = 1 & ; \text{ si } w < w' \\ f(w) = [1 + 1.21(w - w')^{0.68}]^{0.5} & ; \text{ si } w > w' \end{cases}$$

avec: 
$$w' = 0.0014\eta_c^2 + 0.17 \eta_c$$

- La paramétrisation d'Alfaro, qui lie le diamètre médian des classes d'aérosols émis à l'énergie cinétique des grains de sable mis en saltation.

Alfaro (1997), avec une approche expérimentale, a calculé l'énergie cinétique des grains de sable dans un flux de saltation qui va agir par sandblasting sur une surface sèche d'agrégats de kaolin. Il en déduit que :

- \* la variation de l'énergie de cohésion entre les agrégats de kaolin est une fonction exponentielle décroissante de leurs diamètres. L'énergie de cohésion augmente rapidement pour les particules ayant des diamètres inférieurs à 2μm (Tableau IV.1).
- \* quand la vitesse du vent augmente, les agrégats se désagrègent en particules de tailles de plus en plus fines. La taille des aérosols produits par sandblasting dépend de la vitesse du vent.

Le flux vertical de particules émises (unité) selon Alfaro (voir paragraphe III.1.2.) s'écrit :

$$F = G [(\pi/6) \rho_p \beta p_{idp} d_i^3/e_i]$$

Tableau VI.1 : Énergie de cohésion spécifique à chaque classe d'aérosols (Alfaro et al 1997)

Diamètre médian (μm)	1.5	6.7	14.2
Énergie de cohésion (g.cm².s⁻²)	3 .61	3.52	3.46

- La fonction de l'entrainement aérodynamique donne le flux d'émission des particules meubles à la surface de la source en absence de saltation c'est à dire à faible vitesse de vent.

$$f_a = 3.6 \text{ U}^{*3}$$

 $f_a$  est le taux d'émission lié entraı̂nement aérodynamique et est donné en  $\mu g/m^2/s$ .

U\* est la vitesse de friction seuil.

Le modèle que nous utilisons ne tient pas compte des turbulences locales liées à la topographie du site. Nous pallierons à ce point en calculant l'émission avec des rafales de vent mesurées toutes les minutes.

Le modèle sous la forme finale que nous utilisons a été mis au point en collaboration avec le Laboratoire d'Aérologie de Toulouse.

Le code exécutable est écrit en langage fortran. Deux fichiers d'entrée au format texte (.dat) sont requis, l'un comportant les fractions de matières en fonction des classes granulométriques et l'autre comporte les données météorologiques. Deux fichiers texte (.dat) sont obtenus à la sortie de ce modèle. L'un donne le flux total d'émission pour chaque vitesse de vent, et l'autre donne les flux d'émission de chaque classe de diamètre de poussière pour chaque vitesse de vent.

Le travail de modélisation a été effectué au laboratoire Géosciences Environnement Toulouse. Le code a été exécuté avec un compilateur « ifort » dans un environnement UNIX via une connexion de l'ordinateur à un cluster.

# IV.2.1.2. Données d'entrée : méthodologie d'acquisition

# IV.2.1.2.1. Données météorologiques

Le modèle d'émission ne requiert que les vitesses de rafales de vent.

Une station météorologique Oregon Scientific WMR200 a été installée sur la terrasse de la maison la plus proche du terril DIII à une hauteur de 7,5m de la surface du sol (figure VI.8). La station est équipée d'un anémomètre à girouette qui mesure les vitesses et les rafales du vent en m/s. Les données météorologiques ont été enregistrées toutes les minutes par une unité centrale durant 30 jours. Au bout de cette période, ces données ont été récupérées de l'unité centrale sur un ordinateur via un câble USB. Préalablement, Weather display, qui est le logiciel délivré avec la station, a été installé sur l'ordinateur pour permettre le transfert des données sous format EXCEL.

Pendant la période de mesure, entre le 13 juillet et le 12 aout 2009, les rafales de vent ont varié entre 0 et 22m/s.



Figure VI.8 : Photo des capteurs de vent et de température de la station météorologique installée sur la terrasse de la maison considérée comme point de mesure et prélèvement

Dans ce qui suit nous présentons les résultats du traitement des données sur la vitesse et la direction du vent sur lesquels nous nous sommes basés pour justifier certains choix par rapport aux mesures de la rugosité qui est un paramètre important pour le calcul de l'émission. Ces mêmes données traitées seront ensuite utilisés dans FDM.

# Direction moyenne horaire du vent

La direction moyenne horaire du vent à Jebel Ressas pendant la période du 13 juillet au 12 août 2009 a été calculée à partir des mesures effectuées in situ. La station météorologique installée à Jebel Ressas enregistre toutes les minutes la direction du vent en degrés par rapport au nord géographique. Ces données sont alors circulaires et elles se distribuent entre 0 et 360°.

Pour calculer la moyenne horaire de la direction moyenne du vent la méthode arithmétique ne peut pas être utilisée. La direction moyenne du vent doit alors être calculée dans un repère de coordonnées polaire (Figure VI.9).

Par exemple pour deux directions l'une de 20° et l'autre de 270° bien que la moyenne arithmétique soit de 145°, la vrai direction moyenne est de 325°.

Nous donnons ici l'exemple de l'angle moyen  $\Theta$  des deux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$ 

Dans le cercle C (0;1) les coordonnées des vecteur qui décrivent les angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont respectivement :

```
\begin{array}{l} x1 = \!\sin\theta_1 \\ y1 = \!\cos\theta_1 \\ \text{et} \\ x2 = \!\sin\theta_2 \\ y2 = \!\cos\theta_2 \\ \text{Les coordonnées du vecteur qui décrit l'angle moyen } \Theta \text{ sont :} \\ x3 = \!\sin\theta_1 + \!\sin\theta_2 \\ y3 = \!\cos\theta_1 + \!\cos\theta_2 \\ \text{ainsi } \Theta = \!\!\! \arctan(x_3/y_3) \end{array}
```

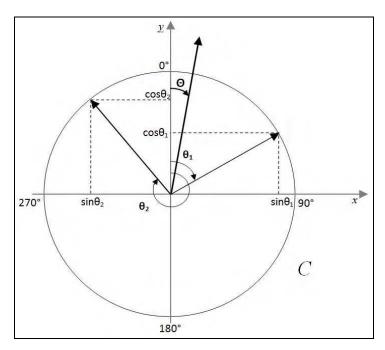


Figure VI.9 : Schéma explicatif du calcul d'une direction moyenne de vent dans un repère circulaire

Enfin, Soit  $\alpha_i$  est l'angle en degré de la direction du vent à la minute i,  $\rho$  est la direction moyenne horaire en degré. Les directions moyennes horaires sont calculées successivement pour chaque 60 minutes comme suit :

```
\theta = \arctan(A,B)

si \theta \ge 0 alors \rho^{\circ} = \theta

si \theta \le 0 alors \rho^{\circ} = \theta + 360
```

Sur la période de mesure (13 juillet au 12 août 2009), la rose des vents moyens horaire est donnée dans la figure ci-dessous. Les 8 principales directions de vents sont données par les intervalles de directions suivants :

Direction N : [337,5 ; 22,5[

Direction NE : [22,5 ; 67,5[

Direction E : [67,5 ; 112,5[

Direction SE: [112,5; 157,5]

Direction S: [157,5; 202,5]

Direction SW: [202,5; 247,5]

Direction W: [247,5; 292,5]

Direction NW: [292,5; 337,5[

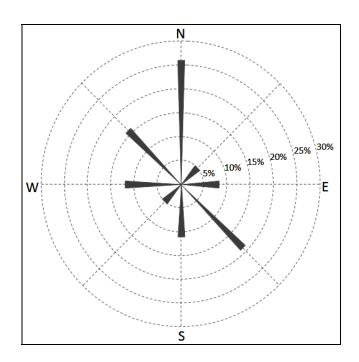


Figure VI.10 : Rose des directions moyennes horaires du vent du 13 juillet au12 août 2009 à Jebel Ressas

# Vitesse moyenne du vent

Les vitesses moyennes horaires sont calculées arithmétiquement à partir des vitesses mesurées chaque minute.

Les vitesses moyennes horaires varient entre 0 et 12 m/s pendant la période entre le 13 juillet et le 12 août 2009.

Le tableau VI.2 donne la fréquence des vents pour chaque intervalle de vitesse et pour chaque direction et on en constate que les vents les plus violents viennent du secteur S et SE bien que ces directions ne soient pas les dominantes pendant la période de mesure.

Tableau VI.2 : Fréquence (%) des vents selon leur vitesse moyenne horaire pour chaque direction

Intervalle de vitesse moyenne horaire V du vent		NE	E	SE	S	SW	W	NW
V≤ 1m/s	20	20	16	21	18	19	6	21
1 < V ≤ 5m/s	63	57	52	56	56	47	47	56
5 < V ≤ 10m/s	16	23	32	21	22	34	47	23
V> 10 m/s	0	0	0	2	4	0	1	0

IV.2.1.2.2. Granulométrie moyenne de l'horizon superficiel du terril DIII (Voir chapitre III paragraphe II.1.)

#### IV.2.1.2.3. Rugosité

# Rugosité aérodynamique

La rugosité aérodynamique est un paramètre important dans le modèle d'émission qui doit être soigneusement déterminé.

En l'absence de valeurs de rugosités connues pour les surfaces de terrils de déchets miniers et devant la difficulté d'appliquer les méthodes indirectes utilisées pour des échelles régionales, nous avons déterminé la rugosité avec des mesures directes sur le terrain.

La surface du terril DIII de déchets est composée d'éléments érodables (particules meubles de déchets) et d'éléments non érodables qu'on appelle aussi éléments rugueux.

On distingue deux types éléments rugueux:

- Les plantes et les cailloux qui sont uniformément exposés au vent. La rugosité engendrée par ces éléments est uniforme pour toutes les directions du vent. Elle est alors qualifié d'isotrope.
- les ridules qui sont des éléments allongés selon une direction, présentent différents fronts d'exposition au vent selon leurs orientations (Figure VI.11). Ainsi, le nombre de fronts (n) s'opposant au vent ainsi que leurs hauteurs (h) et leurs largeurs (b) sont variables suivant la direction du vent. Par conséquent l'érosion éolienne ne sera pas homogène pour toutes les directions du vent et les quantités de poussières émises seront déterminées par l'orientation de l'élément par rapport à la direction du vent. Cet effet de la rugosité anisotrope a été étudié pour évaluer les conséquences de la présence de sillons de labour dans les terres agricoles sur l'érosion éolienne (Saleh, 1997; Armbrust et al., 1964).

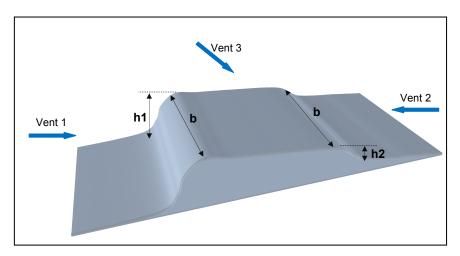


Figure VI.11 : Schéma représentant l'anisotropie de la rugosité due à la présence d'une ridule

Dans le cas du terril DIII, composant la source d'émission étudiée, les éléments rugueux l sont répartis à sa surface d'une façon hétérogène. Nous avons distingué 4 parcelles différentes par leurs aspects de surface (tableau VI.3 et figures VI.12, VI.13, VI.14, VI.15).

Tableau VI.3 : Classification des parcelles du terril en fonction de leurs aspects à la surface

Parcelle	Aspect de la surface	Aire (m²)
Parcelle 1	Surface lisse avec des écailles	12 000
	de desséchement	
	millimétriques	
Parcelle 2	Surface avec ridules fines	10 250
	millimétriques	
Parcelle 3	Surface avec ridules	6000
	profondes pluri	
	centimétriques et cailloux	
Parcelle 4	Surface avec petites ridules	7000



Figure VI.12 : Photo de la surface de la parcelle 1 au toit du terril DIII.

Elle représente la partie nord du terril. La surface est lisse, les cailloux sont quasi-absents. Cette partie légèrement creuse accumule les eaux de pluie longtemps pendant la saison fraiche. En été la surface devient sèche et très souvent fréquentée pas les habitants du village qui la fragilise par le piétinement, facilitant ainsi l'émission de la poussière.

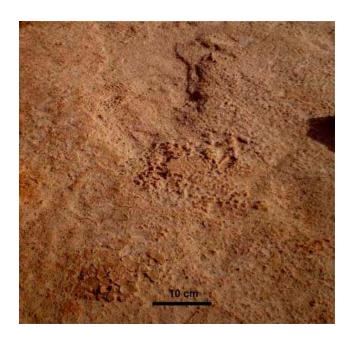


Figure VI.13: Photo de la surface de la parcelle 2 au toit du terril DIII

La surface de cette parcelle présente des ridules fines de profondeur millimétrique.

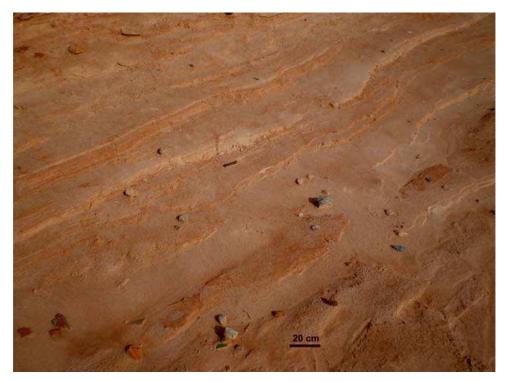


Figure VI.14: Photo de la surface de la parcelle 3 au toit du terril DIII.

Elle présente des ridules de profondeurs centimétriques orientées N-S ainsi que des cailloux de dimensions centimétriques

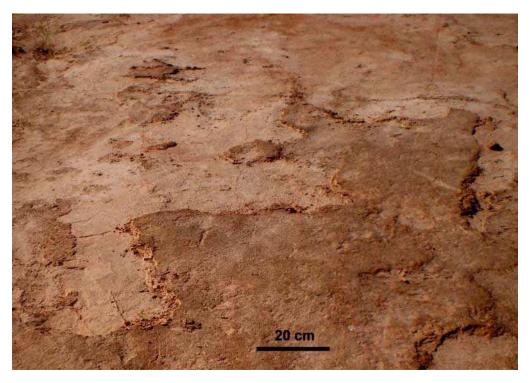


Figure VI.15: Photo de la surface de la parcelle 4 au toit du terril DIII.

La surface est marquée par des ridules d'orientations aléatoires et de profondeurs centimétriques. Les cailloux sont très rares et les plantes sont inexistantes.

Nous avons mesuré la rugosité:

- dans la direction N qui est la direction dominante du vent mesurée sur le terrain pendant la période entre le 13 juillet et le 12 aout 2009
- dans la direction SE qui est la deuxième direction dominante et pour laquelle les vents forts sont fréquents pendant la période entre le 13 juillet et le 12 aout 2009.
- dans la direction NW qui est la direction dominante annuelle connue pour la région.

Pour simplifier les mesures sur le terrain, nous effectuons les mesures de rugosité sur 1 à 4 échantillons de surfaces représentatifs de chaque parcelle faisant entre 0,25 et 4 m² suivant les dimensions des éléments rugueux.

A l'intérieur de chaque échantillon on procède comme suit:

- 1- On compte le nombre d'éléments isotropes (plantes, cailloux), leurs largeurs et leur hauteurs.
- 2- Pour chaque direction du vent, on note le nombre n de ridules qui présentent des fronts exposés au vent, la largeur b et la hauteur h de chaque front.

La rugosité aérodynamique z<sub>0</sub> est déterminée par la présence d'éléments rugueux, leurs dimensions et leurs nombres. Elle peut être calculée avec l'une des équations suivantes (Marshall, 1971, Jarvis et al 1976, Garrat, 1977, Raupach et al., 1980, Raupach et al., 1991):

$$z_0 = 0.005h$$
; si  $\lambda < 0.1$ 

$$z_0 = (0.479 \ \lambda - 0.001) h$$
; si  $\lambda > 0.1$ 

avec 
$$\lambda = \frac{nbh}{s}$$
;

où n, b et h sont respectivement le nombre, largeur et la hauteur des éléments rugueux, s est la surface de mesure. En d'autre terme,  $\lambda$  représente le nombre (n) de fronts (bh) exposé au vent sur une surface (s).

Nous présentons dans le tableau VI.4 un exemple de calcul de la rugosité pour la direction SE du vent

Tableau VI.4: Mesure de la rugosité aérodynamique pour la direction SE du vent

Parcelle	Dimension de la surface (cm)	Nombre d'éléments rugueux	Nature des éléments rugueux	Largeur b des éléments rugueux (cm)	Hauteur h des éléments rugueux (cm)	Largeur b moyenne (cm)	Hauteur h moyenne (cm)	λ	z <sub>0</sub> dans l'échantillon	z <sub>0</sub> moyenne dans la parcelle (μm)				
Parcelle 1 <sup>(*)</sup>	12000.10 <sup>4</sup> cm <sup>2</sup>	0	-	0	0	0	0	0	-	_ (*)				
Parcelle 2	50x50	1	1 ridule	30	1	30	1	0,012	47	47				
	200x200	9	1 ridule	40	2		6		592					
			7 cailloux	3	1,5	14		0,021						
			1 plante	0,3	16									
Parcelle 3		100x100 9	1 ridule	64	0,5	20	4	0,079	1627	1110				
	100x100		3 cailloux	5	5									
	10011100							4 cailloux	2	2			0,077	1027
			1 caillou	10	10									
				14	1									
Parcelle 4	200x200	4	4 ridules	30	1,5	36	2 0,0	0,007	56	205				
	2007200		Filduics	40	3			0,007	30					
				60	3									
	200x200	1	1 ridule	96	6	96	6	0,014	353					

<sup>(\*):</sup> Dans la parcelle 1, la surface est plate et ne présente pas d'élément rugueux, sa rugosité aérodynamique ne pouvant pas être nulle, est considérée égale à sa rugosité lisse z<sub>0s</sub> qui est liée simplement à sa granulométrie.

La rugosité lisse d'une surface correspond aux fines aspérités qui existent entre deux éléments rugueux successifs. Elle représente la rugosité induite par la granulométrie d'une surface érodable (Marticorena et Bergametti, 1997), et elle est représentée par les grains pouvant être soulevés par le vent.

Selon (Bagnold, 1941 et Greeley et Iversen, 1985) la rugosité lisse est le  $1/30^{\rm ème}$  du diamètre des particules grossières  $d_{max}$  érodables par le vent :

$$z_{0s}=d_{max}/30$$

 $d_{max}$  étant égal à 2mm dans notre cas, ainsi  $z_{0s} = 67 \mu m$ .

De la même façon, la rugosité aérodynamique a été calculé pour les autres directions de vent.

Le tableau suivant donne les valeurs de rugosité aérodynamique dans chaque parcelle du terril DIII pour les 3 directions de vent considérées.

Tableau VI.5 : Valeurs de rugosité dans les trois directions de mesure pour chaque parcelle

Direction	rugosité	rugosité	rugosité	rugosité
du vent	aérodynamique	aérodynamique	aérodynamique dans la	aérodynamique
	dans la p <b>arcelle 1</b>	dans la p <b>arcelle 2</b>	parcelle 3	dans la p <b>arcelle 4</b>
N	67	24	1131	103
SE	67	47	1110	205
NW	67	19	1710	119

Ensuite, je propose de calculer une rugosité globale qui tient en compte les différents types de surfaces et qui sera la somme des différentes rugosités observées sur le terril et pondérées par les fractions de surface qu'elles occupent.

$$z_{0g} = \sum_{i=1}^{N} f_i . z_{0i}$$

Le tableau suivant donne les valeurs de rugosité aérodynamique globale arrondis à la dizaine pour les directions de vents considérées.

Tableau VI.6 : Valeurs de rugosité dans les trois directions de mesure

Direction du vent	Rugosité aérodynamique globale (µm)
N	240
SE	260
NW	340

Pour la période du 13 juillet au 12 aout 2009, l'estimation du flux d'émission a été effectuée avec la rugosité de 260 µm, correspondant au vent dominant mesuré pendant cette période. Toutefois des calculs ont ensuite été réalisés pour les deux autres valeurs de rugosité afin évaluer la sensibilité du modèle à la rugosité.

#### IV.2.2. Résultats de la modélisation du flux d'émission des PM10 et des PM2.5

Pendant la période comprise entre le 13 juillet et le 12 août 2009, le flux d'émission a été calculé toutes les minutes, soit 43200 valeurs obtenues. Il varie entre 0 et 0,169 g/m²/s pour les PM2,5 et entre 0 et 0,249 g/m²/s pour les PM10 pour une rugosité de 260  $\mu$ m, correspondant au vent dominant mesuré pendant de cette période.

Etant donné que les vitesses des rafales de vents sont comprises entre 0 et 22 m/s, nous présentons ici le flux calculé avec chaque vitesse (g/m²/s) (tableau VI.7).

Pour les vitesses de vents comprises entre 1 et 9 m/s, l'émission résulte uniquement de l'entraînement aérodynamique avec des taux qui ne dépassent pas 1,55.10<sup>-7</sup>g/m²/s indépendamment de la granulométrie.

A partir d'une vitesse de 10 m/s, les particules sableuses sont mobilisées par saltation et les flux d'émission augmentent de 5 ordres de grandeurs suite au sandblasting.

Tableau VI.7 : Flux d'émission calculé pour une rugosité de 260 µm

vitesse des	Flux	Flux
rafales de vent	diémission	demission
(m/s)	PM2,5 (g/m²/s)	PM10 (g/m²/s)
0	0,00E+00	0,00E+00
1	2,13E-10	2,13E-10
2	1,71E-09	1,71E-09
3	5,76E-09	5,76E-09
4	1,36E-08	1,36E-08
5	2,66E-08	2,66E-08
6	4,61E-08	4,61E-08
7	7,31E-08	7,31E-08
8	1,09E-07	1,09E-07
9	1,55E-07	1,55E-07
10	4,25E-06	2,45E-05
11	2,73E-04	8,71E-04
12	1,20E-03	5,68E-03
13	2,91E-03	5,96E-03
14	6,90E-03	4,15E-02
15	1,21E-02	2,95E-02
16	2,03E-02	3,18E-02
17	3,09E-02	3,80E-02
18	4,45E-02	4,69E-02
19	6,42E-02	6,03E-02
20	9,31E-02	2,49E-01
21	1,27E-01	1,49E-01
22	1,69E-01	1,62E-01

rappelons que dans le modèle utilisé, la cohésion entre les particules est paramétrée en suivant Alfaro et al (1997) et que nous avons utilisé les valeurs des énergies de cohésion et des classes de diamètre de particules émises qu'il a déjà testé et validé sur différents types de sols (voir tableau VI.1 paragraphe IV.2.1.1.).

Le flux de PM2,5 émis augmente exponentiellement avec la vitesse du vent . Pour cette classe de taille des particules, 1 seule mode d'aérosols parmi les trois modes d'Alfaro est généré dont le diamètre médian est 1,5µm. C'est-à-dire que la force cinétique des grains de

sables mis en saltation a dû vaincre l'énergie de cohésion (3,61 g.cm².s⁻²) propre à cette classe de diamètre de particules pour les émettre.

Le flux d'émission de PM10 implique la génération de deux classe de diamètre dont les diamètres médians sont 1,5 et 6,7 et auxquels correspond respectivement les énergies de cohésion 3,61 et 3,52 g.cm<sup>2</sup>.s<sup>-2</sup>.

