

Modélisation des écoulements dans des sites de stockage de résidus miniers

Pierre L'Hermite

▶ To cite this version:

Pierre L'Hermite. Modélisation des écoulements dans des sites de stockage de résidus miniers. Hydrologie. Sorbonne Université, 2023. Français. NNT: 2023SORUS696 . tel-04555230

HAL Id: tel-04555230 https://theses.hal.science/tel-04555230

Submitted on 22 Apr 2024

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.



Sorbonne Université

École doctorale : Géosciences, Ressources Naturelles et Environnement

UMR 7619 Milieux Environnementaux, Transferts et Interactions dans les hydrosystèmes et les Sols (METIS)/Département hydrologie, hydrogéologie et géophysique de surface

Modélisation des écoulements dans des sites de stockage de résidus miniers

Par Pierre L'Hermite

Thèse de doctorat en Hydrogéologie

Dirigée par Valérie Plagnes, Anne Jost et Michaël Descostes

Présentée et soutenue publiquement le 21 décembre 2023

Devant un jury composé de :

Pauline Collon	Professeure – Université de Lorraine	Rapporteur
Thomas Pabst	Chercheur – Norwegian Geotechnical Institute	Rapporteur
Sophie Guillon	Enseignant Chercheur – Mines Paris – PSL	Présidente du jury
Alexis Maineult	Chargé de recherche – Sorbonne Université	Examinateur
Guillaume Kern	ORANO Après-Mines France	Invité
Valérie Plagnes	Professeure – Sorbonne Université	Directrice de thèse
Anne Jost	Maîtresse de conférences – Sorbonne Université	Encadrante de thèse
Michaël Descostes	Chercheur HDR – ORANO Mining	Encadrant de thèse

(cc)

• Except where otherwise noted, this work is licensed under http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier le trio d'encadrement qui m'a fait confiance pendant ces années de thèse, Valérie Plagnes, ma directrice de thèse, Anne Jost, mon encadrante de thèse et Michael Descostes, mon encadrant de thèse. Je vous remercie de votre disponibilité, de m'avoir transmis votre rigueur, vos connaissances et vos conseils et d'avoir été présent.es au quotidien.

Je souhaite aussi remercier les membres du jury qui ont accepté et pris le temps d'examiner mes travaux. Merci à Sophie Guillon en sa qualité de présidente du jury. Merci à Pauline Collon et Thomas Pabst pour leurs rapports et leurs questions qui m'ont permis d'approfondir mes réflexions sur mon travail et d'ouvrir à de nombreuses perspectives. Et merci à Guillaume Kern pour sa participation au jury de thèse, ainsi que ses remarques et ses retours intéressants pendant l'ensemble de cette thèse.

Je remercie Nicolas Seigneur, Gaël Bellenfant et Alexis Maineult qui ont accepté et pris le temps d'examiner mes travaux de thèse lors des différents comités de thèse. Leurs remarques, critiques et encouragements ont été d'un grand apport lors de cette thèse.

Je tiens également à remercier toutes les personnes avec lesquelles j'ai travaillé durant ces trois années lors des différents déplacements sur le terrain, pour m'envoyer des données et m'expliquer le fonctionnement des différents sites : Guillaume Kern, Bastien Bonhomme, Isabelle Blanc-Potard, Caroline Benesteau, Cécile Guillemin, Mathieu Corbrejaud et Elodie Têtard. Merci pour votre disponibilité, vos partages d'expériences et de connaissances, et merci de m'avoir ouvert la porte des sites miniers.

Je remercie Benoît Reilé et Damien Regnier pour les différentes missions que j'ai effectué avec eux et qui m'ont permis d'avoir des données de qualité pour réaliser ce travail de thèse et m'ont formé avec leur connaissance sur le terrain.

Je remercie enfin toutes les personnes du laboratoire METIS que j'ai côtoyé de près ou de loin durant ces trois ans de thèse. Merci à Ludovic, Danièle, Vincent, Nicolas, Pierre R et Simon, pour les discussions autour d'un café ou d'une bière, leur contribution à mes travaux et l'ouverture d'esprit qu'iels m'ont apporté.es sur de multiples sujets. Merci à Bénédicte, Valérie, Montse pour leur aide pendant la thèse que ce soit pour les missions, les achats, les soucis informatiques ou les discussions. Merci à Jamel Benmamar pour sa préparation du matériel de terrain, l'analyse des eaux et d'être venu avec moi aux quatre coins de la France pour m'aider lors de mes déplacements sur les sites miniers.

Merci à mes multiples collègues de bureau, la première génération, Noëlie pour les off du labo et les moments de rigolade, Thibault pour m'avoir partagé ta science du changement climatique, Mounir et Ninxing même si je vous ai peu vu à cause du COVID. La deuxième génération, Morgane pour les multiples échanges sur divers sujets, Rojin pour ta bonne humeur et ton soutien et Nouradine pour avoir partagé les dernières années de thèse avec toi. Les heures de travail sont passées plus vite à vos côtés. Merci à toutes les personnes que j'ai cotoyé pendant ces multiples années, Axel, Mohamed, Marc, Pedro, Leslie, Salomé, Wilfredo, Yifan, Ahmeda, Marine, Diane, Radegonde, Pierre, Patricia, Owen, Gauthier, Bertille, Elijah, Marie. Merci pour les cafés, les goûters, les nombreuses discussions, les conseils, l'ouverture culturelle, l'ambiance d'entraide et les moments de rigolade pendant toute la thèse.