Sur la figure VI.16, le flux des PM10 montrent également une augmentation exponentielle de avec la vitesse du vent. Nous remarquons toutefois la présence de deux pics d'émission au niveau des vitesses 14 et 20m/s. Ces pics pourraient être expliqués par le fait que ces deux vitesses ont procuré aux grains de sables des énergies cinétiques optimales pour vaincre les énergies de cohésion des grains d'une classe granulométrique particulière et qu'au delà des ces vitesses, l'énergie cinétique continue à augmenter et favorise davantage la désagrégation des grains en donnant des aérosols plus fins donc moins lourds ce qui est a l'origine de la diminution du flux juste après le pic.

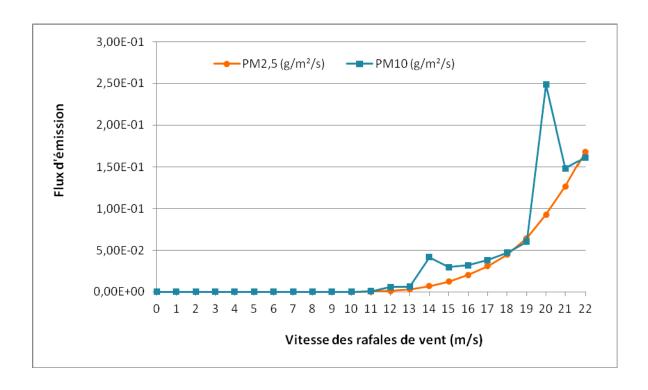


Figure VI.16 : Flux d'émission calculé pour une rugosité de 260 µm et pour l'intervalle de vitesse de vent mesuré à Jebel Ressas entre le 13 juillet et le 12 août 2009

Le flux d'émission moyen journalier issu de l'ensemble du terril (35250 m²) est calculé et représenté sur la figure VI.17. Pendant la période de mesure, l'ensemble de la surface du terril

DIII génère un flux moyen journalier variable entre 0 et 88,2 g/s de PM10 et entre 0 et 46,3 g/s de PM2,5.

Nous remarquons que les flux les plus élevés sont obtenues pendant les jours 6, 11, 12 28 et 30 où les vitesses de vents supérieures à 10m/s ont été les plus fréquentes de toute la période de mesure.

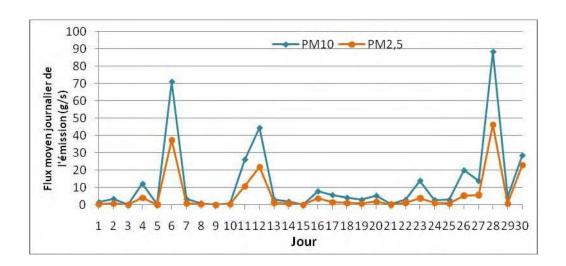


Figure VI.17 : Flux d'émission moyen journalier issue de l'ensemble du terril DIII pendant la période de mesure

En ce qui concerne la rugosité son effet été étudié sur le flux d'émission à partir du calcul du flux d'émission avec trois valeurs de la rugosité mesurées pour les trois principales directions de vent identifiées pendant la période étudiée (13 juillet au 12 août 2009).

Le tableau 5 donne les valeurs du flux d'émission pour l'intervalle de vitesse [1 ; 22m/s] et pour les 3 valeurs de rugosité de la surface du terril DIII que nous avons déjà calculé pour les directions de vents NW, N et SE.

Pour les trois valeurs de rugosité le flux d'émission augmente lentement avec les faibles vitesses de vent (de 1 à 9 m/s pour des valeurs de rugosité de 240 et 260  $\mu$ m et de 1 à 10 m/s pour des valeurs de rugosité de 340  $\mu$ m), puis il augmente plus rapidement suite au déclenchement de la saltation.

Le tableau VI.8 montre que la saltation commence à une vitesse de 10 m/s pour  $z_0 = 240$  et  $260\mu m$  et à une vitesse de 11 m/s pour  $z_0 = 340\mu m$ .

Pour les faibles vitesses de vent [1 à 9 m/s] quand  $z_0$  augmente, le flux d'émission augmente. A l'inverse, pour une vitesse de vent élevée [10 à 22 m/s] quand  $z_0$  augmente, le flux d'émission diminue. En effet plus la rugosité  $z_0$  d'une surface est élevée, plus la vitesse de friction seuil U\* augmente. Sachant que la saltation n'est déclenchée que pour des vitesses de vent supérieures à U\*, et pour une même vitesse de vent, le flux d'émission d'une surface ayant une rugosité  $z_{01}$  est supérieur au flux d'émission issue d'une surface de rugosité  $z_{02}>z_{01}$ . Pour les faibles vitesses de vent [1 à 9 m/s] quand  $z_0$  augmente, le flux d'émission augmente. A l'inverse, pour une vitesse de vent élevée [10 à 22 m/s] quand  $z_0$  augmente, le flux d'émission diminue. En effet plus la rugosité  $z_0$  d'une surface est élevée, plus la vitesse de vent supérieures à U\*, et pour une même vitesse de vent, le flux d'émission d'une surface ayant une rugosité  $z_{01}$  est supérieur au flux d'émission issue d'une surface de rugosité  $z_{02}>z_{01}$ .

Tableau VI.8 : Flux d'émission des PM10 calculé pour les rugosités 240, 260 et 340 μm

Vitesse des		Flux d	différence1	différence2			
rafales de vent (m/s)	z <sub>0</sub> =240 μm	z <sub>0</sub> =260 μm	Régime	z <sub>0</sub> =340 μm	Régime	(%) *	(%) **
1	2,08E-10	2,13E-10		2,30E-10	و	2	8
2	1,66E-09	1,71E-09		1,84E-09	igu	3	7
3	5,62E-09	5,76E-09	nt ue	6,21E-09	Tam Is	2	8
4	1,33E-08	1,36E-08	Entrainement aérodynamique	1,47E-08	Entrainement aérodynamique	2	8
5	2,60E-08	2,66E-08	iine 'nai	2,87E-08	léro	2	8
6	4,49E-08	4,61E-08	ody	4,97E-08	nt a	3	8
7	7,14E-08	7,31E-08	El	7,89E-08	 eme	2	8
8	1,07E-07	1,09E-07		1,18E-07	ain(	2	8
9	1,52E-07	1,55E-07		1,68E-07	ntr	2	8
10	1,79E-04	2,45E-05		2,30E-07		-86	-
11	9,96E-04	8,71E-04		4,27E-04		-13	-51
12	6,01E-03	5,68E-03		4,64E-03		-5	-18
13	6,18E-03	5,96E-03		5,10E-03		-4	-14
14	4,17E-02	4,15E-02		4,01E-02		0	-3
15	3,01E-02	2,95E-02	uo l	2,79E-02	٦,	-2	-6
16	3,24E-02	3,18E-02	Saltation	2,98E-02	Saltation	-2	-6
17	3,85E-02	3,80E-02	Sal	3,60E-02	alta	-1	-5
18	4,77E-02	4,69E-02		4,49E-02	$\sim$	-2	-4
19	6,11E-02	6,03E-02		5,72E-02		-1	-5
20	2,43E-01	2,49E-01		2,79E-01		2	12
21	1,49E-01	1,49E-01		1,45E-01		0	-2
22	1,63E-01	1,62E-01		1,58E-01		-1	-3

<sup>\*</sup> différence en % entre les flux d'émission calculés avec  $z_0$ =240  $\mu m$  et  $z_0$ =260  $\mu m$ 

Le flux varie en fonction du régime d'émission. Les particules sont d'abord mobilisées par l'entrainement aérodynamique puis par la saltation quand la vitesse du vent dépasse la vitesse de friction seuil U\*. Pour le premier régime l'augmentation de la rugosité fait augmenter le flux. Par contre, pour le deuxième régime quand  $z_0$  augmente, le flux d'émission diminue. En effet, plus la rugosité  $z_0$  d'une surface est élevée, plus la vitesse de friction seuil U\* augmente. Sachant que la saltation n'est déclenchée que pour des vitesses de vent supérieures

<sup>\*\*</sup> différence en % entre les flux d'émission calculés avec  $z_0$ =260  $\mu m$  et  $z_0$ =340  $\mu m$ 

<sup>-</sup> la difference ne peut pas etre calculée car il ne s'agit pas du même regime de l'émission

à U\*, et pour une même vitesse de vent, le flux d'émission d'une surface ayant une rugosité  $z_{01}$  est supérieur au flux d'émission issue d'une surface de rugosité  $z_{02}>z_{01}$ .

Une augmentation de la rugosité 260 à 340 µm engendre une élévation de 7 à 8% du flux d'émission généré par l'entrainement aérodynamique (vitesses de vent de 1 à 9 m/s) et une diminution entre 51 et 2% du flux généré par la saltation pour des vitesses de vent de 11 à 22 m/s respectivement.

Une augmentation de 20 µm de la rugosité, de 240 à 260 µm engendre une élévation de 2% du flux d'émission généré par l'entrainement aérodynamique et une diminution entre 86 et 1% du flux généré par la saltation pour des vitesses de vent de 10 à 22 m/s respectivement.

En conclusion, la sensibilité du modèle d'émission à la rugosité dépend de la vitesse du vent qui détermine le régime de l'émission. En effet, pour les vitesses inférieures à la vitesse seuil pour la saltation, sa sensibilité est quasiment constante et de l'ordre de 2% pour 8% de variation de  $z_0$ . Au déclenchement de la saltation, le modèle devient sensible à la variation de rugosité mais cette sensibilité s'estompe de nouveau quand la vitesse du vent augmente.

### IV.3. Modélisation du transport et du dépôt des particules

L'objectif est de calculer les concentrations dans l'air en (µg/m3) des PM10 et des PM2,5 et leurs taux de dépôt en (µg/m²/s) au niveau des points récepteurs sélectionnés.

#### IV.3.1. Modèle utilisé (FDM) et mise en œuvre

Pour modéliser le transport et le dépôt des particules, nous utilisons Fugitive Dust Model (FDM) dont les caractéristiques ont été décrites paragraphe III.2.2.1.

Le code exécutable et le manuel de l'utilisateur sont disponibles sur le site WEB de l'USEPA. Le code est écrit en langage fortran. Les fichiers d'entrée et de sortie sont au format texte et portent, respectivement, les extensions (.IN) (voir exemple dans Annexe 2) et (.OUT). Un deuxième fichier de sortie (.PLOT) comporte les résultats obtenus pour chaque récepteur étant définit par ces coordonnées spatiales. Ce fichier sert à représenter les résultats obtenus sous forme de carte.

Les étapes suivies sont les suivantes:

- 1-Créer le ficher d'entrée (.IN)
- 2-Exécuter le code
- 3-Enregistrer les fichiers de sortie (.OUT) et (.PLOT)

La sortie est un fichier texte qui présente pour chaque classe d'aérosols les concentrations et le taux de dépôt des particules émises.

## IV.3.2. Données d'entrée pour FDM

## IV.3.2.1. Données météorologiques

**Direction moyenne horaire du vent** (Voir paragraphe IV.2.1.2.1.)

Vitesse moyenne du vent (Voir paragraphe IV.2.1.2.1.)

## Température moyenne horaire

Les températures moyennes horaires (T) en degré Celsius sont calculées arithmétiquement à partir des températures mesurées chaque minute, ensuite elles sont converties en degrés Kelvin.

$$T (^{\circ}K) = T (^{\circ}C) + 273$$

Les températures moyennes horaires varient entre 20 et 47°C pendant la période entre le 13 juillet et le 12 août 2009 à Jebel Ressas.

#### Classe de stabilité et hauteur de la couche limite atmosphérique

La station météorologique ne fournit pas les données de ces deux paramètres, nous les avons alors acquises sur le site internet du « Air Ressource Laboratory » (NOAA, 2010). Ce sont des données d'extrapolation de modèles météorologiques sur le site et la période de mesure en question.

Les classes de stabilité sont variables entre A et F et sont notées de 1 à 6 pour être conforme au format du fichier d'entrée à FDM comme suit :

1	2	3	4	5	6
A	В	C	D	Е	F

La hauteur de la couche limite atmosphérique varie entre 61 et 3320 m.

### IV.3.2.2. Données sur la source et les récepteurs

La source : la source est constituée par le terril DIII qui est de forme irrégulière et présente une superficie de 35250 m². Elle est assimilée à un rectangle équivalent de longueur 235 m, de largeur 150 m.

La hauteur de la source est de 6 m , correspondant à la hauteur moyenne du terril DIII mesurée sur le terrain.

Les récepteurs : le modèle de transport et de dépôt requiert des données d'entrées concernant les récepteurs. Ces données correspondent aux coordonnées spatiales des récepteurs considérés comme des points. 2000 points récepteurs obtenu par un maillage de 100x100m sur une surface de 20 km², et auxquels nous avons ajouté 26 points plus serrés au niveau du village, sont introduits dans le modèle FDM.

### IV.3.2.3. Données granulométriques

La granulométrie introduite est celle des poussières émises (Tableaux VI.9 et VI.10). Le modèle d'émission calcule la quantité de poussière émise pour chaque classe de diamètre définie à l'entrée. Ainsi, pour définir la granulométrie à l'entrée de FDM, nous considérons le diamètre moyen de chaque classe et la fraction émise de chaque classe. Les deux tableaux cidessous présentent les données de granulométrie introduits dans FDM.

Tableau VI.9: Granulométrie des PM10 émises

Classe de diamètre (µm)	[1;2,5]	[2,5;5]	[5;7]	[7;10]
Diamètre moyen (μm)	0,55	1,75	3,75	7,5
Fraction émise	0,166	0,194	0,189	0,451

Tableau VI.10: Granulométrie des PM2,5 émises

Classe de diamètre (µm)	[0,1;0,5]	[0,5;1]	[1;1,5]	[1,5;2,5]
Diamètre moyen (μm)	0,25	0,6	1,35	2,2
Fraction émise	0,00144	0,0552	0,389	0,554

#### IV.3.2.4. Données sur l'émission

Pour la période du 13 juillet au 12 août, soit 30 jours, 720 données de l'émission moyenne horaire (g/m²/s) sont introduites dans FDM sous la forme d'un fichier texte (.HRY) aussi bien pour les PM10 que pour les PM2,5.

## IV.3.3. Concentrations des PM10 et des PM2,5 dans l'air

Les concentration moyennes journalières de PM10 et de PM2,5 sont calculées en 2025 points récepteurs pendant la période comprise entre le 13 juillet et le 12 août 2009 (Annexe).

A partir de ces concentration journalières nous avons calculé la concentration moyenne sur toute la période (1 mois) qui sera considérée comme une concentration représentative des PM10 et des PM2,5 pendant la période estivale (Tableau VI.11).

La valeur de référence pour la charge totale de particules dans en suspension dans l'air (les TSP =total suspended particles) qui est égale à 120 μg/m³ selon l'OMS (1999).

Pour les PM10 et les PM2,5 l'OMS indique 50 et 25 μg/m3 respectivement comme valeurs de référence dans l'air ambiant extérieur dans la mise à jours de ces valeur en 2012.

Tableau VI.11: Les intervalles de concentrations des aérosols dans l'air.

			Valeurs de
	Minimum	Maximum	référence
			(OMS, 2012)
PM10 ( $\mu$ g/m <sup>3</sup> )	3,91E-11	213	50
PM2,5 ( $\mu g/m^3$ )	3,93E-11	118	25

Les concentrations de PM10 et de PM2,5 dépassent de 4 fois les valeurs de référence notamment dans le village. Le transfert se fait principalement vers le NW du terril jusqu'à une distance de 600 m (Figure VI.18). Les fermes sont ainsi plus exposées aux poussières que le village où les PM2,5 ne dépassent pas  $25~\mu g/m3$ .

En revanche, il faut rappeler que les concentrations que nous avons obtenues concernent la saison estivale uniquement. La moyenne annuelle devra inclure les concentrations obtenues pour les autres saisons, pendant lesquelles les précipitations joueront un important rôle dans la diminution de la charge particulaire dans l'air.

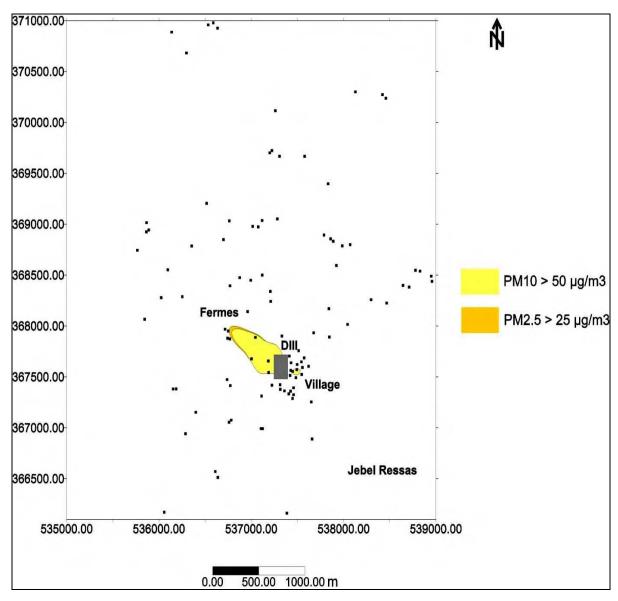


Figure IV.18 : Carte des concentrations de PM10 et de PM2,5 supérieures aux valeurs de références

## IV.3.4. Taux de dépôt des PM10 et des PM2,5

De la même manière que la concentration, le taux de dépôt moyen sur la période de 1 mois à été calculé (Tableau VI.12).

Tableau VI.12: Intervalles du taux de dépôt calculé par FDM.

	minimum	maximum
PM10 (μg/m²/s)	1,32E-13	7,87E-01
PM2,5 (μg/m²/s)	1,91E-14	6,39E-02

En l'absence de valeurs guides pour le taux de dépôt sec de particules, nous comparons nos valeurs à celles de la littérature. Par exemple la valeur maximale de taux de dépôt calculé pour les PM10, est du même ordre de grandeur que les valeurs obtenues par Lim et al (2006), suite à une campagne de mesures directes de taux de dépôt en différents points à Los Angeles, et qui donne les intervalles suivants dans un milieu non-urbain : entre 0,187 et 0,025 ( $\mu g/m^2/s$ ) pendant le jour et entre 0,335 et 0,382 ( $\mu g/m^2/s$ ) pendant la nuit.

## V. Concentrations des métaux dans l'air dans le village de Jebel Ressas

## V.1. Méthodologie

### V.1.1. Méthodologie de la mesure directe

#### V.1.1.1. Echantillonnage des PM10 et des PM2,5

Les PM10 et PM2,5 sont collectés avec un préleveur d'aérosols monté au laboratoire d'Aérologie de Toulouse (Figure VI.19). Il est principalement composé de :

- deux têtes de coupures qui permettent la séparation granulométrique des aérosols
- deux petites pompes.
- deux débitmètres qui permettent de fixer le débit d'air entrant en l/min
- deux compteurs qui affichent les volumes d'air entrant en m<sup>3</sup>
- deux porte-filtres

L'air chargé d'aérosols entre par les têtes de coupures ou les particules sont séparées en ne laissant passer que les particules de diamètre inférieur à 10µm sur l'une des têtes et les particules de diamètre inférieur à 2,5µm sur l'autre.





Figure VI.19: Photos du préleveur d'aérosols

Les aérosols sont collectés sur des filtres en téflon Ze-Fluor et ils sont remplacés toutes le 24 heures.

Les filtres ont une porosité de 0,45µm et un diamètre de 47mm. Le filtre est placé au dessus de la grille du porte filtre avec une pince en plastique.

En portant des gants, le filtre est enlevé avec une pince en plastique et rangé dans une boite de filtre Millipore propre sur laquelle sont notés la date et le diamètre d'aérosol prélevé. La boite portant le filtre est fermée et rangée dans un sac en plastique jusqu'au jour de l'analyse chimique.

Pendant chaque manipulation, le préleveur est arrêté, la date, l'heure et les volumes marqués sur les compteurs de volumes d'air sont notés.

Ce travail d'échantillonnage à duré 30 jours du 13 juillet au 12 août 2009.

Pour l'analyse minéralogique des aérosols, un échantillon de PM2.5 et un autre de PM10 ont été prélevés sur une durée de 8 jours en août 2010 afin d'obtenir une quantité suffisante de matière sur les filtres pour l'observation au MEB.

### V.1.1.2. Analyses de Pb, Zn et Cd dans les PM10 et des PM2,5

Le contenu en Pb, Zn et Cd de l'aérosol a été analysé par ICP-MS après attaque biacide avec HF suprapur et HNO<sub>3</sub> bidistillé. Les attaques ont été réalisées par séries de 10 filtres portant des aérosols, avec 4 blancs de filtres, 1 blanc de chimie et 1 standard international de cendres d'incinérateur urbain (SKO1), afin de valider le protocole de mise en solution.

L'attaque chimique des filtres a été effectuée en deux temps. Un premier groupe de filtres a été attaqué en utilisant un protocole avec du méthanol tridistillé pour rendre les filtres hydrophyles. Le deuxième groupe a été attaqué avec un protocole sans méthanol pour éviter tout risque d'explosion par mélange avec les acides.

#### Protocole avec le méthanol tri-distillé (Tableau VI.13)

Tableau VI.13 : Protocole avec méthanol de mise en solution des aérosols

1	Mouiller le filtre avec 1.5ml de méthanol tridistillé
2	III 11 > -11 1 1 0 1

- 2 HF suprapur: 1 ml à chaud pendant 8 heures
- 3 HNO<sub>3</sub> bidistillé: 2 ml à chaud 8 heures
- 4 HNO<sub>3</sub> bidistillé: 2 ml à chaud 6 heures
- 5 Rinçage des filtres avec H<sub>2</sub>O MQ
- 6 Evaporation à 75°C
- Reprise avec HNO<sub>3</sub> bidistillé puis dilution à 2% de HNO<sub>3</sub>

Le méthanol utilisé a été distillé trois fois avec un évapo-clean en salle blanche. Sa propreté a été testée avec des analyses à l'ICP/MS.

A chaque introduction de réactif, les réactions avec l'échantillon sont favorisées par une agitation aux ultrasons pendant environs 15 min.

#### Protocole sans méthanol (tableau VI.14)

Tableau VI.14 : Protocole sans méthanol de mise en solution des aérosols

- 1 HF suprapur : 60 gouttes à chaud pendant 8 heures
- 2 HNO<sub>3</sub> bidistillé : 6 ml à chaud pendant 8 heures
- Rinçage des filtres avec H<sub>2</sub>O MQ dans le savillex
- 4 Evaporation à 75°C
- 5 Reprise avec HNO<sub>3</sub> bidistillé puis dilution à 2% de HNO<sub>3</sub>

Comme pour le premier protocole, nous procédons à une agitation aux ultrasons à chaque introduction de réactif.

Les solutions du premier groupe de filtres ont été analysées avec un ICP-MS Agilent 7500 à cellule de collision. Les interférences isobariques ont été corrigées avec des calculs automatiques et les interférences polyatomiques ont été corrigées par l'opérateur sur la machine.

Les solutions du deuxième groupe de filtres ont été analysées avec un ICP-MS Agilent 7700x. L'analyse des blancs de chimie, BC, BC1, BC2, BC4, BC5 et BC6 (tableau VI.15) montre que la contamination provenant de la manipulation est très limitée ne dépassant pas 5 ppb pour Zn, 0,3 ppb pour Pb alors que Cd reste en dessous de la limite de détection de l'appareil (0,01ppb).

Tableau VI.15: Concentrations de Pb, Zn et Cd (ppb) dans les blancs de chimie

Elément	BC	BC1	BC2	BC4	BC5	BC6
Pb	0,10	0,06	0,03	0,28	-	-
Zn	0,5	3,6	4,4	2,5	0,7	0,4
Cd	-	-	-	-	-	-

- : concentration < à la limite de détection (LD) de l'appareil LD Pb = 0,03ppb , LD Zn = 0,1ppb , LD Cd = 0,01ppb

Les deux protocoles que nous avons utilisés sont adaptés au matériau de référence SKO1. Pour Pb, Zn et Cd, les rendements sont compris entre 92 et 125% (Tableau VI.16)

Tableau VI.16 : Comparaison des concentrations analysées et certifiées du standard international SKO1

	$Zn (\mu g.g^{-1})$	Cd (µg.g <sup>-1</sup> )	Pb (μg.g <sup>-1</sup> )	Rendement Zn (%)	Rendement Cd (%)	Rendement Pb (%)
SKO1	17703	275,64	9055	104	104	110
SKO1-1	19032	311,39	10254	112	117	125
SKO1-2	16492	272,80	8794	97	103	107
SKO1-3	16698	262,34	8093	98	99	99
SKO1-4	17800	272,41	8403	105	102	102
SKO1-5	16099	244,52	7575	95	92	92
Concentrations certifiées (µg.g <sup>-1</sup> )	17033	266	8199			

## V.1.1.3. Méthodologie de l'étude par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) des particules métallifères dans les aérosols

Les deux échantillons de PM10 et de PM2.5 prélevés en août 2010 sont analysés au MEB du type JEOL JSM 6360 LV sous vide. La microanalyse chimique est effectuée avec un système EDS (Electron Dispersive Energy) du type Burker AXS Microanalysis.

Les images en mode rétrodiffusé et les microanalyses sont effectuées sous une tension de 20kV.

D'abord les filtres sont découpés puis les couches en téflon sont décollées ensuite collées sur la pastille en carbone du porte échantillon.

Les phases minérales porteuses de métaux sont identifiées en couplant les résultats obtenus au MEB et les résultats de l'étude minéralogique effectuée sur les terrils de déchet DIII.

# V.1.2. Méthodologie de calcul de la concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 à partir de la modélisation des concentrations en particules dans l'air

Les concentrations de métaux dans les PM10 et les PM2,5 sont calculés à partir des concentrations en Pb, Zn et Cd de l'échantillon prélevé à la surface du terril DIII représentatif du matériel soumis à l'érosion éolienne. Ces concentrations en métaux sont multipliées par la concentration en particules dans l'air pour obtenir la concentration en métaux dans l'air.

#### V.2. Résultats

## V.2.1. Concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 par mesure directe

Les concentrations en  $\mu g/l$  obtenues pour les solutions d'attaque chimique des filtres d'aérosols sont converties au  $\mu g/m^3$  en les rapportant au nombre de  $m^3$  d'air prélevés correspondant à chaque échantillon d'aérosols.

Les figures VI.20 et VI.21 donnent les intervalles de concentrations de Pb, Zn et Cd dans les aérosols analysés.

Les concentrations des métaux dans les PM10 sont plus élevées que dans les PM2,5, ce qui est logique puisque la quantité initiale de PM10 est forcément supérieure à celle des PM2,5. Les rapports PM10/PM2,5 des concentrations moyennes pour Pb, Zn et Cd sont respectivement de 7, de 6 et de 11 fois.

Dans les PM10, les concentrations de Zn varient entre 0.02 et  $0.45 \mu g/m^3$ , celles de Pb atteignent  $0.12 \mu g/m^3$ , quand au Cd les concentrations sont plus faibles jusqu'à deux ordres de grandeurs et atteignent au maximum  $0.002 \mu g/m^3$ .

Dans les PM2,5 les concentrations maximales de Pb, Zn et Cd sont respectivement de  $0.02 \mu g/m^3$ ,  $0.5 \mu g/m^3$   $0.0005 \mu g/m^3$ .

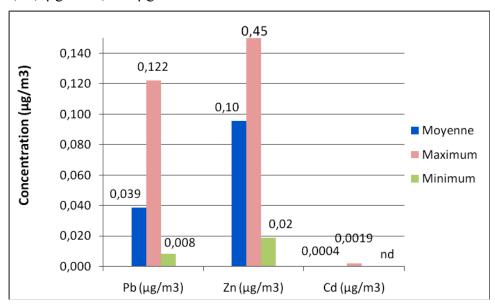


Figure VI.20 : Concentrations journalières moyennes, maximales et minimales des métaux dans les PM10 analysés

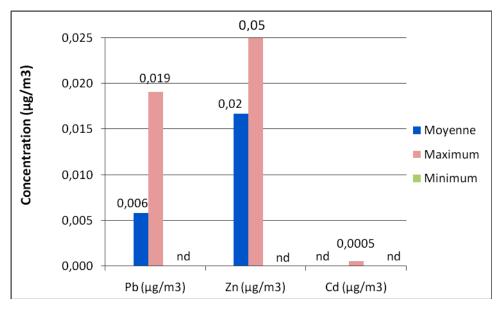


Figure VI.21 : Concentrations moyennes maximales et minimales des métaux dans les PM2,5 analysés

Le tableau ci-dessous, présente tout les résultats des analyses de Pb, Zn et Cd des aérosols prélevés.

Tableau VI.17: Concentration des métaux dans les PM10 et les PM2,5 prélevés

	PM10			PM2,5			
	Pb (µg/m³)	Zn (µg/m³)	Cd (µg/m³)	Pb (µg/m³)	Zn (µg/m³)	Cd (µg/m³)	
J1	0,0253	0,0331	0,0002	0,0070	nd	nd	
J2	0,0324	0,1070	0,0004	0,0007	nd	nd	
J3	0,0117	0,0188	nd	0,0065	0,0049	nd	
J4	0,1221	0,4464	0,0016	0,0029	0,0140	nd	
J5	0,0653	0,1904	0,0008	0,0064	0,0178	nd	
J6	0,0289	0,0780	0,0004	0,0055	0,0125	nd	
J7	0,0104	0,0345	0,0002	0,0022	nd	nd	
J8	0,0378	0,0772	0,0004	0,0009	0,0048	nd	
J9	0,0509	0,1347	0,0007	0,0002	nd	nd	
J11	0,0807	0,1471	0,0008	0,0048	0,0038	0,0001	
J12	0,0269	0,0575	0,0003	0,0020	0,0016	nd	
J13	0,0216	0,0446	0,0003	0,0014	nd	0,0001	
J14	0,0372	0,0733	0,0005	0,0011	nd	nd	
J15	0,0348	0,0808	0,0002	0,0050	0,0147	0,0005	
J16	0,0135	0,0333	nd	0,0045	0,0367	nd	
J18	0,0712	0,1793	0,0009	0,0123	0,0301	0,0002	
J19	0,0253	0,0523	0,0019	0,0191	0,0403	nd	
J20	0,0229	0,0602	0,0003	0,0085	0,0513	nd	
J21	0,0123	0,0290	nd	0,0040	0,0135	nd	
J22	0,0192	0,0439	nd	0,0046	0,0182	0,0002	
J23	0,0705	0,1120	0,0007	0,0091	0,0200	nd	
J24	0,0203	0,0595	0,0002	0,0138	0,0169	nd	
J25	0,0451	0,0900	0,0004	0,0085	0,0156	nd	
J26	0,0592	0,1273	nd	0,0084	0,0383	nd	
J27	0,0253	0,0716	0,0003	0,0119	0,0276	nd	
J28	0,0252	0,0630	nd	0,0002	0,0254	nd	
J29	0,0804	0,2129	0,0010	0,0119	0,0430	nd	
J30	0,0083	0,0212	nd	0,0003	0,0167	nd	
Moyenne	0,0387	0,0957	0,0004	0,0058	0,0167	nd	
Maximum	0,1221	0,4464	0,0019	0,0191	0,0513	0,0005	
Minimum	0,0083	0,0188	nd	0,0002	nd	nd	

### V.2.2. Micro-analyse MEB des particules métallifères dans les aérosols

L'analyse au MEB-EDS montre que la calcite et les aluminosilicates sont les phases dominantes dans les aérosols. Les phases porteuses de métaux sont essentiellement des oxydes portant Pb ou Zn. Connaissant la nature des déchets à dominante carbonatée ces oxydes sont très probablement des carbonates de Pb et de Zn ou bien des oxydes de Fe portant ces métaux (Figure VI.22).

Nous avons également repéré des grains de silicates de Zn et plus rarement des sulfures de Pb. Le pic de fluor provient du filtre (Ze-fluor).

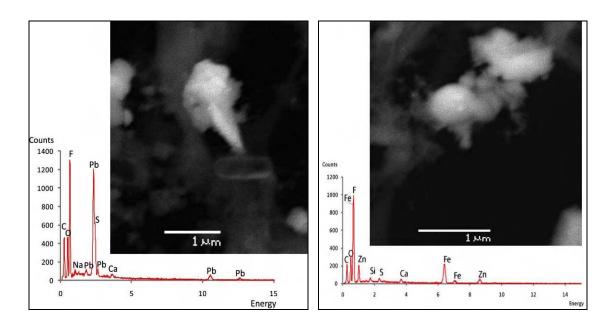


Figure VI.22 : Images en mode rétrodiffusé et spectres EDS de grains d'aérosols sur un filtre portant des PM2,5.

Les grains clairs sont porteurs de métaux. La microanalyse montre sur la figure à gauche la présence de Pb et de S avec des pics marqués de O et de C ce qui pourrait indiquer qu'il s'agit d'un grain mixte de galène et de carbonate de Pb. Sur la figure à droite il s'agit également d'un grain de couleur hétérogène, formé par un mélange de minéraux porteurs de Zn, Fe et Si.

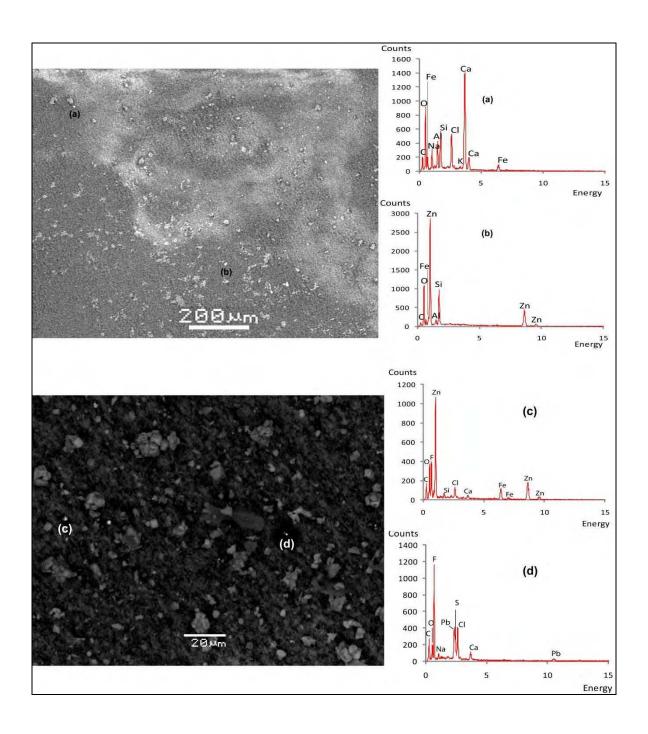


Figure VI.23 : Images en mode rétrodiffusé et spectres EDS de filtres d'aérosols portant des PM10.

On distingue des particules blanches métallifères parmi des particules grises dominées par la calcite. (a) un grain avec probablement de la calcite et un aluminosilicate. (b) serait un silicate de Zn. (c) correspondrait à mélange d'oxydes de Fe et de Zn (carbonate ou silicate. (d) serait une galène, Le pic de Cl proviendrait de la matière du filtre.

L'observation des filtres d'aérosols au MEB a permis de distinguer les particules métallifères en teinte claire parmi des particules grises dominées par la calcite (Figure VI.23). A partir des

microanalyses EDS il a été possible de retrouver les différents types de phases porteuses de Zn et Pb (figure 23) spectre (a), (b), (c), et (d) Le cadmium n'a pas été mis en évidence par le MEB à cause de ses faibles concentrations en dessous de la limite de détection de la technique.

# V.2.3. Concentration des métaux dans les PM10 et PM2,5 obtenus par modélisation au niveau du point de prélèvement

Nous avons calculé les concentrations en métaux dans l'air avec un point récepteur correspondant au point de prélèvement d'aérosols dans le village.

A partir des concentrations en PM10 et en PM2,5 obtenues par modélisation FDM, modélisation et à partir des concentrations de Pb, Zn et Cd dans l'échantillon de surface de DIII, considéré comme source d'émission, nous avons obtenu les concentrations en métaux dans l'air au point récepteur (Tableau VI.18).

Tableau VI.18: Concentration calculées des métaux dans les PM10 et les PM2,5

		PM10			PM2,5	
	Pb (μg/m <sup>3</sup> )	Zn (μg/m³)	Cd (μg/m <sup>3</sup> )	Pb (μg/m <sup>3</sup> )	Zn (μg/m <sup>3</sup> )	Cd (µg/m³)
Moyenne	0,0459	0,1580	0,0006	0,0172	0,0594	0,0002
Maximum	0,4190	1,4438	0,0056	0,1519	0,5234	0,0020
Minimum	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000

#### V.2.4. Comparaison des résultats par mesure directe et par modélisation

Les concentrations calculées et analysés de Pb, Zn et Cd sont dressées sur les mêmes figures respectivement pour avoir la visibilité sur les cohérences et les variations entre les résultats obtenues avec les deux méthodes, mesure directe et modélisation au même point que le prélèvement, ce qui nous permettra de discuter la validité des résultats théoriques (Figure VI.24).

#### **PM10**

Nous constatons que l'allure générale des deux courbes et les ordres de grandeur de concentrations obtenues par mesure directe et par modélisation sont similaires sauf pour 4 jours (jours 8, 23, 25 et 29) où le modèle surestime les concentrations de 1 à 8 fois.

Pendant ces 4 jours, la direction moyenne horaire du vent était entre 280° et 321° par rapport au Nord pendant 4 à 8 heures pour chaque jour. La fréquence des ces vents par rapport aux autres jours du mois ont favorisé le transport du flux émis vers le village d'où la surestimation constatée.

Pour ces directions du vent la rugosité de la surface est de l'ordre de 340μm et donc sensiblement différente de celle que nous avons adopté pour l'ensemble du calcul (260μm). Une valeur de 340μm diminuerait considérablement les valeurs des flux d'émission notamment pour les vitesses de vents entre 9 et 13 m/s, induisant une diminution des concentrations de particules dans l'air.

En plus, le vent provenant de ces directions (W et NW) favorise le transfert des particules directement vers le point de mesure situé au NE de la source. Ainsi le pic de concentration de métaux calculé par rapport à la concentration mesurée pour ces quatre jours a été accentué.

D'autre part, le modèle considère, pour chaque 24 heures de données, une concentration de départ nulle. Autrement dit, FDM part théoriquement d'une atmosphère supposée propre pour chaque itération. Par contre en réalité, l'atmosphère n'est jamais pure et il y a toujours des particules qui restent en suspension dans l'air. Notre échantillonnage a concerné aussi bien les particules émises le jour même que les particules initialement en suspension dans l'air. Ce fait explique la sous-estimation du modèle des faibles concentrations mesurées dans l'air.

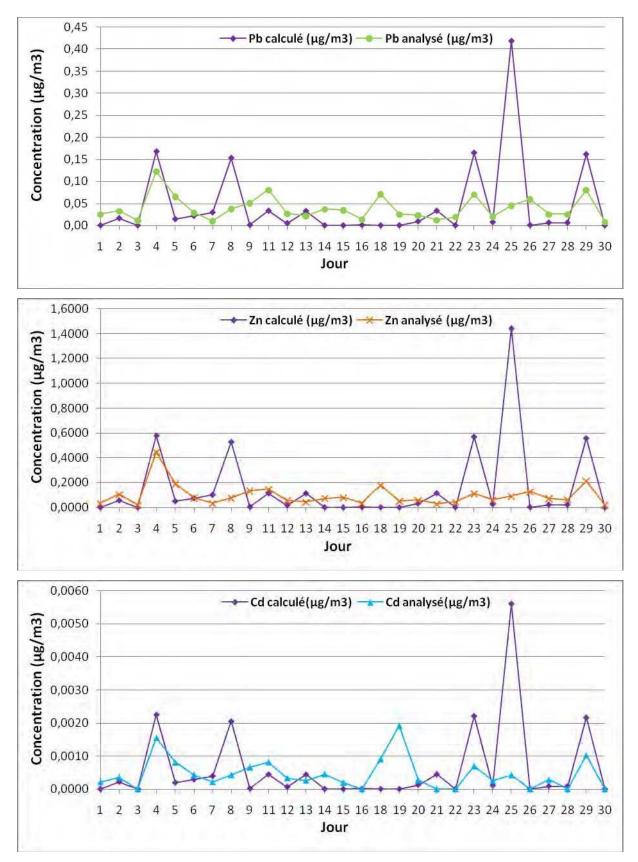


Figure VI.24 : Variation journalière des concentrations calculés et analysées de métaux dans les PM10 au point de prélèvement situé sur la terrasse de la maison en face du terril DIII

La modélisation a été réalisée en considérant une seule source, le terril DIII qui est le plus concentré en métaux et le plus proche du village. Pour évaluer l'influence des deux autres terrils en tant que source d'émission, l'indice de corrélation entre les concentrations de Pb et Zn dans les PM10 et dans des échantillons représentatifs des trois terrils déchets a été calculé (Figure VI.26).

Dans les PM10, les corrélations entre les concentrations analysées de Pb et Zn dans les aérosols et dans les trois terrils, montrent que ces métaux proviennent d'une même source qui serait les déchets de laverie DI, DII et DIII.

La projection des concentrations des métaux dans les aérosols et dans les déchets confirment leurs provenance des terrils de déchets de laverie notamment la surface de DIII pour Pb et Zn (Figure VI.27).

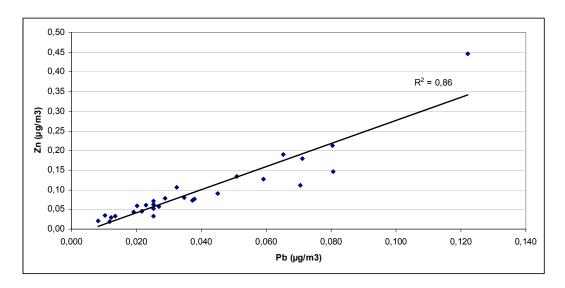


Figure VI.25 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM10 prélevés sur le site

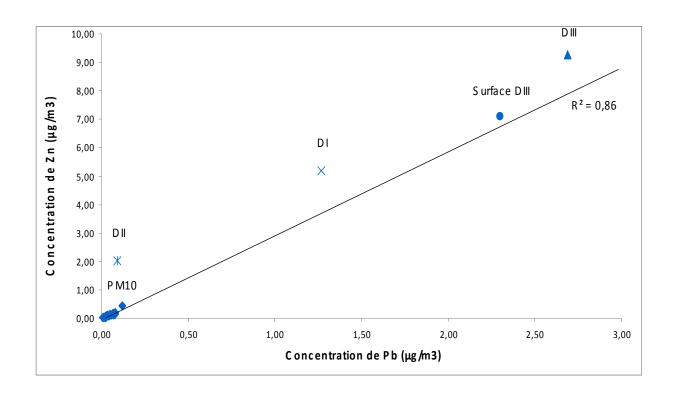
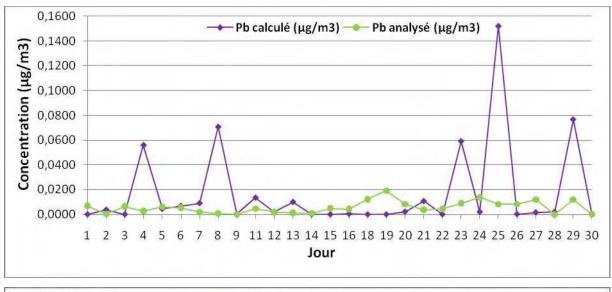
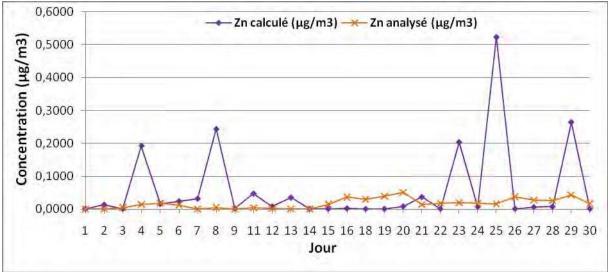


Figure VI.26 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM10 prélevés sur le site et dans les échantillons représentatifs des terrils de déchets.

#### PM2,5

Pour les PM2,5, pendant la majorité des jours, les concentrations sont cohérentes et du même ordre de grandeur avec les concentrations mesurés. Toutefois, comme dans le cas des PM10, que le modèle montre une surestimation notemment pour les jours 4, 8, 23, 25 et 29 jusqu'à 18 fois dans le cas de Pb (Figure VI.28).





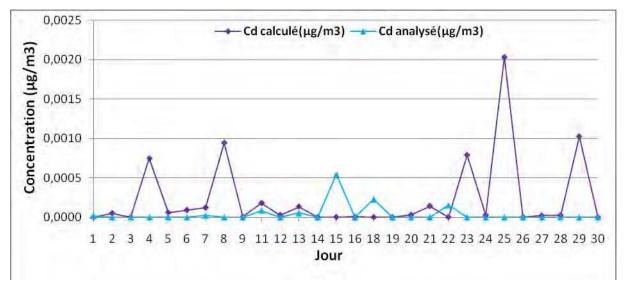


Figure VI.27 : Variation journalière des concentrations calculés et analysées de métaux dans les PM2,5 au point de prélèvement situé sur la terrasse de la maison en face du terril DIII

D'autre part, pour les PM2,5, il n'existe pas de corrélation entre les concentrations de Zn et Pb (R² = 0,4) (Figure VI.29). Ce résultat indique qu'il existe d'autres sources d'aérosols que les trois terrils de déchets de laverie. Il est, en effet, vraisemblable que les PM2,5 vu leur fine taille, soient transportées sur de longues distances (contrairement aux PM10 qui se déposent plus rapidement et son donc transportées sur de plus courtes distance en raison de leur masse) d'où des rapports d'éléments variés indiquant la contribution de sources différentes et lointaines.

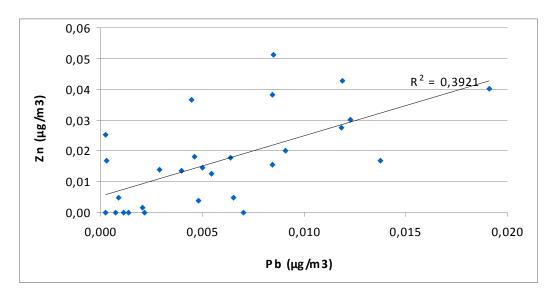


Figure VI.28 : Corrélation entre les concentrations de Pb et de Zn dans les PM2,5 prélevés sur le site

# V.3. Prédiction spatialisée des concentrations moyennes des métaux dans l'air pendant la période de mesure et cartes d'aléa

Les intervalles de concentrations moyennes des métaux sur la grille de points considérée et pendant la période de l'étude sont donnés dans le tableau ci dessous.

Tableau VI.19: Intervalles de concentration des métaux dans la zone d'étude

		PM10			PM2,5	
Elément (µg/m³)	Pb	Zn	Cd	Pb	Zn	Cd
maximum	19,80	5,74	7,68 10 <sup>-2</sup>	11,00	3,19	4,26 10 <sup>-2</sup>
minimum	1,32 10 <sup>-2</sup>	3,84 10 <sup>-3</sup>	5,14 10 <sup>-5</sup>	4,03 10 <sup>-3</sup>	1,17 10 <sup>-3</sup>	1,57 10 <sup>-5</sup>
concentrations de référence (OMS, 2005)	0,5	-	0,005	0,5	-	0,005

Les cartes de la répartition spatiale des concentrations de Pb, Zn et Cd dans l'air à une hauteur de 2 m de la surface du sol sont données à la fin de ce paragraphe (Figure VI.30 jusqu'à la figure VI.35).

Ces cartes mettent en évidence les points suivants :

- Les concentrations de métaux sont maximales au tour du terril source que nous avons considéré
- Le transport se fait principalement vers l'ouest et à moindre importance vers l'est et vers le nord.

Bien que les vents dominants soient du nord et de nord ouest, le transport se fait principalement par les vents de l'est parce que ce sont les vents les plus forts et violent.

Les terrains agricoles et les fermes sont alors les plus exposés aux métaux pendant la saison estivale, toutefois la concentration de la population dans le village à quelques dizaines de mètres à l'est du terril est située au niveau d'une zone limité mais fortement exposée aux métaux.

Les zones les moins susceptibles d'être contaminées durant la période de mesure sont les secteurs SW et NE du terril. Pour ces directions nous avons noté que les vitesses de vents les plus fréquentes sont comprises entre 1 et 5m/s, ce qui leurs protège des apports de poussières contaminées.

Nous rappelons que la modélisation et la cartographie n'a pris en compte qu'un seul terril. La zone à risque serait plus large en intégrant toutes les sources notamment les deux autre terrils de déchets de laverie et les déchets de fonderie répandu à environs 1 km au nord du village de Jebel Ressas. Il est également nécessaire de réaliser une prédiction avec des données météorologiques enregistré durant toute l'année pour que les concentrations moyennes soient les plus réalistes possibles

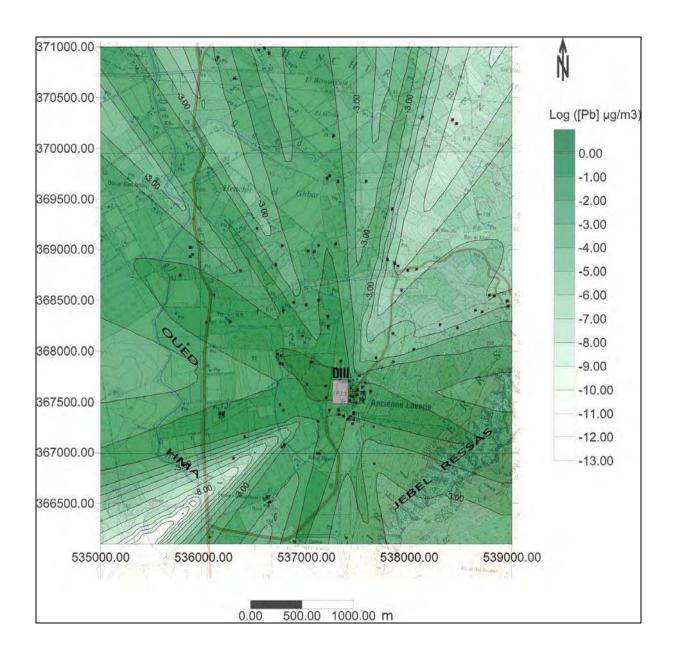


Figure VI.29: Concentration de Pb dans les PM10 dans l'air

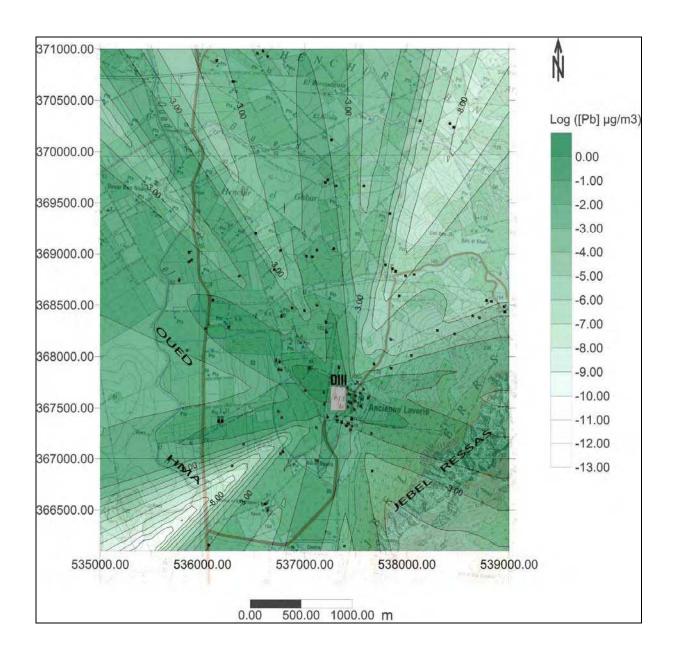


Figure VI.30: Concentration de Pb dans les PM2,5 dans l'air

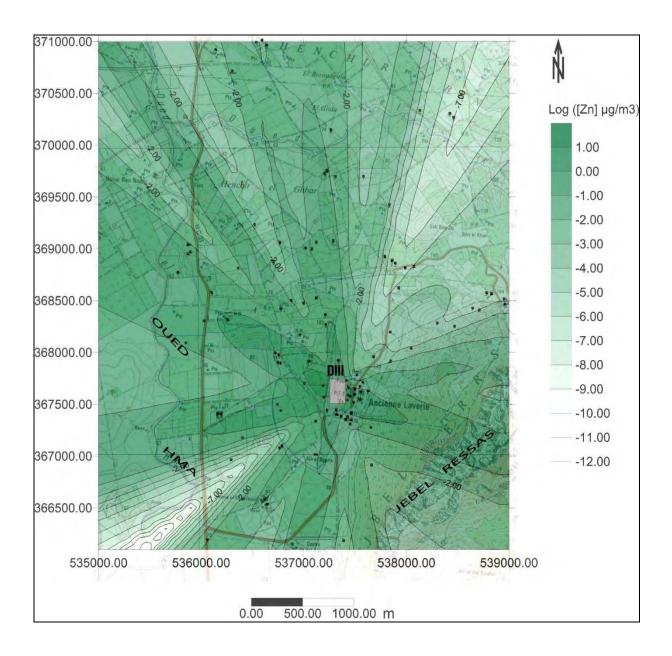


Figure VI.31: Concentration de Zn dans les PM10 dans l'air

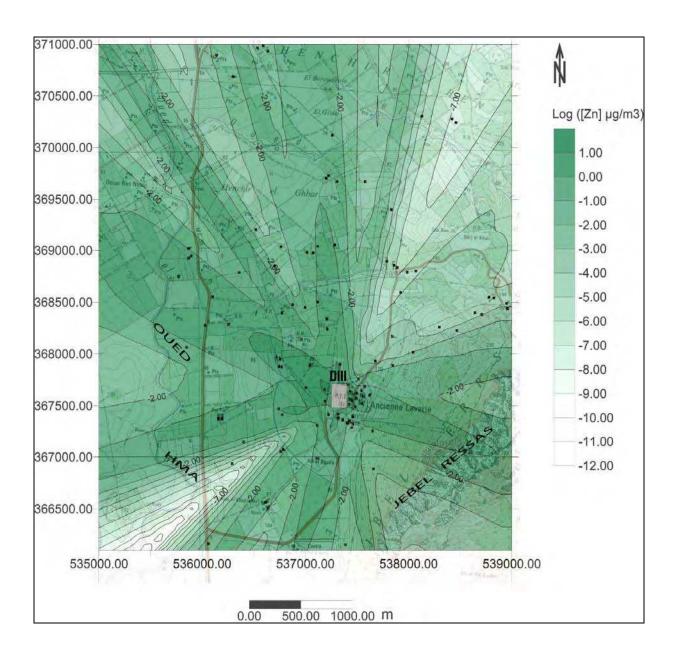


Figure VI.32: Concentration de Zn dans les PM2,5 dans l'air

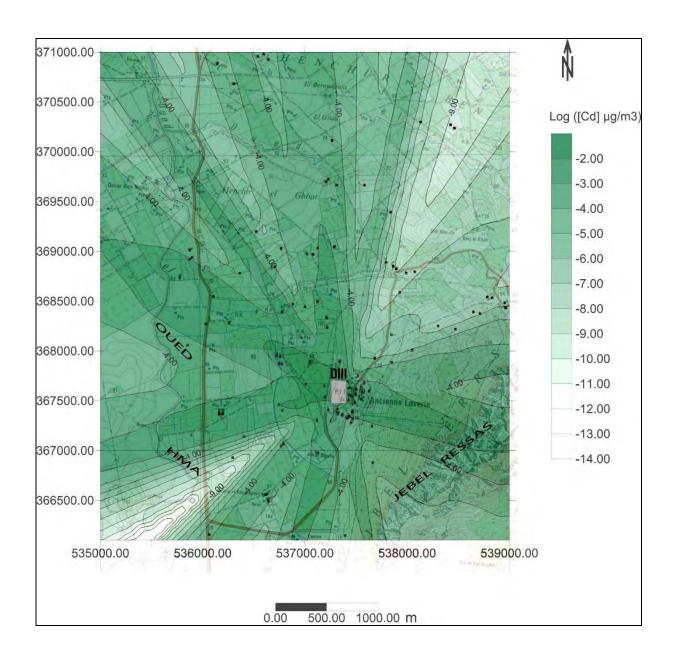


Figure VI.33: Concentration de Cd dans les PM10 dans l'air

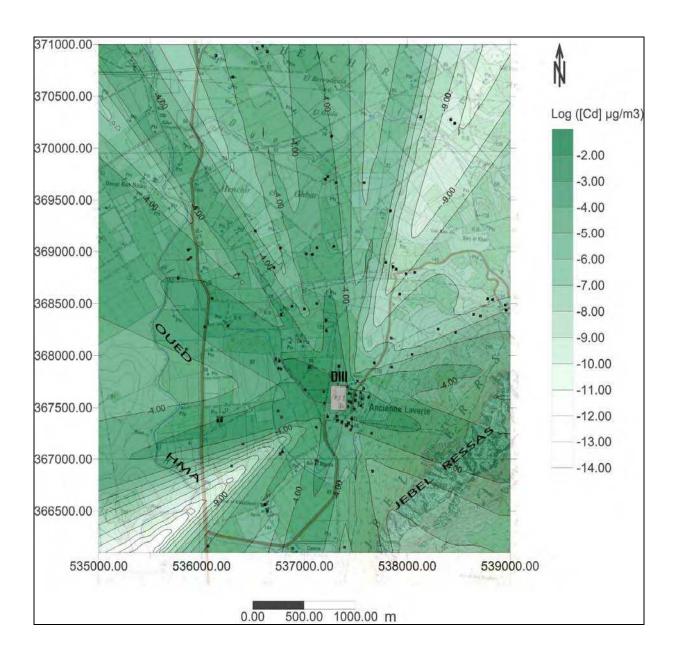


Figure VI.34: Concentration de Cd dans les PM2,5 dans l'air

Les cartes de l'aléa du transfert des métaux, correspondent à la spatialisation des concentrations qui excèdent les normes de l'OMS, 2005. Ces cartes sont données dans les figures VI.36 et VI.37.

Nous ne considérons que Pb et Cd étant donné qu'ils sont des métaux toxiques à très faibles concentrations.

La direction privilégiée pour le transport des métaux est, Comme il a été démontré pour les aérosols, vers le NW du terril DIII donc vers les fermes et les terrains agricoles.

Dans cette direction, Pb et Cd dans les PM2,5 sont transporté sur une distance de 800 m depuis le terril. Pour les PM10, la distance de transport est d'environ 1200 m.

Dans les PM10, Pb et Cd sont aussi dispersé dans des directions secondaires (N, S W et SE) par des vents autres que les vents efficaces (SE) pendant l'été.

Le village de Jebel Ressas devient également exposé par les vents du NW qui dominent à l'échelle de l'année. Pb et Cd dans les PM10 peuvent atteindre une distance de 500 m à l'est du terril en couvrant ainsi la majeure superficie du village. Dans les PM2,5, seul Cd dépasse sa norme jusqu'à une distance de 150 m du terril et où se trouve en plus des habitation, l'école primaire, le dispensaire et le bureau de poste.

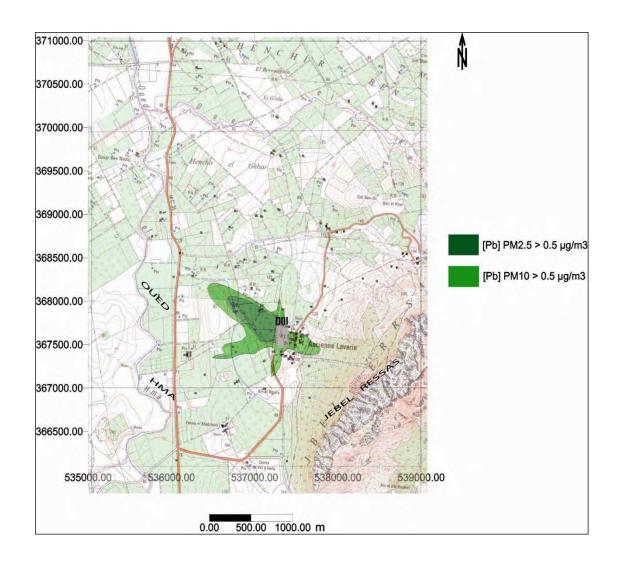


Figure VI.35 : Carte de l'aléa du transfert éolien de Pb

Le terril DIII est la source de contamination assimilée à un rectangle représenté en gris. Les lieux d'habitations et les fermes sont représentés par les points noirs. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage.

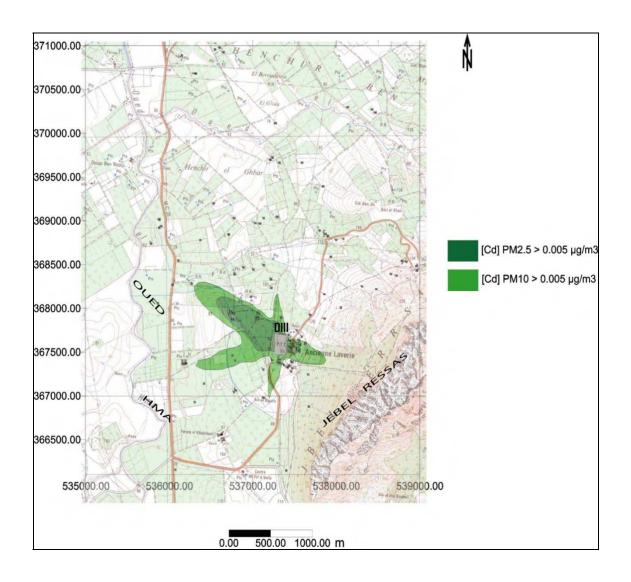


Figure VI.36 : Carte de l'aléa du transfert éolien de Cd

Le terril DIII est la source de contamination assimilée à un rectangle représenté en gris. Les lieux d'habitations et les fermes sont représentés par les points noirs. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage.

#### V.4. Cartographie prédictive des taux de dépôt des métaux

Les intervalles de taux de dépôt moyen obtenu pendant la période de mesure et sur le domaine considéré sont donnés sur le tableau VI.20.

Tableau VI.20 : Intervalle des taux du dépôt sec des métaux

	PM10			PM2,5		
Elément	Pb	Zn	Cd	Pb	Zn	Cd
$(\mu g/m^2/s)$	1.5	211	Cu	15	211	Cu
maximum	2,12 10 <sup>-2</sup>	7,30 10 <sup>-2</sup>	2,83 10 <sup>-4</sup>	1,72 10 <sup>-3</sup>	5,92 10 <sup>-3</sup>	2,30 10 <sup>-5</sup>
minimum	1,40 10 <sup>-5</sup>	4,82 10 <sup>-5</sup>	1,87 10 <sup>-7</sup>	7,01 10 <sup>-7</sup>	2,42 10 <sup>-6</sup>	9,38 10 <sup>-9</sup>

Le dépôt sec concerne réellement les particules grossières qui sont les PM10 dans notre cas étant donné que les PM2,5 sont compris dans le PM10 nous présentons ci-dessous les cartes de répartition du taux de dépôt des métaux dans les PM10(Figures VI.38, VI.39 et VI.40).

La répartition spatiale des taux de dépôt des différents éléments est similaire à celle des concentrations dans l'air. En effet, plus l'air est chargé en particules, plus la quantité qui se dépose par unité de temps est importante. Par conséquent les mêmes zones exposées aux concentrations élevées de métaux recevront les flux de dépôt les plus importants. Ces zones seront le village à l'est du terril DIII et les terrains agricoles à l'oust. Nous notons que Oued hma peut recevoir suite au dépôt un flux maximum de l'ordre de  $10^{-4} \mu g/m^2/s$  de Pb,  $10^{-3} \mu g/m^2/s$  de Zn et  $10^{-6} \mu g/m^2/s$  de Cd, surtout dans sa partie au NW du site minier.

Enfin, pour le taux de dépôt donné en  $\mu g/m^2/s$ , on ne peut pas simplement additionner arithmétiquement sur des larges pas de temps puisque chaque point de dépôt est lui-même un point d'émission à partir duquel les poussières déposées peuvent en partie migrer.

Dans une première approche, nous pouvons proposer dans un travail à venir de déterminer un facteur de corrélation entre les taux de dépôt calculé et les concentrations des sols pour pouvoir établir une carte d'aléa pour les sols.

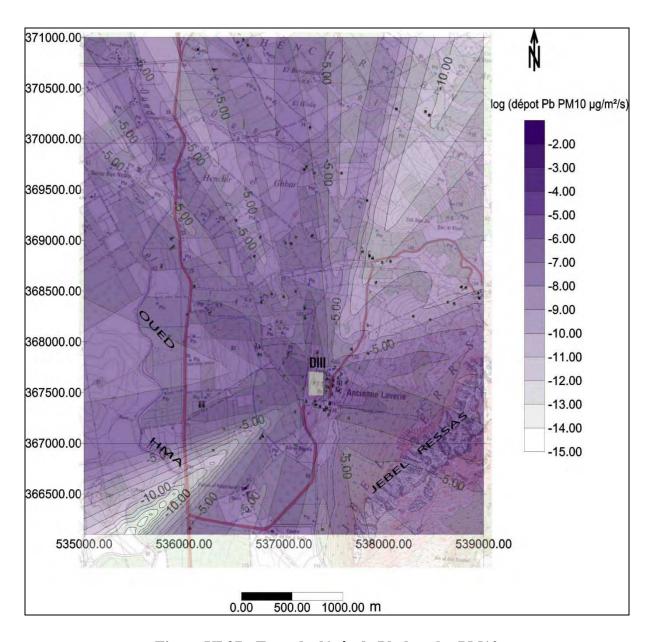


Figure VI.37 : Taux de dépôt de Pb dans les PM10

Le terril DIII est la source de contamination assimilée à un rectangle représenté en gris. Les lieux d'habitations et les fermes sont représentés par les points noirs. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage. Les résultats sont donné en logarithme des taux de dépôt.

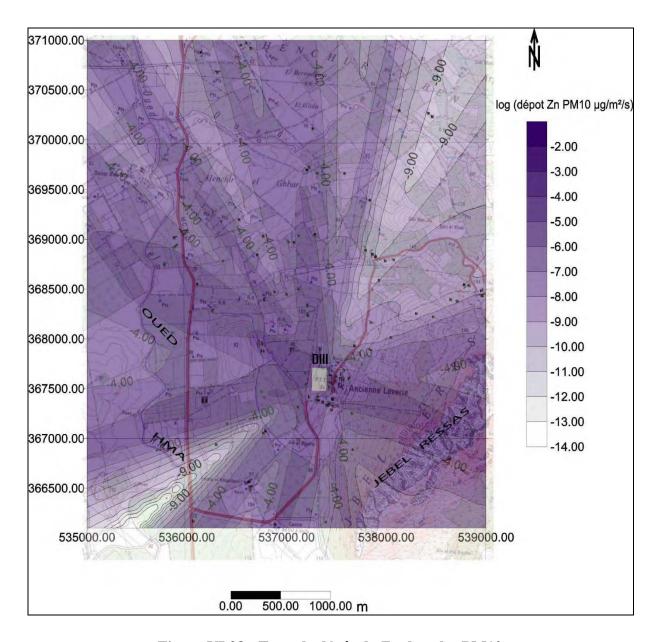


Figure VI.38 : Taux de dépôt de Zn dans les PM10

Le terril DIII est la source de contamination assimilée à un rectangle représenté en gris. Les lieux d'habitations et les fermes sont représentés par les points noirs. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage. Les résultats sont donné en logarithme des taux de dépôt.

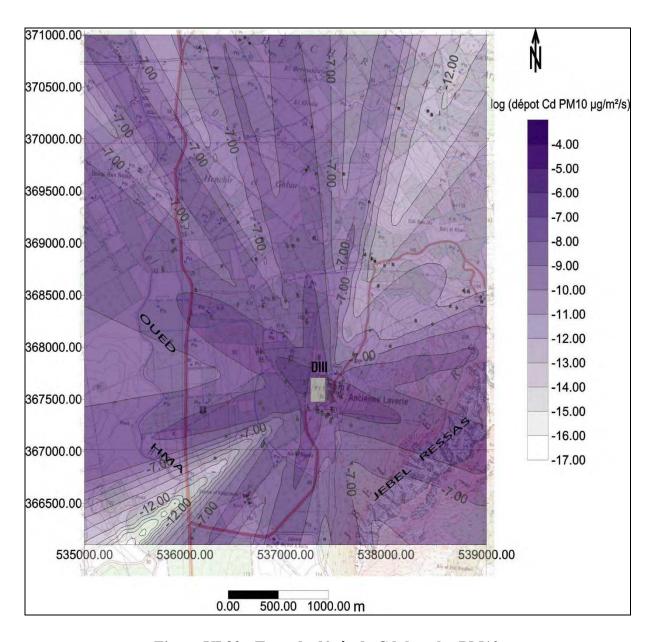


Figure VI.39 : Taux de dépôt de Cd dans les PM10

Le terril DIII est la source de contamination assimilée à un rectangle représenté en gris. Les lieux d'habitations et les fermes sont représentés par les points noirs. Les coordonnées à l'extérieur de la carte sont les amorces du quadrillage kilométrique Lambert Carthage. Les résultats sont donné en logarithme des taux de dépôt.

#### VI. Conclusion

Au terme de ce chapitre, nous sommes arrivés à estimer des concentrations de Pb et Cd dans l'air en fonction de la direction des vents efficaces générant l'émission de particules depuis les terrils de déchets du terril DIII. Ces résultats nous ont permis de dresser les cartes de l'aléa de contamination métallique présentant des les zones où les concentrations de métaux dans l'air sont supérieures aux valeurs guides pour la qualité de l'air.

Sachant que la concentration dans l'air et le taux de dépôt sont proportionnels, la spatialisation de leurs résultats, obtenus avec le modèle FDM, montre une migration privilégiée de la contamination vers les terrains agricoles et les fermes au nord ouest du terril source pendant la période de mesure (un mois pendant l'été de 2009). Les directions secondaires de dispersion de la contamination sont le SW et l'E en particulier le village de Jebel Ressas.

A l'amont du calcul avec FDM et de la spatialisation, le flux d'émission de PM2,5 et de PM10 a été calculé avec un modèle spécifique en se basant notamment sur la rugosité de la surface, sa granulométrie et sur la vitesse du vent.

Le flux d'émission de poussière par la saltation est généré à partir de 10 m/s de vitesse de vent. Les flux de PM10 et de PM2,5 à cette vitesse sont respectivement de 4,25 10<sup>-6</sup> g/m²/s et de 2,45 10<sup>-5</sup> g/m²/s. Les flux maximaux sont obtenus pour des vitesses extrêmes et peu fréquentes du vent (22 m/s), elles atteignent respectivement 2,49 10<sup>-1</sup> et 1,69 10<sup>-1</sup> g/m²/s. Ces valeurs sont comparables à celles de Chane Kon et al (2007) qui ont calculé des valeurs d'émission qui atteignent 3,5 10<sup>-3</sup> g/m²/s au sommet plat d'un terril de déchets miniers de la mine de Mantos Blancos au Chili et où la vitesse maximale de vent pendant la période de mesure été de 13 m/s. Mais ces flux d'émission sont largement inférieurs aux valeurs de Neumann et al (2009) qui mesurent un intervalle entre 1 et 4 g/m²/s de PM10 avec des simulations en tunnel d'émission à partir de déchets miniers.

Ainsi, la comparaison avec les rares valeurs existantes dans la littérature pour l'émission à partir de déchets miniers ne permet pas de dégager de généralisation en particulier en raison de la diversité des paramètres qui influencent l'émission d'un site à l'autre.

Ensuite, les concentrations et le taux de dépôt moyen journaliers ont été calculés avec FDM. Les concentrations maximales de Pb, Zn et Cd dans les PM10 atteignent, respectivement, 5,74 μg/m³, 19,8 μg/m³, 7,68 10<sup>-2</sup> μg/m³. Dans les PM2,5 ces concentrations atteignent, respectivement, 3,19 μg/m³, 11,0 μg/m³, 4,26 10<sup>-2</sup> μg/m³ au niveau des fermes dans la direction NW du terril DIII. Au niveau du village, ces concentrations atteignent 0,46 μg/m³ de Pb, 1,59 μg/m³ de Zn et 6,16 10<sup>-3</sup> μg/m³ de Cd, les teneurs moyennes dans le village pendant cette période étant, respectivement de 0,21, 0,71 et 2,77 10<sup>-3</sup>μg/m³. Par rapport aux normes de sécurité, seul Cd dépasse localement sa norme qui est de 5ng/m³ dans le village. Dans les terrains agricoles et les fermes, Pb et Cd dépassent les normes de concentration dans l'air jusqu'à une distance de 800 m au NW du terril DIII

Le taux de dépôt sec des PM10 calculé sur l'ensemble du site est compris entre 1,32  $10^{-13}$  et 0,787  $\mu g/m^2/s$ .

En l'absence de valeurs mesurées in situ pour le taux de dépôt, seules les concentrations de Pb, Zn et Cd dans l'air ont été comparées aux résultats obtenus sur le terrain dans un point de mesure au village de Jebel Ressas. Cette comparaison a révélé une assez bonne représentation des deux modèles de la réalité sur le terrain notamment des concentrations des PM10. Les points de divergence entre les résultats mesurés et analysé résulte de deux principaux facteurs :

- le changement de la direction du vent efficace dans une période infra-journalière, d'où la nécessité de prendre en compte des valeurs de rugosité  $z_0$  différente de celle que nous avons adopté pour la modélisation pour la direction du vent efficace.
- la multiplicité des sources de contamination notamment pour les PM2,5 pour lesquels l'influence de sources autres que le terril DIII a été montrée.

### **CHAPITRE VII:**

# EXPOSITION DE LA POPULATION A LA CONTAMINATION METALLIQUE ET EVALUATION DU RISQUE

## Chapitre VII : Exposition de la population à la contamination métallique et évaluation du risque

#### I. Introduction

L'évaluation du risque pour la santé humaine est définie comme un outil pour établir les conséquences du contact avec les contaminants et comme base pour développer les mesures de gestion des risques (Crawford-Brown, 1999 ; USEPA, 1999).

En France l'INSERM (1999) recommande le screening des enfants dans les environnements à risque comme les zones industrielles. Pour l'investigation de la contamination avec Pb, le screening met en œuvre des prélèvements et des analyses de sang. Vue la difficulté de mise en œuvre cette procédure, l'institut de surveillance sanitaire recommande à l'amont une évaluation de l'exposition (Glorennec, 2006)

L'évaluation de l'exposition nécessite l'identification de la population cible, des voies par lesquels elle est exposée, des concentrations des contaminants et des doses incorporées, de la fréquence et de la durée de l'exposition (Lee, 2005). Un autre paramètre important pour l'évaluation de l'exposition est la bioaccessibilité qui représente la fraction du contaminant susceptible de passer dans le sang (Figure VII.1) (Carrizales, 2006).

Le risque pour la santé est défini comme le rapport de la valeur de l'exposition et la valeur de référence pour un élément contaminant donné.

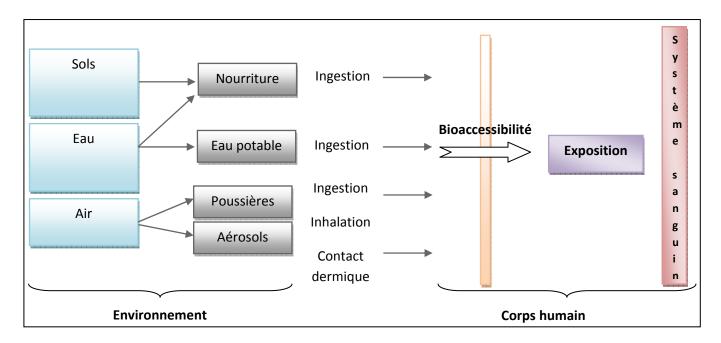


Figure VII.1 : Schéma du transfert de la contamination entre l'environnement et le corps humain

Sur le site de Jebel Ressas, les déchets fortement concentrés en Pb, Zn et Cd sont adjacents au village. Aussi, la nature du climat favorise le transport éolien des particules contaminées. Ainsi, nous nous baserons sur ces deux arguments pour concentrer le calcul du risque sanitaire suite aux deux voies d'exposition ingestion directe et inhalation de poussières L'exposition liée à l'ingestion par la voie alimentaire ne sera pas traitée dans ce travail. Par ailleurs, il a été déjà démontré que l'exposition aux métaux se fait principalement a travers les poumons et l'appareil digestif. La voie cutanée est considérée négligeable (ICPS, 1995; Zhuang et al., 2009).

Pour évaluer l'exposition des populations il est nécessaire de :

- 1) de connaître les concentrations métalliques dans les particules atmosphériques et dans les poussières déposées dans le village impactée par l'ancienne activité minière,
- 2) d'étudier la quantité de métal qui est susceptible d'être libérée dans les fluides pulmonaires et digestifs et être transférée dans la circulation sanguine. Bioaccessibilité,
- 3) d'estimer des taux réalistes d'exposition des populations et de calculer le niveau de risque.

Notre approche de la bioaccessibilité se base sur la modélisation géochimique des équilibres thermodynamiques vers lesquels les réactions minéraux-fluides physiologiques vont se dérouler spontanément.

La dissolution, dans des fluides physiologiques simplifiés, des minéraux contenus dans les poussières ingérées et inhalées est simulée par calcul. Une fraction des minéraux incorporés va être dissoute dans les fluides, la dissolution s'arrêtant lorsque l'équilibre avec une phase métallifère est atteint. Le rapport entre la quantité totale de métal incorporée et la quantité qui passe en solution donne le facteur de bioaccessibilité. La dose d'exposition brute est ensuite pondérée par le facteur de bioaccessibilité pour calculer la dose d'exposition journalière (DED) (Daily Exposure Dose). Cette valeur est rapportée aux valeurs de référence pour déterminer la valeur du risque.

Une partie de ce chapitre a fait l'objet d'un papier publié dans European Journal of Mineralogy (Ghorbel et al 2010).

#### II. Estimation de l'exposition par ingestion directe de poussières et par inhalation

#### II.1. Méthodologie

#### II.1.1. Echantillonnage des poussières déposées

Un échantillonnage a été effectué en différents points du village de Jebel Ressas pour déterminer la contamination du milieu de vie et évaluer la concentration métallique des poussières susceptibles d'être ingérées par la population du village de Jebel Ressas. Nous avons ainsi prélevé sept échantillons (Dust1, Dust2, Dust3, Dust4, Dust5, Dust6, Dust7) de masses variant entre 0,1 à 1,5 g, dans le village pendant le printemps 2009 (Figure VII.2).

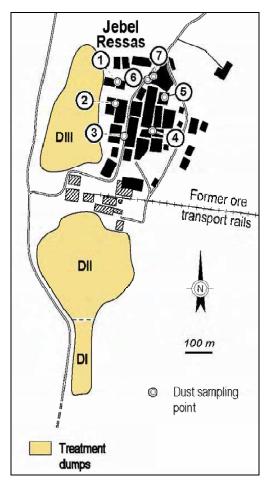


Figure VII.2: Localisation des points d'échantillonnage des poussières déposées dans le village

Les échantillons ont été collectés sur différentes surfaces telles que les rebords de fenêtre, les bancs de terrasses, les portes et les tuiles, en balayant avec des pinceaux préalablement nettoyés avec de l'eau bi-distillée tel que décrit par Akhter & Madany (1993) et Shinggu et al (2007). Les échantillons de poussières ont été conservés dans des piluliers en polyéthylène propres.

#### II.1.2. Techniques analytiques appliquées sur les échantillons de poussières

#### II.1.2.1. Granulométrie

La granulométrie des poussières a été déterminée en utilisant un granulomètre laser Coulter LS 200 pouvant mesurer une gamme de diamètre comprise entre 0,393 et 905,1 µm.

Parmi les 7 échantillons nous avons choisi les cinq échantillons pour lesquels nous disposons d'une quantité suffisante pour l'ensemble des analyses. Nous avons utilisé une quantité entre 0,5 et 1 g qui a été mise en suspension dans l'eau et désagrégées avec les ondes ultrasons.

Une moyenne de la granulométrie a été obtenue sur deux répétitions pour chaque échantillon et deux mesures pour chaque répétition.

#### II.1.2.2. L'analyse chimique

L'analyse chimique de la poussière a été réalisée avec l'ICP-MS après attaque acide totale. Le protocole utilisé est donné dans le tableau suivant :

Tableau VII.1 : Protocole de l'attaque chimique des échantillons de poussières

1	Peser 75 mg de l'échantillon
2	HNO <sub>3</sub> bi-distillée :1,5 ml à 80 °C pendant 6h
3	HF suprapur : 1 ml à 80 °C pendant 4h
4	HNO <sub>3</sub> bi-distillée : 1 ml à 80 °C pendant 4h
5	Evaporation à 75°C
6	Reprise avec HNO <sub>3</sub> bidistillé puis dilution

Un blanc d'attaque et un matériau de référence certifié de minerai de zinc (RM30) ont été traités simultanément avec les échantillons pour valider la procédure analytique.

Zn, Pb et Cd dans les échantillons ont été analysés par ICP-MS Agilent 7500 à cellule de collision. Les interférences isobariques ont été corrigées par des calculs automatiques et les interférences poly-atomiques ont été corrigées par l'opérateur.

Le blanc de chimie montre des teneurs en Zn, Pb et Cd inférieures à 9 mg.kg<sup>-1</sup>, 0,1.10<sup>-3</sup> mg.kg<sup>-1</sup> et 0,1.10<sup>-3</sup> mg.kg<sup>-1</sup> respectivement ce qui n'affecte pas la validité des analyses des échantillons (Tableau VII.2).

L'analyse du standard montre une surestimation du Zn et une sous estimation des concentrations de Cd et Pb.

Tableau VII.2: Résultats obtenus pour le standard international

	Concentration analysée (mg.kg <sup>-1</sup> )	Concentration certifiée (mg.kg <sup>-1</sup> )	Rendement
Zn	542034	491000	110
Cd	1118	1400	80
Pb	8625	12000	72

#### II.1.2. 3. Analyses au MEB

Les grains de poussière ont été analysés avec un MEB (JEOL JSM 6360 LV) couplé à un système EDS du type PGT sous vide après dépôt d'une pellicule de carbone. Les images en mode rétrodiffusés et les microanalyses ont été réalisées sous une tension d'accélération de 20 kV.

#### II.1.3. Doses inhalées et taille des particules

Seules les particules de taille suffisamment petite pour atteindre les alvéoles et y rester en contact avec le fluide pulmonaire sont susceptibles de passer en solution. C'est pourquoi nous considèrerons les PM2,5 pour les calculs dans ce chapitre.

Pour simuler un scénario extrême de l'exposition à la contamination par inhalation nous considérons la concentration moyenne de PM2,5 pendant 1 mois de la saison estivale. C'est pendant cette saison que le transport éolien particulaire est maximal. Cette valeur est de  $118\mu g/m^3$ .

La dose journalière inhalée est obtenue en multipliant cette concentration par le nombre de  $m^3$  d'air que les enfants et les adultes respirent par jour et qui sont respectivement de 12 et 16  $m^3$  (.En considérant la concentration moyenne en métaux de ces particules, les doses journalières pour les enfants et les adultes sont respectivement de 1,82 et 2,43 µg/jour de Pb, de 6,28 et 8,37 µg/jour de Zn et de 0,02 et 0,03 µg/jour de Cd.

#### II.1.4. Modélisation géochimique

La modélisation géochimique a été réalisée avec le code de calcul PHREEQC (Parkhurst & Appelo, 1999) en utilisant la base de données « llnl.dat » à laquelle nous avons ajouté l'hémimorphite comme décrit dans le chapitre IV.

En suivant l'approche de Wood et al. (2006), la modélisation géochimique a été réalisée afin de déterminer le devenir de la poussière ingérée dans le fluide gastrique puis intestinal et des aérosols inhalés dans le fluide pulmonaire. Il sera possible dés lors de calculer la quantité de métaux susceptible de passer dans le sang.

Les métaux incorporés par l'Homme entrent en contact avec les fluides physiologiques de l'organe récepteur. La spéciation solide des métaux contrôle la fraction bioaccessible de chaque métal dans ces fluides. Seule la fraction bioaccessible des contaminants est potentiellement absorbée par la paroi intestinale et alvéolaire, et transportée dans le système

sanguin et lymphatique (Figure 2). On définit le facteur de bioaccessibilité comme la fraction de la quantité totale de métaux incorporée qui restera en solution dans le fluide physiologique.

La dissolution des minéraux contenus dans la poussière ingérée est simulée dans un fluide gastrique puis dans un fluide intestinal, simplifiés à leur composition minérale.

Les conditions initiales à cette modélisation géochimique sont:

- La composition minéralogique dans les poussières déposées,
- La composition des fluides gastrique et intestinal simplifiés en tenant en compte seulement des composants inorganiques donnée par Lindahl et al. (1997) et Borel et al. (1997) (tableau VII.3).

Tableau VII.3: pH et composition chimique du fluide gastrique et intestinal

Eléments	Fluide g (Lindahl et al., 19	997 Borel et al.,	Fluide intestinal (Lindahl et al., 1997)	
	pH = 0.93 $pH = 5.0$		pH=7,1	
$K^{+}$	10	10	5,4	
Na <sup>+</sup>	10	90	142	
C1 <sup>-</sup>	160	102	126	
Ca <sup>2+</sup>	0,6	0,6	0,5	
Total C	0,02	0,02	-	

Les concentrations de Cl<sup>-</sup> et de Na<sup>+</sup> ont été ajustées pour vérifier l'équilibre électrique.

Le pH du fluide gastrique varie entre 0,93 et 5,0 suivant l'activité de l'estomac (Lindahl et al., 1997),

- Le volume total du fluide gastrique sécrété par jour est compris entre 1 et 2 L (Borel et al., 1997). Pour la modélisation, nous considérons une sécrétion de 1 L/jour pour les enfants et 2 L/jour pour les adultes. Nous considérons aussi que l'intestin secrète 0,5 L/jour chez l'enfant et 1 L/jour chez l'adulte,
- Il s'agit d'une première approche sur le contrôle de la solubilité sans aucune considération cinétique.

#### La modélisation comporte deux étapes :

- étape 1 : simulation de la dissolution des minéraux contenus dans 100mg de poussière pour les adultes et 200mg pour les enfants dans l'estomac avec 2 L de suc gastrique pour les adultes et 1 L pour les enfants.
- étape 2 : la composition du fluide obtenu à la sortie de l'estomac est utilisée pour la prédiction du devenir des métaux en solution dans l'intestin. Ici nous allons considérer le

mélange des deux fluides, la solution gastrique chargée en éléments dissouts à partir des poussières avec la solution intestinale simplifiée, en respectant leur volume et leurs compositions respectives dans le cas des adultes et des enfants.

Cette même méthode de modélisation géochimique a été appliquée pour la dissolution des aérosols dans le fluide pulmonaire.

Les conditions initiales sont:

- La composition du fluide pulmonaire simplifié utilisée pour la modélisation géochimique a été donnée par Wood et al (2006) en tenant compte seulement des composants inorganiques (tableau VII.4).
- Le volume total du fluide pulmonaire sécrété par jour est de 10 ml pour les adultes et les enfants.
- La cinétique chimique des réactions n'a pas été prise en considération

Tableau VII.4: pH et composition chimique du fluide pulmonaire

Eléments	Fluide pulmonaire (mol/l) (Wood et al., 2006)
	pH=6,80
Ca <sup>2+</sup>	0,001735
Na <sup>+</sup>	0,144845
Cl <sup>-</sup>	0,115063
$Mg^{2+}$	0,001043
HCO <sup>3-</sup>	0,03214
$HPO_4^{2-}$	0,001043
$SO_4^{2-}$	0,000556
Si <sup>4+</sup>	0,00015

#### II.2. Caractérisation des poussières ingérées

Tous les échantillons de poussières prélevés dans le village de Jebel Ressas ont un aspect similaire avec une teinte brunâtre et une texture fine. L'observation à la loupe binoculaire montre que la poussière collectée est principalement composée de phases minérales avec quelques débris de plantes sèches.

L'analyse granulométrique des poussières a montré que pour l'ensemble des échantillons la taille maximale des grains est de 80,07 µm avec une distribution monomodale et une granulométrie médiane comprise entre 19,26 et 32,24 µm (Figure VII.3). Cette granulométrie

de la poussière correspond à taille de particules ingérable par l'Homme. Dans ces poussières les particules inhalables (PM10) forment entre 15 à 33% de l'échantillon (Sloss et Smith, 2000).

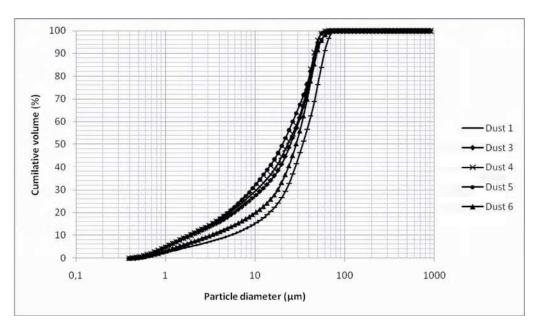


Figure VII.3 : Courbes granulométriques des échantillons de poussières

Les concentrations de métaux lourds sur les sept échantillons de poussières varient de 0,35 à 2,49 % pour Zn, de 0,16 à 1,14% pour Pb et de 14 à 109 mg.kg<sup>-1</sup> pour Cd (Tableau VII.5). Elles dépassent largement les valeurs moyennes dans les sols.

La variabilité des concentrations de métaux est élevée en raison de la dilution de la poussière contaminée par d'autres poussières non contaminées présentes sur le site d'échantillonnage.

Tableau VII.5 : Concentration de Pb, Zn et Cd dans les échantillons de poussières (Dust 1 à 7) et dans les déchets de laverie (DI à III)

échantillon	Pb (%)	Zn (%)	Cd (mg.kg <sup>-1</sup> )
DI	1,27	5,2	170
DII	0,09	2,02	110
DIII	2,30	7,11	290
Dust 1	0,34	0,84	32
Dust 2	0,38	0,75	26
Dust 3	0,56	1,40	49
Dust 4	0,40	0,83	36
Dust 5	1,14	2,49	109
Dust 6	0,16	0,35	14
Dust 7	0,23	0,61	26
Normes dans les sols (Baize, 1997)	0,01	0,03	2

Dans Figure VII.4, les concentrations de Zn dans des échantillons de poussières ainsi que dans échantillons des déchets de traitement ont été tracées en fonction des concentrations de Pb. Les points représentant les concentrations dans les poussières s'alignent sur une tendance de mélange avec le terril DIII. Une même tendance apparait lors du traçage de Cd au lieu de Zn et Pb. Ceci est consistant avec une importante émission de poussière à partir de ce terril vers le village en raison de sa localisation sous les vents d'ouest et de nord-ouest dominants à l'échelle de l'année.

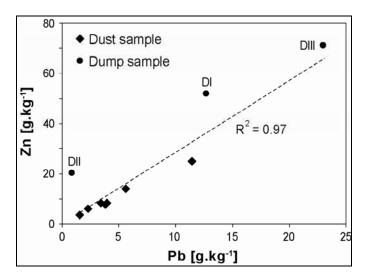


Figure VII.4: Concentrations de Pb et Zn dans les échantillons de poussières et dans les terrils de déchets.

Le point DIII est le plus cohérent avec la tendance de la courbe de corrélation entre les points représentants les poussières

Les analyses des poussières au MEB-EDS ont montré que la calcite est l'élément minéral majeur (Figure VII.5). Les aluminosilicates ont également été notée dans des proportions moindres.

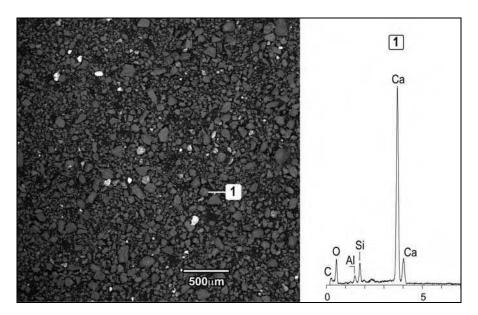


Figure VII.5 : Image en mode rétrodiffusé de l'aspect général des poussières déposées.

Le spectre EDS montre la dominance de la calcite (grains gris sombre). Les grains de teintes claires sont des porteurs de métaux.

La figure VII.6 présente les phases porteuses des métaux reconnus dans les échantillons poussières (105 particules analysées).

Les phases métallifères sont principalement des oxydes. Bien que le MEB ne permette pas une identification précise de ces minéraux, notamment en présence du carbone qui n'est pas un élément discriminant car il est rajouté sur les échantillons sous forme d'une pellicule pour permettre l'analyse. Cependant le contexte et l'origine de la poussière qui provient essentiellement du terril DIII permet de déduire que Pb et Zn sont sous la même forme minérale que dans les déchets avoisinants et lorsqu'ils sont associé à l'oxygène qu'ils soient principalement sous forme de carbonates. L'analyse par MEB-EDS a également permis de repérer des particules de silicates de Zn, d'oxy-hydroxydes de fer avec de faibles teneurs en Pb et Zn, et de rares particules de sulfate de Pb et de Zn de taille plus fine, de l'ordre de 10 µm. Aucun pic de Cd n'est apparu sur les spectres EDS, les limites de détection de l'appareil étant supérieures aux concentrations dans ces échantillons.

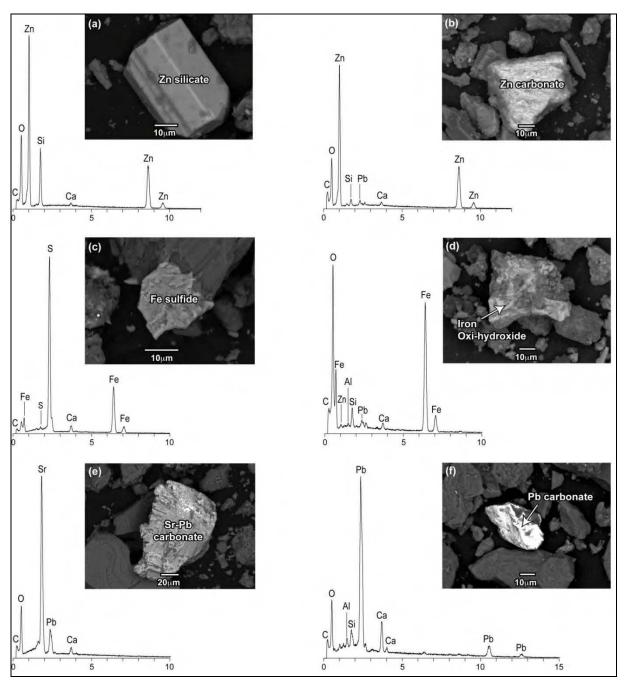


Figure VII.6 : Images en mode rétrodiffusé et spectre EDS de quelques grains porteur de métaux

## II.3. Evaluation de la bioaccessibilité dans le fluide digestif et calcul des doses d'exposition

La modélisation a été réalisée pour les échantillons de poussière dust5 et dust6, qui sont les échantillons le plus et le moins riches en métaux, respectivement. La composition minéralogique des poussières (Tableau VII.7) a été obtenue à partir de la composition chimique et d'un calcul normatif prenant en compte les phases minérales identifiées. Sachant

que la modélisation géochimique ne considère que les phases minérales pures et que Cd n'existe pas comme une phase minérale pure, mais associé aux minéraux zincifères (principalement smithsonite), sa fraction dissoute a été déduite de la fraction de Zn dissous.

Tableau VII.6 : Composition normative des échantillons de DIII et de poussières (le plus et le moins contaminé)

Mineral [mole %]	DIII	Dust 5	Dust 6
Calcite	78,0	91,1	95,8
Quartz	2,7	3,20	3,40
Cerusite	1,5	1,47	0,20
Hémimorphite	6,2	2,00	0,28
Smithsonite	6,7	0,24	0,03
Dolomite	2,2	-	-
Iron oxi- hydroxides	0,9	-	-
Baryte	0,3	-	-
Celestite	0,3	-	-

#### II.3.1. Résultats de la simulation dans le fluide gastrique

Nous avons examiné les deux valeurs extrêmes du pH (5 et 0,93) du fluide gastrique pour la modélisation dans le cas des enfants et des adultes (Ghorbel et al., 2010).

#### Cas des enfants

Dans le cas des enfants, nous avons considéré de 200 mg de poussière (US EPA, 1997) dans 1L de liquide gastrique.

Avec la valeur minimale du pH du fluide gastrique (0,93), au cours de la dissolution des poussières le pH augmente à 0,94 en raison de l'effet tampon exercé par les carbonates mais la dissolution complète de tous les minéraux contenus dans la poussière est thermodynamiquement possible car leur Log SI reste négatif (Tableau VII.7).

Tableau VII.7 : log SI des minéraux secondaires suite à la dissolution des minéraux ingéré dans le fluide gastrique dans le cas des enfants

Mineral		H = 0.93 H = 0.94	Initial pH = 5 Final pH = 5,6		
	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	
Calcite	-10,79	-10,78	-1,47	-1,45	
Quartz	-0,05	-0,12	-0,05	-0,12	
Smithsonite	-10,96	-11,82	-1,64	-2,48	
Hémimorphite	-42,51	-46,07	-4,73	-8,23	
Hydrozincite	-60,12	-64,39	-13,13	-17,33	
Cérusite	-8,87	-9,75	0,00	-0,32	

Etant donné que tous les minéraux contenus dans 200 mg de la poussière se dissolvent dans 1 L de liquide gastrique, les quantités de Pb et Zn libérées correspondent aux quantités totales ingérées par un enfant par jour (tableau VII.8). Il en est de même pour le Cd contenu dans les minéraux de Zn qui est entièrement libéré en solution.

Dans le scénario ou le pH du fluide gastrique est de 5,00, la totalité des minéraux se dissolvent dans l'échantillon de poussière le moins concentré en métaux (dust 6). Pour l'échantillon dust 5 tous les minéraux se dissolvent complètement, sauf la cérusite qui atteint l'équilibre avec la solution. Dans ce cas, l'équilibre avec le liquide gastrique est atteint après la dissolution de 3,08 µmole la cérusite. En conséquence une quantité molaire équivalente de Pb est libérée en solution, soit 0,63 mg.jour<sup>-1</sup>.

Il est à noter que, pendant la journée, le pH du fluide gastrique étant variable entre les deux valeurs extrêmes utilisées pour le calcul, la quantité de Pb libérée se situe entre les valeurs calculées à ces deux conditions de pH extrêmes pour cet échantillon.

Tableau VII.8 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide gastrique et facteurs de bioaccessibilité calculés dans le cas des enfants

		ées par un enfant jour <sup>-1</sup> )	Quantités dissoutes (mg.jour	
	Dust 5 Dust 6		Dust 5	Dust 6
Pb	2,28 0,32		$0.63^{(*)}$ to $2.28^{(**)}$	0,32
Zn	4,95 0,70		4,95	0,70
Cd	$\begin{array}{ccc} 4,95 & 0,70 \\ 2,18 \times 10^{-5} & 0,28 \times 10^{-5} \end{array}$		4,95 2,18 x10 <sup>-5</sup>	$0.70$ $0.28 \times 10^{-5}$

#### Cas des adultes

Dans le cas d'un adulte, l'apport de poussières est de 100 mg et nous considérons 2 L de liquide gastrique par jour menant à un apport 4 fois inférieur à celui des enfants. Dans ce cas, que ce soit avec le scénario à pH 0,93 ou le scénario à pH 5,00 et même pour l'échantillon le plus concentré, la totalité des minéraux se dissout et tout leur contenu en Pb, Zn et Cd est libéré dans le fluide gastrique.

#### II.3.2. Résultats de la simulation dans le fluide intestinal

La solution gastrique chargée en métaux dissouts, arrive dans l'intestin où le pH du fluide intestinal est basique (7,1). La modélisation géochimique montre qu'après mélange des solutions gastrique et intestinale les pH passent à 6,97 et 6,98 respectivement pour le cas de dust 5 et dust 6.

Le calcul des indices de saturation (Tableau VII.9) montre que l'hydrozincite, la smithsonite et le quartz restent sous saturés tandis que la calcite, l'hémimorphite et la cérusite atteignent l'équilibre thermodynamique avec la solution. Ces deux derniers minéraux contrôlent donc les concentrations en solution de Zn et Pb respectivement.

Tableau VII.9 : Indice de saturation des minéraux secondaires dans le fluide intestinal chez les enfants

	Dust 5	Dust 6
	pH initial=7,1	pH initial=7,1
	pH final=6,97	pH final=6,98
log SI calcite	0,00	0,00
log SI cérusite	0,00	0,00
log SI hydrozincite	-8,36	-8,50
log SI smithsonite	-1,26	-1,29
log SI hémimorphite	0,00	0,00
log SI quartz	-0,37	-0,32

Les quantités de métaux dissouts dans le fluide intestinal ainsi que les valeurs du facteur de bioaccessibilité pour le cas des enfants et des adultes sont calculé (Tableaux VII.10 et VII.11). Une nette diminution des concentrations des métaux en solution dans le fluide intestinal par rapport à celles dans le fluide gastrique apparait. Ceci est lié au pH neutre du fluide intestinal qui induit la précipitation de la cérusite et de l'hémimorphite.

Les facteurs de bioaccessibilité sont alors faibles et compris entre 1,7% et12,1% pour Pb et entre 5,1% et 33,8% pour Zn et Cd.

Pour le cas des adultes (tableau VII.11) les concentrations des métaux en solution sont très proches de celles chez les enfants du fait que la cérusite et l'hémimorphite contrôlent Pb et Zn

en solution. Autrement dit mêmes avec des poussières plus riches en minéraux plombifères et zincifères les concentrations seront limitées à celles que nous donnons sur ce tableau.

Tableau VII.10 : Quantités de métaux dissoutes dans le fluide intestinal et facteurs de bioaccessibilité calculés dans le cas des enfants

	Quantité ingérée dans 200 mg de poussière (mg.jour <sup>-1</sup> )		Quantité dissoute de 200 mg de poussière dans le fluide gastrique (mg.jour-1)		Quantité dissoute de 200 mg de poussière dans le fluide intestinal (mg.jour <sup>-1</sup> )		Facteur de bioaccessibilité pour les enfants en %	
	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6
Pb	2,28	0,32	2,28	0,32	0,039	0,039	1,7	12,1
Zn	4,95	0,70	4,95	0,70	0,257	0,237	5,1	33,8
Cd	2,18 x10 <sup>-5</sup>	0,28 x 10 <sup>-5</sup>	2,18 x10 <sup>-5</sup>	0,28 x 10 <sup>-5</sup>	0,11 x10 <sup>-5</sup>	0,09 x 10 <sup>-5</sup>	5,1	33,8

Tableau VII.11: Quantités de métaux dissoutes dans le fluide intestinal et facteurs de bioaccessibilité calculés dans le cas des adultes

	Quantité ingérée dans 100 mg de poussière		Quantité dissoute de 100 mg de poussière dans le fluide gastrique		Quantité dissoute				
					de 100 mg o	de 100 mg de poussière		Facteur de bioaccessibilité pour	
					dans le fluide intestinal		les adultes		
			(mg.jour <sup>-1</sup> ) (r		(mg.j	(mg.jour <sup>-1</sup> )			
	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6	
Pb	1,14	0,16	1,14	0,16	0,037	0,037	3,2	23,1	
Zn	2,475	0,35	2,475	0,35	0,221	0,207	8,9	59,1	
Cd	1,09 x10 <sup>-5</sup>	0,14 x 10 <sup>-5</sup>	1,09 x10 <sup>-5</sup>	0,14 x 10 <sup>-5</sup>	0,10 x 10-5	0,08 x 10-5	8,9	59,1	

#### II.3.3. Doses d'exposition estimées

Sur la base d'enquêtes menées dans le contexte Nord-Américain (Binder et al., 1986;. Calabrese et al., 1989; Davis et al., 1990;. Stanek & Calabrese, 1995), l'US EPA (1997) a proposé le calcul de la dose d'incorporation journalière (Daily Intake Dose : DID) d'un contaminant par ingestion directe avec les équations suivante, exprimée en [mg/kg/jour]:

où C est la concentration en contaminant dans le produit incorporé [mg/kg ou mg/m³],

IR, le taux d'incorporation (ingestion ou inhalation) [kg/jour],

EF fréquence de l'exposition [jours/an],

ED la durée d'exposition [année],

BW du poids corporel [kg],

AT est le temps moyen d'exposition [jours].

Dans notre cas d'étude, nous considérons que les habitants du village de Jebel Ressas y habitent toute l'année et qu'ils sont exposés quotidiennement à la contamination.

L'expression ci-dessus devient alors :

$$DID = C \times \frac{IR}{BW}$$

Après Carrizales et al. (2006) un facteur bioaccessibilité doit être appliqué à la dose ingérée pour obtenir la dose d'exposition (DED):

Les calculs ont été effectués pour le DED avec l'échantillon de poussières le plus contaminé et le moins contaminé. On envisage un poids corporel de 15 kg et 70 kg pour les enfants et les adultes, respectivement (tableau VII.12).

Tableau VII.12: Doses d'exposition dans le cas des enfants et des adultes suite à l'ingestion directe de poussières contaminées

Element	<b>DED</b> (mg.kg <sup>-1</sup> .d <sup>-1</sup> )					
	Enfants	s (15kg)	Adultes (70kg)			
	Dust 5	Dust 6	Dust 5	Dust 6		
Pb	2,62E-03	2,60E-03	5,33E-04	5,29E-04		
Zn	1,72E-02	1,58E-02	3,18E-03	2,96E-03		
Cd	7,55E-05	6,32E-05	1,39E-05	1,18E-05		

# II.4. Evaluation de la bioaccessibilité dans le fluide pulmonaire et calcul des doses d'exposition

La modélisation géochimique de la mise en solution de 1416 et 1888 µg de PM2,5 dans 10ml de fluide pulmonaire montre que le pH diminue très légèrement de 6,80 à 6,77 et que les carbonate de zinc, hydrozincite et smithsonite, sont sous-saturés tandis que la calcite, la

cérusite, l'hémimorphite et le quartz sont à l'équilibre et contrôlent la concentration des métaux en solution (Tableau VII.13).

Tableau VII.13: Indices de saturation des minéraux secondaire dans le fluide pulmonaire suite à la dissolution des PM2,5 dans le fluide pulmonaire

	enfants	adultes
pH initial	6.8	6.8
pH final	6,77	6,77
log SI calcite	0	0
log SI cérusite	0	0
log SI hydrozincite	-8,26	-8,26
log SI smithsonite	-0,93	-0,93
log SI hemimorphite	0	0
log SI quartz	0	0

La quantité de métaux dissoute à partir de quantité initialement inhalée ainsi que les facteurs de bioaccessibilité sont données dans le tableau VII.14. Les doses d'exposition sont données dans le tableau VII.15.

Les adultes inhalent plus de métaux que les enfants proportionnellement au volume d'air qu'ils respirent, toutefois les quantités de métaux dissoutes dans le fluide pulmonaire des enfants et des adultes sont égales dans les deux cas car leur solubilité est limitée par la minéralogie des aérosols. Ils ne sont que partiellement bioaccessibles en rapport avec les quantités initiales.

Tableau VII.14: Quantités de métaux dissoutes dans le fluide pulmonaire et facteurs de bioaccessibilité

	Quantité inhalée μg/jour		Quantités dissoute (µg/jour)		Facteur de bioaccessibilité (%)		
	Enfant	Adulte	Enfant	Adulte	Enfant	Adulte	
Pb	1,82	2,43	0,4	0,4	22	16	
Zn	6,28	8,37	5,48	5,46	87	65	
Cd	0,02	0,03	0,02	0,02	87	65	

Tableau VII.15 : Doses d'exposition dans le cas des enfants et des adultes suite à l'inhalation d'aérosols contaminés

Elément	<b>DED</b> (mg.kg <sup>-1</sup> .j <sup>-1</sup> )			
Liement	Enfants (15kg)	Adultes (70kg)		
Pb	2,67E-05	5,71E-06		
Zn	3,65E-04	7,80E-05		
Cd	1,40E-06	2,98E-07		

La dose d'exposition totale sera la somme des doses calculées pour les deux voies d'expositions : ingestion directe de poussières et inhalation.

#### III. Evaluation du risque de contamination métallique pour la santé humaine

Les valeurs du DED sont comparées aux recommandations de l'Organisation mondial (OMS) qui sont appliquées en Tunisie. Pour Cd et Zn la dose de référence (RfD) de l'OMS est la même que la dernière recommandation de l'USEPA (2005d) (tableau VII.16). Cependant, pour Pb, une révision de normes de l'USEPA en 2005, a conduit à considérer que cet élément est une substance toxique sans seuil (toute concentration de plomb présenterait des effets néfastes aussi il n'est pas approprié d'indiquer un seuil de référence) mais selon l'OMS, le RfD pour Pb est de 3,5.10<sup>-3</sup> mg.kg<sup>-1</sup>.j<sup>-1</sup> (OMS, 2006).

Tableau VII.16: Doses d'exposition totales et valeur du risque.

	DED totales (mg.kg-1.j-1)				V	Valeur du risque			
Elément	Enfants (15kg)		Adultes (70kg)		<i>RfD</i> (mg.kg <sup>-1</sup> .j <sup>-1</sup> )	Enfants (15kg)		Adultes (70kg)	
	max	min	max	min		max	min	max	min
Pb	2,65 . 10-03	2,63 . 10-03	5,39 . 10-04	5,34 . 10-04	3,50 . 10 <sup>-03</sup> (OMS, 2006)	0,76	0,75	0,15	0,15
Zn	1,76 . 10-02	1,62 . 10-02	3,25 . 10-03	3,04 . 10-03	3,00 . 10 <sup>-01</sup> (USEPA, 2005d)	0,06	0,05	0,01	0,01
Cd	7,69 . 10-05	6,46 . 10-05	1,42 . 10-05	1,21 . 10-05	1,00 . 10 <sup>-03</sup> (OMS 2006), (USEPA, 2005d)	0,08	0,06	0,01	0,01

La valeur du risque pour la santé humaine est donnée par le quotient de DED et RfD. Le risque est constaté lorsque sa valeur est supérieure ou égale à 1. Sur le tableau nous pouvons constater qu'aucun métal ne pose de risque pour la santé humaine suite à l'inhalation et l'ingestion de poussière contaminée étant donné que toutes les valeurs sont inférieures à 1.

Nous remarquons cependant que les valeurs du risque sont plus élevées de 5 à 7 fois chez les enfants par rapport aux adultes. Le risque le plus élevé est noté pour Pb (0,76) et bien qu'inférieure à 1, cette valeur est en prendre en considération car elle ne prend en compte que deux voies d'exposition. L'ingestion des métaux par la voie alimentaire est un important vecteur de contamination auquel doit s'ajouter la voie dermique si on veut arriver a une estimation exhaustive du risque.

D'autre part, les éléments ayant des effets néfastes sur les mêmes organes présentent des risques cumulables tels que Pb et Cd qui provoquent des pathologies variées des reins, des os

et du système nerveux. Le risque global induit par ces deux élément atteint alors 0,85 chez les enfants.

D'autre part, Pb et Cd sont connus aussi comme étant des éléments cancérigènes à effet sans seuil c'est-à-dire qu'ils sont considéré toxique quelque soit leurs doses. Pour ce type d'éléments l'USEPA propose

#### Conclusion générale

Depuis l'antiquité, l'exploitation des ressources métalliques a accompagné le développement des pays du Maghreb et en particulier de la Tunisie. Avec la révolution industrielle et l'évolution des techniques de prospection (fin XIX<sup>ème</sup> - XX<sup>ème</sup> siècle), les sites d'extraction se sont multipliés ainsi que les activités annexes telles que les laveries et les fonderies. L'épuisement des réserves a conduit à la fermeture de la quasi-totalité des sites qui sont généralement abondonnés sans aménagement et soumis aux aléas climatiques spécifiques au bassin méditerranéen.

Les déchets miniers constituent actuellement un problème environnemental majeur en raison de la présence de fortes concentrations en métaux toxiques (Pb, Cd...). De grandes quantités de stériles, minerais sans valeur marchande, et de résidus miniers issus des opérations de traitement du minerai (minéralurgie et métallurgie) ont été accumulés et le sont encore dans des aires souvent impropres à leur stockage ce qui pose un sérieux danger de contamination métallique menaçant aussi bien l'environnement que l'être humain.

L'ancien site minier de Jebel Ressas, représentatif des sites miniers du nord de la Tunisie, a été choisi comme un site pilote pour mettre en œuvre une approche prédictive intégrée, qui étudie la dynamique des métaux, issus des déchets de laverie, dans l'environnement et la possibilité de l'atteinte de l'homme par la contamination. La prédiction a été basée sur la modélisation des quantités de métaux transférés vers l'eau, les sols et l'air.

D'abord la source de contamination représentée par les déchets de laverie a été finement caractérisée pour sa composition chimique et minéralogique. Ensuite, les mécanismes de transfert hydrique en solution, hydrique particulaire et éolien ont été analysés. Une importance particulière a été dédiée au transfert éolien qui est favorisé sous le climat semi-aride de la région et qui a très peu été traité dans les environnements miniers, les travaux scientifiques étant majoritairement consacrés aux drainages miniers. L'extension de la dispersion de la contamination a été représentée sous formes de cartes d'aléa qui permettent de mettre en évidence les zones potentiellement les plus contaminées et le degré de contamination en fonction de la distance à la source. Ce type de présentation rend les résultats plus accessibles et exploitables.

Enfin nous avons étudié l'exposition de la population habitant au village de Jebel Ressas suite à l'inhalation et l'ingestion de poussières contaminées, afin de prédire le risque sanitaire.

Pour répondre aux différents objectifs nous avons adopté une démarche pluridisciplinaire qui fait appel au travail de terrain (observations, mesures et échantillonnage), à des analyses minéralogiques et géochimiques en laboratoire, à la modélisation géochimique, à la modélisation de l'érosion éolienne et à la cartographie numérique.

#### Synthèse des résultats

#### Caractérisation de la source de contamination

La principale source de contamination du site minier de Jebel Ressas est constituée par déchets de laverie. Ils sont entreposés en trois terrils alignés (DI, DII et DIII) faisant entre 56 000 et 310 000 m<sup>3</sup>. Ils sont situés entre le village de Jebel Ressas et des terrains agricoles, le terril DIII étant celui qui est le plus proche du village. Les photos aériennes de 1947 et de 1963 montrent que DI été le premier terril déposé suivi par DII et DIII.

La granulométrie des déchets est siltoargileuse, les mesures de cohésions et de perméabilité montrent que le terril DIII est le plus fragile face à l'érosion contrairement au terril DI qui, plus ancien, est plus consolidé.

Les concentrations moyennes de Pb, Zn et Cd sont respectivement de 1,22, 4,77 et 0,019%. Ces métaux sont principalement liés a des phases carbonatées (cérusite, smithsonite et hydrozincite), silicatées (hémimorphite et willémite) et aussi, dans le terril DII, sulfurées (galène et sphalérite). Le cadmium est inclus en trace dans les phases zincifères aussi bien dans les carbonates, les silicates que la sphalérite où il peut atteindre 0,98%. La calcite est le principal minéral de gangue.

#### Modélisation du transfert de la contamination en solution

Nous avons simulé des eaux de drainages issus des eaux de pluies dans lesquelles réagissent les minéraux des déchets. Trois scenarios ont été discutés. Le premier concerne la dissolution des déchets DI et DIII caractérisés par la dominance de minéraux oxydés. Le deuxième concerne la dissolution des sulfures du terril DII dans une eau en équilibre avec la calcite et le troisième scénario reprend le deuxième mais en augmentant progressivement la salinité des eaux afin de distinguer le devenir des métaux si les solutions rencontre une eau salée ou des affleurements évaporitiques.

Les eaux de drainages présentent un pH basique entre 8,97 et 10,41 qui favorisent, dans ce contexte carbonaté, la fixation des métaux par la précipitation de minéraux stables en conditions oxydantes (cérusite, hydrozincite, smithsonite et hémimorphite).

L'équilibre avec les phases secondaires génèrent des drainages miniers faiblement concentrés en métaux.

Les concentrations en Pb sont contrôlées par les carbonates de Pb entre 9 et 161 suivant la nature des déchets (oxydé ou sulfuré).

Les concentrations en Zn sont contrôlées par l'hémimorphite entre 0,03 et  $1 \mu g/l$ . Les concentrations en Cd dans les solutions en équilibre avec les phases zincifères, estimé en fonction du rapport Cd/Zn dans les déchets, sont limitées à  $0,005 \mu g/l$  et  $1,3 \mu g/l$  pour un déchet oxydé et sulfuré respectivement.

La salinité des eaux de drainage n'induit pas une augmentation importante de la solubilité des métaux (facteur 2 maximum).

Ces eaux de drainage déjà peu contaminées, avoisinant les normes de potabilité, seront ensuite diluées à la rencontre du réseau hydrographique. Par conséquent, l'altération chimique de ces déchets ne pose pas de risque de contamination des eaux et des sols par Pb, Zn et Cd.

#### Modélisation du transfert hydrique particulaire de la contamination

Le transfert hydrique particulaire a été modélisé avec un modèle numérique de terrain de résolution 3m à partir duquel ont été extrait la carte du réseau de ruissellement depuis les déchets et la carte de zones basses connectée au réseau de ruissellement. L'activité anthropique a été représentée par une carte numérique des chemins et séparations entre les parcelles. Cette modélisation a montré l'absence de transport particulaire de la contamination depuis les déchets vers l'oued Hma. De plus elle a mis en évidence une seule zone d'accumulation des déchets érodés faisant environs 1,5 Ha et situé dans un champ d'oliviers à 100 m à l'ouest du terril source (DIII). Les analyses chimiques des sols de cette dépression confirment bien cette zone d'accumulation et son extension. Les concentrations maximales sont situées au centre de la zone et les plus faibles sur les bordures. Elles varient entre 1,12 et 4,44% de Zn, 0,454 et 1,780% de Pb et 47 et 200 ppm de Cd.

#### Modélisation du transfert éolien de la contamination

Cette étude a permis d'évaluer la sensibilité des déchets miniers de Jebel Ressas à l'érosion éolienne puis de déterminer les zones d'habitation et les zones agricoles impactées par les déchets miniers. Le transfert de la contamination par le vent a été étudié en période estivale pendant laquelle l'érosion éolienne est la plus efficace.

Un modèle d'émission couplé à un modèle de transfert (FDM) a été utilisé pour calculer les concentrations dans l'air des PM10 et des PM2,5 ainsi que leur taux de dépôt sec sur une

grille de points récepteurs autour de la source (terril DIII), et correspondant à une zone de 19,5 km² de surface. Parmi les points récepteurs, les zones d'habitations ont été sélectionnées, soit le village de Jebel Ressas et les fermes avoisinant les déchets. Egalement des points récepteurs au niveau des terrains agricoles ont été définis. Cette modélisation a été réalisée en utilisant les données météorologiques mesurées in situ.

L'étude de l'émission a permis de montrer que le flux d'émission de poussière par la saltation est généré a partir de la vitesse de 10 m/s.

Pendant la période considérée, les vitesses supérieures ou égales à 10 m/s sont plus fréquentes pour les directions de vent S et SE. Nous avons ainsi mesuré sur le terrain la valeur de la rugosité de la surface des déchets miniers exposés au vent,  $z_0$ =260  $\mu$ m, spécifique pour ces directions. Les taux d'émission des PM10 et des PM2,5 atteignent des valeurs élevées respectivement 2,49  $10^{-1}$  et 1,69  $10^{-1}$  g/m²/s, montrant que l'érosion éolienne est un mécanisme important de la dispersion de la contamination.

#### Aérosols au niveau des habitations

Dans ce travail la fraction pouvant atteindre les alvéoles pulmonaires est représentée par les PM2,5. Les concentrations maximales de Pb, Zn et Cd dans cette fraction atteignent, respectivement, 3,19 μg/m³, 11,0 μg/m³, 4,26 10<sup>-2</sup> μg/m³ au niveau des fermes dans la direction NW du terril DIII. Au niveau du village, ces concentrations atteignent 0,46 μg/m³ de Pb, 1,59 μg/m³ de Zn et 6,16 10<sup>-3</sup> μg/m³ de Cd, les teneurs moyennes dans le village pendant cette période étant, respectivement de 0,21, 0,71 et 2,77 10<sup>-3</sup>μg/m³. Par rapport aux normes de sécurité, seul Cd dépasse localement sa norme qui est de 5ng/m³ dans le village. Dans les terrains agricoles et les fermes, Pb et Cd dépassent les normes de concentration dans l'air jusqu'à une distance de 800 m au NW loin du terril DIII

#### Particules déposées au niveau des habitations et au niveau des terrains agricoles

Les particules de déchets sont transportées dans différentes directions, mais principalement NW vers les terrains agricoles et les fermes. Les concentrations maximales de Pb, Zn et Cd dans les PM10 atteignent, respectivement,  $5,74~\mu g/m^3$ ,  $19,8~\mu g/m^3$ ,  $7,68~10^{-2}~\mu g/m^3$  avec des taux de dépôt compris entre  $1,32~10^{-13}$  et  $0,787~\mu g/m^2/s$ .

Les cartes de répartition spatiales des concentrations de métaux dans l'air et des taux de dépôt de particules provenant du terril permettent de visualiser la migration de la contamination avec le vent dans différentes directions. Toutefois, pour la saison estivale cette migration est privilégiée vers les terrains agricoles et les fermes au nord ouest du terril.

Par ailleurs, pour améliorer la qualité de la modélisation, il sera nécessaire de réaliser un calage des modèles d'émission, de transport et de dépôt en réalisant :

- des mesures du flux d'émission sur le terrain pour mieux tester les paramètres déterminants
- des prélèvements d'aérosols sur l'année pour avoir des concentrations plus réalistes et une meilleure qualité pour le calcul de l'exposition humaine à la contamination
- une confrontation des taux de dépôt calculés à des mesures sur le terrain en installant des pièges passifs pour les poussières déposées. Une difficulté qu'il faudra surmonter sera de mettre au point un dispositif permettant des prélèvements avec un pas de temps assez court pour ajuster avec la modélisation mais aussi pour récupérer assez de matière pour optimiser la précision des mesures.

#### **Exposition des populations**

Pour prédire le risque pour la santé humaine, nous avons pris en compte les deux voies d'exposition liées à la contamination de l'air et des poussières déposées: l'inhalation et l'ingestion directe de poussières déposées de dans le village. L'exposition par les voies cutanées et alimentaires n'ont pas été traité dans ce travail, car dans le contexte du village de Jebel Ressas, ces voies sont probablement mineures par rapport à l'inhalation et l'ingestion de poussières.

La méthode d'évaluation de l'exposition se base sur l'estimation des quantités brutes de métaux inhalés et ingérés, calculées à partir des concentrations mesurées dans les aérosols et les poussières déposées. Ces valeurs brutes sont pondérées par un facteur de bioaccessibilité pour obtenir des valeurs plus réalistes d'exposition en fonction de la spéciation solide des métaux et de la solubilité des phases minérales métallifères dans les fluides physiologiques. L'estimation du facteur de bioaccessibilité est basé sur la modélisation géochimique des réactions de dissolution des minéraux contenus dans les aérosols et les poussières qui pénètrent dans le corps et réagissent avec le fluide pulmonaire et les fluides digestifs. Ces fluides sont simplifiés à leurs compositions minérales et aucun composant organique n'est pris en compte.

Le rapport des quantités brutes de Pb, Zn et Cd incorporées et celles qui passent en solution représente la bioaccessibilité de ces métaux c'est-à-dire la fraction susceptible de pouvoir passer dans le système sanguin et les organes.

La quantité de métaux passant effectivement dans le système sanguin dépend des mécanismes physiologiques qui ne sont pas abordés dans ce travail.

La valeur du risque correspond au rapport de la valeur de l'exposition déterminée et la valeur de référence pour chacun des métaux. Le risque est possible à partir d'une valeur égale à 1.

Chez les adultes les valeurs du risque obtenues pour Pb, Zn et Cd sont très faibles et comprises entre 0,01 et 0,15.

Chez les enfants les valeurs du risque obtenues en cumulant l'exposition par inhalation et par ingestion directe pour Pb, Zn et Cd sont comprises entre 0,05 et 0,76 ce qui traduit une probabilité d'atteinte plus élevée chez cette population fragile. D'autre part il faut tenir compte de l'effet cumulable de Pb et Cd qui peuvent provoquer des pathologies des mêmes organes chez l'Homme. Par conséquent, en additionnant les valeurs de risque obtenues par ces deux métaux toxiques, le risque maximal chez les enfants peut s'élever à 0,86.

L'exposition par les voies cutanée et alimentaire qui n'ont pas été traité dans ce travail, peuvent aussi engendrer une certaine valeur du risque qui se rajoute aux valeurs que nous avons calculées. Ainsi la valeur du risque devrait se rapprocher de 1 pour les enfants qui représentent la population la plus concerné par le risque sanitaire par exposition à Pb et Cd étant donnée leur habitudes comme mettre la main dans la bouche (hand-to-mouth), jouer les pieds nus sur les terrils de déchets, et fournir un effort physique intense et fréquent qui accélère le rythme respiratoire et augmente les quantités de métaux inhalé). De plus, les doses d'ingestion de poussières que nous avons utilisées dans nos calculs ont été définit aux Etats-Unis. Ces doses pourraient être plus élevées sous le climat semi-aride à Jebel Ressas favorisant le soulèvement de poussières.

Par ailleurs, si on prend en considération l'effet sans seuil de Pb et Cd notamment leur effet cancérigène, nous constatons que l'excès de risque individuel dépasse largement la valeur arbitraire de 10<sup>-6</sup> proposé par l'USEPA aussi bien pour les enfants que pour les adultes.

#### Conclusion

Cette approche intégrée qui prend en considération à la fois les caractéristiques physicochimiques de la source de contamination, les conditions topographiques et les conditions climatiques nous a permit de hiérarchiser les vecteurs de la dispersion des métaux à partir des déchets de laverie de l'ancienne mine de Jebel Ressas.

Le vecteur éolien est sans doute le principal agent qui est capable de disperser les métaux dans toutes les directions avec des quantités variables suivant la direction et la vitesse du vent. Toutefois il est important d'étudier ce mécanisme à l'échelle annuelle pour tenir en compte des variations climatiques saisonnières et l'humidité de la surface des déchets.

Le transfert hydrique particulaire est assez limité notamment à cause de la topographie qui piège les particules de déchets dans les sols à quelques décamètres à l'est des terrils de déchets. L'accumulation des déchets dans les sols peut cependant jouer le rôle de source secondaire de métaux pouvant subir l'érosion éolienne en particulier et aussi induire un risque de contamination de la chaine alimentaire suite à la contamination des terrains agricoles.

A plus long terme, l'effet des deux mécanismes de transfert particulaire, hydrique et éolien pourrait être accentué avec le changement climatique global qui est marqué en Tunisie, d'une part, par une saison hivernale avec des épisodes pluvieux intenses plus fréquents, le gel et dégel et d'autre part, par l'augmentation de la température en été et le prolongement de la saison sèche.

Enfin la contamination des eaux par les métaux en solution reste négligeable grâce à l'environnement carbonaté.

L'investigation sur le risque des métaux pour la santé humaine au village de Jebel Ressas montre d'abord que, d'une part l'environnement carbonaté et d'autre part le pH neutre des fluides physiologiques dans le corps humain, limitent le passage en solution des métaux et leurs quantités bioaccessibles. Malgré cette protection offerte par la nature, Pb, et Cd présentent un risque surtout pour les enfants en plus d'un effet cancérigène probable pour toute la population. A la lumière de ces résultats il sera nécessaire d'établir une étude épidémiologique couplée à une enquête sociologique pour vérifier l'état de santé de la population en rapport avec la contamination plombifère et cadmifère et la relier aux comportements spécifiques des personnes dans cet environnement dans le but de trouver les mesures nécessaires de prévention contres les maladies.

Les résultats obtenus pour le site de Jebel Ressas en terme de dispersion de la contamination et d'exposition des populations permettent soulèvent la nécessité d'appréhender cette problématique pour les autres anciens sites miniers à Pb, Zn et Cd du nord de la Tunisie, mais aussi des nombreux sites du Maghreb présentant des caractéristiques similaires. L'approche prédictive dynamique proposée dans ce travail pourrait être appliquée aux autres sites miniers méditerranéens tout en respectant les spécificités de chaque site en ce qui concerne son contexte minéralogique et géologique, ses conditions géographiques, topographiques et climatiques, afin d'obtenir une estimation du risque avec un nombre d'analyses limité.

#### Références bibliographiques

#### Α

Abdul-Wahab S.A. (2006). Impact of fugitive dust emissions from cement plants on nearby communities. Ecological modelling 195. pp 338–348.

Afsset. (2004). Avis de l'Agence française de sécurité sanitaire de l'environnement et du travail Relatif à la proposition de valeurs guides de qualité d'air intérieur pour les particules.

Al T.A., Martin C.J., Blowes D.W. (2000). Carbonate-mineral/water interactions in sulfiderich mine tailings. Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 64, No. 23, pp. 3933–3948

Alfaro,S.C. (1994). Caractérisation de l'écoulement obtenu dans la veine d'étude d'une soufflerie : application à l'étude de la partition de la contrainte aérodynamique exercée sur un sol parsemé d'éléments non érodables, Rapport de DEA "Chimie de la Pollution Atmosphérique et Physique de l'Environnement", Université Paris 7, Denis Diderot, 30 p.

Alfaro, S.C., Gaudichet, A., Gomes, L., Maillé,M. (1997). Modeling the size distribution of a soil aerosol produced by sandblasting. Journal of geophysical research. Vol 102. N°D10. pp 11,239-11,249.

Al-Rajhi M.A., Seaward M. R. D. et Al-Aamer A. S. (1996). Metal levels in indoor and outdoor dust in Riyadh, Saudi Arabia. Environ. Intern., 22, 315-324.

ANPM. (2009). Agence Nationale du Patrimoine Minier d'Algérie.

Armbrust D.V., Chepil W.S., et Siddoway F.H. (1964). Effects of ridges on erosion of soil by wind, Soil Sci. Soc. Am. Proc., 28, 557-560, 1964.

Association de Recherche en Géotechnique Marine. (1987). Ancres et lignes d'ancrage. Collection des guides pratiques sur les ouvrages en mer 2. Editions Technip, Paris. 285 p.

ASTDR.(2011).Agency for toxic substances and disease registry http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/index.asp.

Arya, S.P. (1975). A drag partition theory for determining the large-scale roughness parameter and

wind stress on the Arctic Pack Ice, J. Geophys. Res., 80, 3447-3454.

Arya S.P.S., et Shipman M.S.(1981). An experimental investigation of flow and diffusion in the disturbed boundary layer over a ridge, I, Mean flow and turbulence structure, Atmos. Environ., 15, pp 1173-1184.

В

Badr,T., et Harion,J.L. (2005). Numerical modelling of flow over stockpiles: implications On dust emissions. Atmospheric Environment N° 39. pp 5576–5584.

Badr,T. et Harion,J.L. (2007). Effect of aggregate storage piles configuration on dust emissions. Atmospheric Environment N°41. pp 360–368.

Bagnold, R.A. (1941). The physics of blown sand and desert dunes. Methuen and Co., London.

Baize D. (1997). Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols (France). INRA

Editions, Paris, 408p.

Banks D., Younger P. L., Arnesen R. T., Iversen E. R., Banks S. B. (1997). Mine-water chemistry: the good, the bad and the ugly, Environmental Geology, Vol. 32, p.157-174

Ben chikha L. et guedderi M. (2008). Le bassin versant du Jannet (Tunisie): évaluation des risques d'érosion hydrique. Mappemonde N°90.

Binder, S., Sokal, D., Maughan, D. (1986): Estimating soil ingestion: the use of tracer elements in estimating the amount of soil ingested by young children. Arch. Environ. Health. 41(6):341-345.

Borel, J.P., Maquart, F.X., Le Peuch, C., Randoux, A., Gillery, P., Bellon, G., Monboisse, J.C. (1997): Biochimie dynamique. 2<sup>nd</sup> edition. p 660. 942 pages.

Boussen S. (2010). Evolution des haldes plombo-zincifères dans le nord de la Tunisie : l'exemple d'un contexte carbonaté. Thèse de Doctorat de l'Université de Tunis et de l'Université de Limoges. 229p.

Buchet J.P., Roels H., Lauwerys R., Bruaux P., Claeys-Thoreau F., Lafontaine A., Verduyn G. (1980). Repeated surveillance of exposure to cadmium, manganese, and arsenic in schoolage children living in rural, urban, and nonferrous smelter areas in Belgium. Environ. Res. N°22, pp95–108.

Bujalka P., Johan K., Krivy M., Rakus M. et Vacek J. (1971). Carte géologique de Grombalia au 1/50 000 et notice explicative.

Brunel C. (2005). Dynamique des éléments traces métalliques (Pb-Zn-Cd) sur un petit bassin versant contaminé par des déchets miniers : cas du bassin versant amont du Lez (Ariège Pyrénées). Thèse de Doctorat de l'Université Paul Sabatier. 276p.

C

Calabrese, E.J., Pastides, H., Barnes, R., Edwards, C., Kostecki, P.T. (1989): How much soil do young children ingest: an epidemiologic study in: Petroleum Contaminated Soils. Lewis Publishers, Chelsea, MI. pp. 363-397.

California Department of Transportation. (1979). CALINE3:A Versatile Dispersion Model for Pre-dicting Air Pollutant Levels Near Highways and Arterial Streets. Office of Transportation Laboratory Department of Transportation, State of California, Sacraments, California 95807. No. FAWA/CA/TL-79/23, U.S.A.

Carrizales, L., Raso, I., Tallez-Hernandez, J.I., Torres-Nerio, R., torres, A., Batres, L.E., Cubillas, A.C., Diaz-Barriga, F. (2006): Exposure to arsenic and lead of children living near a copper-smelter in San Luis Potosi, Mexico: Importance of soil contamination for exposure of children. Environ Research. 101, 1-10.

CCME. (1987). Recommandation pour la qualité des eaux Canada. Conseil Canadien des Ministres Des Ressources et de L'environnement. http://ceqg-rcqe.ccme.ca/?lang=fr

Cerda, A. (1994). The response of abandoned terraces to simulated rain. In: Rickson, R.J. Ed. , Conserving Soil Resources: European Perspective. CAB International, Wallingford, pp. 44–55.

Chakroun H. K., Souissi F., Sassi-Souissi R., Ben Mammou A., Souayah N., Chaibi W., Abdeljaoued S. (2006). Etude minéralogique et géochimique des rejets miniers du district de

Jebel Hallouf-Sidi Bou Aouane (Nord-Ouest de la Tunisie): impact sur le sol et la végétation. Revue Méditerranéenne de l'Environnement volume 1, pp185-201.

Chane Kon L., Durucan S., Korre A. (2007). The development and application of a wind erosion model for the assessment of fugitive dust emissions from mine tailings dumps. International Journal of mining, reclamation and environment. Vol 21. N°3. pp 198-218.

Chisci, G., 1994. Perspectives and soil protection measures in Europe. In: Rickson, R.J. Ed. Conserving Soil Resources: European Perspective. CAB International, Wallingford, pp. 339–353

Chaulya S.K. Ahmad M., Singh R.S., Bandopadhyay L.K., Bondyopadhay C., Mondal G.C. (2003). Validation of two air quality models for indian mining conditions. Environmental Monitoring and Assessment 82. pp23–43.

Courtin-Nomade A., Bril H., Neel C., Lenaina J.F. (2003). Arsenic in iron cements developed within tailings of a former metalliferous mine-Enguiales, Aveyron, France. Applied Geochemistry 18. pp395–408.

Courtin-Nomade A., Bril H., Neel C. (2005). Piégeage et relargage d'éléments traces métalliques (ETM) dans d'aciennes haldes de mine. Laboratoire d'Analyse Structurale et Hydrothermalisme (L.A.S.E.H.), UMR 6532 CNRS, HydrASA.

Craw D.(2001). Tectonics control on gold deposits and their environmental impact, New Zealand. Journal of geochemical exploration 73. pp43-56.

Crawford-Brown, D.J., 1999. Risk-Based Environmental Decisions: Methods and Culture. Kluwer Academic Publishers, Norwell, MA.

D

Davis, S., Waller, P., Buschbon, R., Ballou, J., White, P. (1990): Quantitative estimates of soil ingestion in normal children between the ages of 2 and 7 years: population based estimates using aluminum, silicon, and titanium as soil tracer elements. Arch. Environ. Hlth. 45, 112-122.

DGTP. (1922). Carte des mines et carrières dressée par la Direction Générale des Travaux Publics. Régence de Tunis

Diaz-Barriga F., Santos M.A., Mejia J.J., Batres L., Yanez L., Carrizales L., Vera E., Del Razo L.M., Cebrian M.E. (1993). Arsenic and cadmium absorption in children living near a smelter complex in San Luis Potosi, Mexico. Environ. Res. N°62, pp242–250.

Doye I. (2005). Evaluation de la capacité de matériaux industriels alcalins à neutraliser des résidus et stériles miniers acides. Thèse de Doctorat de l'Université Laval Québec. 298p.

Duchaufour P. (1984). Pédologie. Volume 2. Paris Masson.

Dutrizac J.E., et Jambor J.L. (2000). Jarosites and their application in hydrometallurgy. In: Alpers, C.N., Jambor, J.L., Nord-strom, D.K. (Eds.), Sulfate Minerals: Crystallography, Geochemistry, and Environmental Significance, Rev. Mineral.Geochem. N°40, Washington, USA, pp 405–452.

Ε

Ermak D. L. (1977). An analytical model for air pollutant transport and deposition from a

F

Fécan, F., Marticorena, B., Bergametti, G. (1999). Parametrization of the increase of the Aeolian erosion threshold wind Friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas. Ann.Geophysicae N°17.pp 149-157.

G

Garratt J.R. (1977). Aerodynamic roughness and mean monthly surface stress over Australia, Div. Atmos. Phys. Tech., Pap 29, CSIRO, Australia.

Garratt J.R. (1992). The atmospheric boundary layer. Cambridge University Press, Royaume Uni, pp. 334, ISBN 05-214-6755-4.

Ghorbel, M., Souissi, F., Souissi, R., Munoz, M., Courjault-Radé, P., Destrigneville, C. (2008a). Geochemical and mineralogical evolution of the Pb-Zn mining wastes of Jebel Ressas (northestern Tunisia). Proceedings International Congress of Solid Waste Management & Sustainable Development 2008, 231-236.

Ghorbel, M., Courjault-Radé, P., Munoz, M., Maire, E., Destrigneville, C., Souissi, R., Souissi, F. (2008b). Un risque d'origine anthropique : la contamination chronique par les métaux lourds à proximité d'anciens sites miniers. Le cas de la mine (Pb, Zn) de Jebel Ressas (Tunisie Nord-Orientale). In «Risques et environnement: recherches interdisciplinaires sur la vulnérabilité des sociétés». S. Becerra & A. Peltier, Paris: L'Harmattan, collection sociologie de l'environnement, 576 p.

Ghorbel, M., Munoz, M., Courjault-Radé, P., Destrigneville, C., Souissi, R., Souissi, F., Ben Mammou, A. et Abdeljaouad, S.(2010). Health risk assessment for human exposure by direct ingestion of Pb, Cd, Zn bearing dust in the former miner's village of Jebel Ressas (NE Tunisia). European Journal of Mineralogy n°22. pp 639-649.

Gillette, D.A. (1979). Environmental factors affecting dust emission by wind erosion. In Saharan Dust, C. Morales, Wiley and Sons (Eds.), New-York, pp71-94.

Gillette D. et Passi.R. (1988). Modeling dust emission caused by wind erosion, J. Geophys. Res., 93(D11), 14,233–14,242.

Glorennec, P., (2006): Analysis and reduction of the uncertainty of the assessment of children's lead exposure around an old mine. Env. Research., 100, 150-158

Godish, T. (1997). Air quality. 3<sup>ème</sup> édition. Lewis Publishers. 448p.

Gomes L., Bergametti G., Coudé-Gaussen G., Rognon P. (1990). Submicron desert dusts: a sand blasting process, J. Geophys. Res., 95. pp 13927-13935.

Goossens D. (2006). Aeolian deposition of dust over hills: the effect of dust grain size on the deposition pattern. Earth Surface Processes and Landforms 31. pp 762-776.

Greeley, R. et Iversen, J.D. (1985). Wind as a geological Process on Earth, Mars, Venus and Titan. 348 pp., Cambridge University Press.

Greeley R., Blumberg D.G., et Williams S.H. (1994). Field measurements of active windblown sand, Abstract of the Workshop on Response of Eolian Processes to Global Change, Desert Studies Center, CA, March 24-29, 1994, Occasional Paper, 2, Desert Research Institute,

Quaternary Science Center, Reno, NV., 47-48.

Graupner T., Kassahun A., Rammlmair D., Meima J.A., Kock D., Furche M., Fiege A., Schippers A., Melcher F. (2007). Formation of sequences of cemented layers and hardpans within sulfide-bearing mine tailings (mine district Freiberg, Germany). Applied Geochemistry N°22. pp 2486–2508

Gunsinger M.R., Ptacek C.J., Blowes D.W., Jambor J.L. (2006). Evaluation of long-term sulfide oxidation processes within pyrrhotite-rich tailings, Lynn Lake, Manitoba. Journal of Contaminant Hydrology N°83. pp 149–170.

Н

Hall DJ, Upton SL, Marsland GW. 1994. Designs for a deposition gauge and a flux gauge for monitoring ambient dust. Atmospheric

Environment 28: 2963-2979.

Hwang Y.H., Bornschein R.L., Grote J., Menrath W., Roda S. (1997). Environmental arsenic exposure of children around a former copper smelter site. Environ. Res. N°72, pp72–81.

ICPS (International Program on Chemical Safety). (1995). Inorganic lead. Environmental health criteria. N° 165. WHO. Geneva.

INSERM. (1999). Plomb dans l'environnement: quels risques pour la santé ? Institut National de la Santé et de la Recherche Médicale.

J

Jarvis P.G., James G.B., et Landsberg, J.J. (1976). Coniferous Forest in "Vegetation and the atmosphere", J.L. Monteith (Eds.), 2, Academic Press, London, pp 171-240.

Jdid E.A., Blazy P., Kamoun S., Guedria A., Marouf B., Kitane S. (1999). Environmental impact of mining activity of the pollution of the Medjerda river, north-west Tunisia. Bulletin of Engineering Geology and the Environment, 57, pp 273–280.

Jemmali N, Souissi F, Vennemann T.W., and Carranza.E.J.M. (2011). Genesis of the Jurassic Carbonate-Hosted Pb–Zn Deposits of Jebel Ressas (North-Eastern Tunisia): Evidence from Mineralogy, Petrography and Trace Metal Contents and Isotope (O, C, S, Pb) Geochemistry. Resource geology Vol. 61, No. 4: 367–383.

Κ

Kalhori A.A.M. (2008). La qualité de l'air en milieu urbain « Entre mesure et perception ». Thèse de Doctorat de l'Université Luis Pasteur Strasbourg I.

Kardous M. (2005). Quantification de l'érosion éolienne dans les zones arides tunisiennes : approche expérimentale et modélisation. Thèse de doctorat de l'université Paris 12-Val-De-Marne.

Kohfahl C., Graupner T., Fetzer C., Pekdeger A. (2010). The impact of cemented layers and hardpans on oxygen diffusivity in mining waste heaps: A field study of the Halsbrücke lead–zinc mine tailings (Germany). Science of the total environment. N°408. pp 5932-5939.

Komnitsas, K., Kontopoulos, A., Lazar, I., Cambridge M. (1998). Risk assessment and proposed remedial actions in coastal tailings disposal sites in Romania. Minerals Engineering

11 (12). pp 1179-1190.

Kontopoulos, A., Komnitsas K., Xenidis A., et Papassiopi N. (1995). Environmental characterisation of the sulfidic tailings in Lavrion.Miner.Eng.8. pp1209–1219.

Kraus K., Waldhäusl P. (1998). Manuel de photogrammétrie: principes et procédés fondamentaux. Translated by P. Grussenmeyer and O. Reis, Paris, Éditions Hermès, 407 p.

L

Last J.M. (2000). A dictionary of epidemiology. Oxford Medical publications. Oxford.

Lee J.S., Chon H.T., Kim K.W. (2005). Human risk assessment of As, Cd, Cu and Zn in the abandoned metal mine site. Environmental Geochemistry and Health 27. pp185–191.

Lee P., Kang M., Choi S., et Touray J. C. (2005). Sulfide oxidation and the natural attenuation of arsenic and trace metals in the waste rocks of the abandoned Seobo tungsten mine, Korea. Applied Geochemistry volume 20, pp1687–1703.

Leleyter L. et Baraud F. (2005). Évaluation de la mobilité des métaux dans les sédiments fluviaux du bassin de la Vire (Normandie, France) par extractions simples ou séquentielles. C. R. Geoscience 337 (2005) 571–579.

Lim J.H., sabin L.D., Schiff K.C., Stolzenbach K.D. (2006). Concentration size distribution, and dry deposition rate of particule-associate metals in the Los Angeles region. Atmospheric Environment, 40 pp 7810-7823.

Lin C.W., Yeh J.F. (2000). Estimating dust emission from a sandbank on the downstream Jhuoshuei River under strong wind conditions. Atmospheric Environment 41. pp7553–7561.

Lindahl, A., Ungell, A.L., Knutson, L., Lennernas, H., (1997): Characterization of fluids from the stomach and proximal jejunum in men and women. Pharmaceutical reaearch, 14, 497-502.

Lu H., et shao Y. (1999). A new model for dust emission by saltation bombardment. Journal of Geophysical Research, vol. 104, no. d14, pp. 16,827-16,842.

M

Martinez-Casasnovas J.A. (1998). Soil-landscape-erosion. Gully erosion in the Alt Penedes–Anoia. (Catalonia, Spain). A spatial information technology approach: spatial databases, GIS and remote sensing. Ph.D. Thesis, University of Lleida, Lleida, 333 pp.

Martinez-Casasnovas J.A., Ramos M.C., Ribes-Dasi M. (2002). Soil erosion caused by extreme rainfall events: mapping and quantification in agricultural plots from very detailed digital elevation models. Geoderma N° 105. pp 125–140.

McGregor R.G. et Blowes D.W. (2002). The physical, chemical and mineralogical properties of three cemented layers within sulfide-bearing mine tailings. Journal of Geochemical Exploration N°76. pp 195–207

Moncur M.C., Ptacek C.J., Blowes D.W., Jambor J.L. (2005). Release, transport and attenuation of metals from an old tailings impoundment. Applied Geochemistry N°20. pp 639–659.

Mlayah A., Yoshida M., Charef A., Noronha F., Ferreira da Silva E., Patinha C. (2005). Impact des rejets miniers et domestiques sur la qualité des sédiments et des eaux de l'oued

Mellègue (nord-ouest de la Tunisie) : diagnostic des métaux lourds. XIV Semana de Geoquímica/ VIII Congresso de Geoquímica dos Países de Língua Portuguesa. pp 621-625.

Mlayah A., Ferreira da Silva E., Rocha F., Ben Hamza Ch., Charef A., Noronha F., (2009). The Oued Mellègue: Mining activity, stream sediments and dispersion of base metals in natural environments, North-western Tunisia. Journal of Geochemical Exploration N°102. pp27–36.

Mezned N., Abdeljaoued S., et BOUSSEMA M.R. (2006). Caractérisation des rejets miniers dans le bassin versant de la Mejerda en utilisant les données aster. Revue Télédétection, vol. 8, n° 2, pp 83-92.

Marticorena, B. et Bergametti, G. (1995). Modelling the atmospheric dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme. Journal of geophysical research. Vol 100. N°D8. pp 16,415-16,430.

Marticorena B., Bergametti G., Aumont B., Callot Y., N'Doumé C., Legrand M. (1997). Modeling the atmospheric dust cycle: 2-Simulations of Saharan dust sources, J. Geophys. Res., 102. pp 4387-4404.

Marshall, J.K. (1971). Drag measurements in roughness arrays of varying density and distribution, Agric. Meteorol., 8, pp 269-292.

N

Neuman C.M., Boulton J.W., Sanderson S. (2009). Wind tunnel simulation of enrironmental controls on fugitive dust emission. Atmospheric environment 43, pp 520-529.

Nifong G.D. et Winchester J.W. (1970). Particle size distributions of trace elements in pollution aerosols. University of Michigan. Document N° C00-1705-8, August.

0

ONM. (2005). Air quality guidelines for Europe. 2<sup>nd</sup> edition. WHO Regional Publications, European series, N°91.

Othmani M., Souissi F., Ben Mammou A., Mansouri A., Souissi R., Abdellaoui M. (2006). Impact des résidus miniers sur l'environnement : cas du district minier de Touiref (nordouest de la Tunisie). Actes du Séminaire international sur les Géosciences au Service du Développement Durable. Tébessa, 26-28 novembre 2006, p. 229-233.

OMS. (2006). Organisation mondiale de la santé <a href="http://www.lenntech.fr/applications/potable/normes/normes-oms-eau-potable.html">http://www.lenntech.fr/applications/potable/normes/normes-oms-eau-potable.html</a>

O'Loughlin E.M., et Annambhotla V.S.S. (1969). Flow phenomena near rough boundaries, J. Hydraul. Res., 7, 231-250.

OMS. (2006): Guidelines for drinking water quality. First addendum to third edition. Organisation Mondiale de la Santé. Geneve.

OMS. (2012). Organisation mondiale de la santé.http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs313/fr/

Ρ

Pastor, M., Castro, J., 1995. Soil management systems and erosion. Olivae 59, 64-74.

Pendergrass W., et Arya S.P.S. (1984). Dispersion in neutral boundary layer over a step change in surface roughness, I, Mean flow and turbulence structure, Atmos. Environ.,

18, 1267-1279.

Plumlee G.S (1999). The environmental geology of mineral deposits. In: G.S. Plumlee et M.J. Logsdon (Eds.), The Environmental Geochemistry of Mineral Deposits. Economic Geolgy Society Inc, Littleton, pp. 71-116.

Parkhurst, D.L. et Appelo, C.A.J. (1999): User's guide to PHREEQC. A computer program for speciation, batch reaction, one dimensional transport, and inverse geochemical calculation. US Geological Survey. 326p.

Poesen, J.W.A., Hooke, J.M., 1997. Erosion, flooding and channel management in the Mediterranean environments of southern Europe. Prog. Phys. Geogr. 21, 157–199.

Porta, J., Ramos, M.C., Boixadera, J., 1994. Mechanical measures for runoff management and erosion control in the vineyards of North East Spain. In: Rickson, R.J. Ed., Conserving Soil Resources: European Perspective. CAB International, Wallingford, pp. 369–378.

R

Reeder R. J., Lamble M. G., Paul A. et Northrup P. A. (1999). XAFS study of the coordination and local relaxation around Co<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Pb<sup>2+</sup>, and Ba<sup>2+</sup> trace elements in calcite. American Mineralogist, Volume 84, pp 1049–1060.

Romero, F. M., Armienta, M. A. et Gonzalez-Hernandez, G. (2007). Solid phase control on the mobility of potentially toxic elements in an abandoned lead/zinc mine tailings impoundment, Taxco, Mexico. Applied Geochemistry, volume 22, pp109–127.

Raupach M.R., Thom A.S., et Edwards I. (1980). A wind-tunnel study of turbulent flow close to regularly arrayed rough surfaces, Boundary Layer Meteorol., 18, pp 373-397.

Raupach M.R. (1991). Saltation layers, vegetation canopies and roughness lengths, Acta Mech., 1

(Suppl), pp83-96.

Rammlmair D. (1996). The role of gels in self organisation of slagheaps from the arsenic production site, Muldenhutten at Freiberg, Saxony, FRG. In: Niedbalska, A., Szyman'ski, A., Wiewiora, A. (Eds.), Proceedings ICAM'96. SUBDAN-DRUK, Warsaw, Poland, pp. 378–382.

Rammlmair D. (2002). Hardpan formation on mining residuals. In: Merkel, B., Planer-Friedrich, B., Wolkersdorfer, C. (Eds.), Uranium in the Aquatic Environment. Springer, Berlin, pp. 173–182.

Rose A.W., Cravotta C.A. (1998). Geochemistry of coal-mine drainage, In: Brady K.B.C., Smith M.W., Schueck J., (eds). Coal Mine Drainage Prediction and Pollution Prevention in Pennsylvania: Harrisburg, Pa., Pennsylvania Department of Environmental Protection, 5600-BK-DEP2256, p. 1.1-1.22

S

Sainfeld P. (1952). Les gîtes plombozincifères de la Tunisie. Annales des mines et de la géologie N°9.

Salomons W. (1995). Environmental impact of metals derived from mining activities: processes, prediction, prevention. Journal of Geochemical Exploration, Vol. 52, p. 5-23.

Sebei A., Chaabani F., Ouerfelli M. K., Abdeljaoued S. (2006). Evaluation de la contamination des sols par des métaux lourds dans la région minière de Fej Lahdoum (NW de la Tunisie). Revue Méditerranéenne de l'Environnement 1. pp 1-12.

Sebei A. (2007). Impact des rejets miniers sur l'environnement. Cas de basins versants des Oueds Mellègue et Tessa (Tunisie septentrionale). Thèse de Doctorat de l'Université de Tunis El Manar, 259p.

Speer J. A. et Hensley Dunn L. M. (1976). Strontianite composition and physical properties. American Mineralogist, Volume 61, pages 1001-1004.

Sahnoun O., Schärer U., Added A., Fernex F., Abdeljaoued S. (2009). Origin and Pb isotopes in water of the mine-draining Mejerda river system, north Tunisia. Geochemistry: Exploration, Environment Analysis, Vol. 9. pp. 369–380

Stull R.B. (1988). An introduction to boundary layer meteorology. Kluwer Academic Publishers, Pays Bas, 680p, ISBN 90-277-2768-6.

Sportisse B. (2008). Pollution atmosphérique: des processus à la modélisation. Springer-verlag France. Paris. 350 p.

Shao, Y. (2000). Physics and Modelling of Wind Erosion. Kluwer Academic Publishers, Boston, MA, 393pp.

Shao Y., Raupach M.R., Findlater P.A. (1993). Effect of saltation bombardment on the entrainment of dust by wind, J. Geophys. Res., 98. pp12719-12726.

Shao Y, 2004, Simplification of dust emission scheme and comparison with data, J. Geophys.Res. 109, D10202, doi:10.1029/2003JD004372.

Shao Y., M.R. Raupach and J. F. Leys, 1996, A model for predicting Aeolian sand drift and dust entrainment on scales from paddock to region, Aust. J. Soil Res. 34, 309-342.

Saleh A., Fryrear D.W., et BilbroJ.D. (1997). Aerodynamic roughness prediction from soil surface roughness measurement, Soil Sci., 162. pp 205-210.

Shao Y. (2008). Physics and modeling of wind erosion. 2<sup>nd</sup> revised and expanded edition. Springer.

Sow M., Goossens D., Rajot J-L. (2006). Calibration of the MDCO dust collector and of four versions of the inverted frisbee dust deposition sampler. Geomorphology 82. pp360–375.

Sloss, L.L. and Smith, I.M. (2000): PM10 and PM2.5: an international perspective. Fuel Processing Technology, 65-66, 127-141.

Stanek, E.J. and Calabrese, E.J. (1995): Daily estimates of soil ingestion in children. Environ. Health Perspect, 103(3), 276-285.

Т

Thornber M.R., Bettenay E., Russell W.G.R. (1987). A mechanism of aluminosilicate cementation to form a hardpan. Geochimica et Cosmochimica Acta 51 (9). pp 2303–2310.

Javier Toraño J., Torno S., Diego I., Menendez M., Gent M.(2009). Dust emission calculations in open storage piles protected by means of barriers, CFD and experimental tests. Environ Fluid Mech. 9; pp 493–507

Turpin, C. et Harion, L. (2009). Numerical modeling of flow structures over various flat-

topped stockpiles height: Implications on dust emissions. Atmospheric Environment N°43. pp 5579–5587.

U

UNESCO-FAO. (1963). Carte bioclimatique de la zone Méditerranéenne et notice explicative.

UNESCO et BRGM. (1968-1982). Carte métallogénique de l'Europe et des pays limitrophes. Feuille n°8.

USEPA. (1995a). Air quality criteria for particulate matter. Vol.III.EPA/600/AP-95/001c.

USEPA. (1995b). Compilation of air pollutant emission factors. Volume I: Stationary point and area sources. AP42. 5<sup>th</sup> edition.

USEPA. (2005c): RAIS: Risk Assessment Information System. Risk Exposure Models for Chemicals User's Guide. Internet address <a href="http://rais.ornl.gov/prg/rais chemical risk guide.shtml">http://rais.ornl.gov/prg/rais chemical risk guide.shtml</a>, US Environnemental Protection Agency, Washington D.C., USA.

USEPA. (2005d): Toxicological review of zinc and compounds (EPA/635/R-05/002), US Environnemental Protection Agency, Washington D.C., USA.

USEPA. (1997): Exposure factors handbook (EPA/600/P-95/002Fa) (update to Exposure factors handbook (EPA/600/8-89/043), Environnemental Protection Agency Region I, Washington D.C., USA.

USEPA, 1999. Human Health and Ecological Risk Assessment Support to the Development of Technical Standards for Emissions from Combustion Units Burning Hazardous Wastes: Background Document. Washington, DC.

Uno I., Amano H., Emori S., Kinoshita K., Matsui I., Sugimoto N. (2001). Trans-Pacific yellow sand transport observed in April 1998: A numerical simulation, J. Geophys. Res., 106(D16). pp331-334.

٧

Vesovic V., Auziere A., Calviac G., Dauriat A. (2001). Modelling of the dispersion and deposition of coarse particulate matter under neutral atmospheric conditions. Atmospheric Environment 35 Supplement N°1. pp99-105.

W

Webster J. G., Nordstrom D. K., Smith K. S. (1994). Transport and natural attenuation of Cu, Zn, As, and Fe in the acid mine drainage of Leviathan and Bryant Creeks. In Environmental Geochemistry of sulfide oxidation (C.N. Alpers & D.W. Blowes, eds). Am. Chem. Soc. Symp. Series 550, pp 244-260.

White, B.R. (1979). Soil transport by winds on Mars, J. Geophys. Res., 84, pp 4643-4651.

Winges, K.D., 1992. User's Guide for the Fugitive Dust Model. Environmental Protection Agency Report. EPA-910/9-88-202R.

Wischmeier W.H. et Smith D.D. (1978). Predicting Rainfall Erosion Losses: A Guide to Conservation Planning. Agriculture Handbook No. 537. USDA/Science and Education Administration, US. Govt. Printing Office, Washington, DC. 58p.

Wood, S.A., Taunton, A.E., Normand, C., Gunter, M.E. (2006): Mineral-fluid interaction in

the lungs: Insights from reaction-path modeling. Inhalation Toxicology, 18, 977-986.

Х

Xenidis, A., Papassiopi, N., Komnitsas, K. (2003): Carbonate-rich mining tailings in Lavrion: risk assessment and proposed rehabilitation schemes. Adv. Envir.Res., 7, 479-494

Υ

Yin D., Nickovic S., Sprigg W.A. (2007). The impact of using different land cover data on wind-blown desert dust modeling results in the southwestern United States. Atmospheric Environment 41. Pp 2214–2224.

Younger P.L., Banwart S.A., Nuttal C., Jarvis A.P., (1998) - Mine waste and minewater pollution – Short course, The Mining Institute, Newcastle Upon Tyne

Z

Zhuang P., McBrideb M.B., Xiaa H., Li N., Li Z.(2009). Health risk from heavy metals via consumption of food crops in the vicinity of Dabaoshan mine, South China. Science of the Total Environment 407. pp 1551 – 1561.

# ANNEXES

#### Annexe 1

### Exemple de fichier d'entré pour le calcul géochimique avec Phreeqc

```
TITLE equilibrage eau dans systeme carbonate
  SOLUTION 1
   temp
              25
    рΗ
              4
    pe
   redox pe
units mmol/kgw
    density 1
    0(0) 1 02(g) -0.7
Si 0.00116 mmol/kgw
    -water 1 # kg
EQUILIBRIUM PHASES 1
    Calcite 0 10
SELECTED OUTPUT
                        FORCE IONIQUE final.xls
    -file
    -reset
                         false
    -solution
                          true
    -ph
                          true
    -pe
                          true
    -ionic_strength true
-percent_error true
-+o+=1s Pb ;
    -totals Pb Zn
-molalities HCO3- Zn+2 Pb+2
-activities HCO3- Zn+2 Pb+2
    -equilibrium_phases Calcite Cerussite Hydrocerussite hemimorphite
Hydrozincite
                          Smithsonite Goethite Fe (OH) 3
    -saturation_indices pyrite sphalerite galena Hydrocerussite Hydrozincite
Hemimorphite smithsonite cerussite calcite gypsum
  save solution 2
  END
 TITLE equilibrage avec les phases carbonatées silicatée et ferrifères
REACTION 2
            0.04
    Galena
    Sphalerite 3.17
    Pyrite 0.18
    15 micromole
   use solution 2
EQUILIBRIUM PHASES 2
    Calcite 0 1
    Cerussite 0 0
    Fe(OH)3 0 0
Goethite 0 0
    smithsonite 0 0
    hemimorphite 0 0
    hydrozincite 0 0
    gypsum 0 0
  SAVE solution 4
   END
 TITLE changement de force ionique
    SOLUTION 5
    temp 25
   рН
             7
             4
    pe 4
redox pe
```

```
mmol/kgw
   units
   density 1
   O(0) 1 O2(g) -0.7
Na 0.034 Mol/kgw
            0.034 Mol/kgw
   Cl
            0.00116 mmol/kgw
   Si
   -water 1 # kg
 USE REACTION 2
 USE EQUILIBRIUM_PHASES 2
  end
  SOLUTION 6
   temp 25
   pH
pe
            4
   redox pe
units mmol/kgw
   density 1
   0(0) 1 02(g)
Na 0.6 Mol/kgw
                          -0.7
            0.6 Mol/kgw
   Cl
   Si 0.00116 mmol/kgw -water 1 # kg
  USE reaction 2
  USE EQUILIBRIUM_PHASES 2
END
SOLUTION 7
  temp
             25
   рН
             4
   pe
   redox pe
units mmol/kgw
   density 1
   O(0) 1 O2(g) -0.7
Na 1 Mol/kgw
            1 Mol/kgw
   Cl
   Si
            0.00116 mmol/kgw
   -water 1 # kg
  USE reaction 2
  USE EQUILIBRIUM PHASES 2
```

end

Annexe 2
Exemple de fichier d'entrée pour le calcul du transport avec FDM (J2,5cc.IN)

	Extra	ait du fic	nier d∏entre	é (PM2,5)			Signification
1 1 2 1 1 1 1 1 2 1 0 2 0 1 104 4 738						Paramètres déterminant l□affichage à la sortie 1 source, 104 récepteurs, 4 classe granulométriques, 738 heures	
60. 0.25 0.00144 537417 536147 536542 536597 536643 536308	0.026 0.6 0.0552 367704 370889 370960 370981 370929 370684	1. 1.35 0.389	3.5 2.2 0.554	7.5			Min/h, z₀ cm, échelle (1m), densité, hauteur de l□anémomètre Diamètre des PM2,5 émis Granulométrie des PM2,5 émis Coordonnés des points récepteurs (104 lignes)
1.82 2.26 2.88 2.74 3.89 5.28 6.69	2.64E+02 2.71E+02 2.47E+02 3.09E+02 2.66E+02 3.49E+02 3.60E+02	2 2 1 1	367599 8.15E+02 8.15E+02 8.15E+02 1.43E+03 1.43E+03 1.07E+03	311 314 316 317 316	235.0	6	Type, coordonnées et dimension de la source Paramètres météorologiques (738 lignes)

## **Annexe 3** Publications

Ghorbel M., Munoz M., P. Courjault-Radé, C. Destrigneville, De Parseval, P., R. Souissi, F. Souissi, A. Ben Mammou et S. Abdeljaouad (2010) - Health risk assessment for human exposure by direct ingestion of Pb, Zn, Cd bearing dust in the former miner's village of Jebel Ressas (NE Tunisia). Eur. J. Mineral., 22, 639-649.

Ghorbel M., P. Courjault-Radé, M. Munoz, E. Maire, C. Destrigneville, R. Souissi, F. Souissi (2009) - Un risque d'origine anthropique : la contamination chronique par les métaux lourds à proximité d'anciens sites miniers. Le cas de la mine (Pb, Zn) de Jebel Ressas (Tunisie Nord-Orientale). In "Risques et environnement, recherches interdisciplinaires sur la vulnérabilité des sociétés", S. Becerra & A. Peltier, Paris, L'Harmattan (éd.), collection sociologie de l'environnement, (271-284) 576p.