Merci à toute ma famille et ma belle-famille (grands-parents, oncles, tantes et cousin.es) qui ont suivi de près ou de loin mes travaux, m'ont encouragé pendant ces trois ans et qui ont suivi sur place ou à distance la soutenance de thèse.

Je voudrai remercier Michel, Valérie, Diane, Elisabeth et Julien pour l'accueil chez KIDOVA pour le télétravail, les blagues sur les « missions » et le soutien.

Je remercie également ma famille proche, Jean-Philippe et Laurence, Anouk et Alexis pour m'avoir soutenus pendant ces années de thèse et auparavant. Merci d'avoir été présents pendant toutes les années d'études à travers la France, pour votre curiosité et votre intérêt pour ces travaux. Merci d'avoir toujours été là.

Je terminerai enfin par un immense merci à Florine qui a été mon roc pendant ces années. Merci d'avoir été présente au quotidien et d'avoir répondu à mes nombreuses questions. Merci pour les nombreuses discussions autour de ma thèse et pour m'avoir supporté, en particulier pendant l'écriture de ce manuscrit.

Table des matières

RemerciementsI
Table des matières III
Table des illustrations
Table des tableauxXVI
Chapitre 1 Contexte, objectifs et organisation de la thèse 1
1.1. Exploitation minière et risques environnementaux 1
1.2. Objectifs de la thèse
1.3. Organisation du mémoire
Chapitre 2 Etat de l'art 11
2.1. Exploitation de l'uranium11
2.1.1. Types d'exploitation de l'uranium11
2.1.2. Traitement du minerai
2.1.3. Le drainage minier acide
2.1.4. Solutions pour le stockage de résidus de traitement sur le long terme
2.1.5. L'exploitation de l'uranium en France
2.1.6. Rôle de l'Après-mines
2.2. Changement climatique
2.2.1. Scénarios d'émissions
2.2.2. Modélisation climatique et descente d'échelle
2.2.3. Données DRIAS-2020
2.3. Modélisation numérique des écoulements24
2.3.1. Ecoulement saturé
2.3.2. Ecoulement non saturé
2.3.3. Modélisation intégrée pour la gestion des flux d'eau
2.3.4. Modélisation dans le domaine minier de l'impact du changement climatique 28
Chapitre 3 Méthodologie
3.1. Suivi environnemental

3.2. Méthodes relatives à l'analyse de données	. 32
3.2.1. Corrélation croisée	. 32
3.2.2. Bilan hydrologique	. 33
3.3. Méthodes relatives au changement climatique	. 34
3.3.1. Analyse de tendances annuelles	. 35
3.3.2. Analyse de la variabilité saisonnière	. 36
3.3.3. Fréquence et intensité des évènements pluvieux extrêmes en contexte changement climatique	de . 37
Chapitre 4 Bellezane (Haute-Vienne)	. 41
4.1. Introduction	. 41
4.2. Site de Bellezane	. 43
4.2.1. Description du site	. 43
4.2.2. Stockage de résidus et de stériles miniers	. 45
4.2.3. Description hydrogéologique et géochimique du site	. 46
4.3. Données et méthodes	. 50
4.3.1. Données	. 50
4.3.2. Méthodes relatives à l'analyse de données	. 63
4.3.3. Méthodes relatives à la modélisation	. 64
4.4. Analyse de données	. 71
4.4.1. Proportion des débits à la station de traitement	. 71
4.4.2. Critique du volume BZN2	. 72
4.4.3. Dynamique des pôles	. 74
4.4.4Bilan hydrologique	. 76
4.4.5. Proportion de chaque pôle à Pont et MagAval	. 79
4.5. Modélisation	. 82
4.5.1. Résultats de la modélisation hydrologique	. 82
4.5.2. Modèle de mélange	. 86
4.6. Changement climatique	. 96
4.6.1. Evolution des débits	. 96
4.6.2. Variabilité saisonnière	. 99

4.6.3. Fréquence et intensité des évènements pluvieux extrêmes	
4.7. Discussion	103
4.7.1. Fonctionnement du site et du bassin versant	103
4.7.2. Disponibilité des données et modélisation	
4.7.3. Changement climatique et limites du modèle pour simuler les débits	106
4.8. Conclusion	107
Annexes	
Chapitre 5 Bertholène (Aveyron)	117
Préambule	117
5.1. Abstract	
5.2. Introduction	119
5.3. Site description	
5.3.1. Location, geology, hydrogeology and climate	
5.3.2. The Bertholène mining site	
5.3.3. Ore mining and tailings storage	
5.3.4. Environmental issues	
5.4. Materials and methods	125
5.4.1. Instrumentation and field measurements	
5.4.2. Cross-correlations	
5.4.3. Water balance	
5.4.4. Numerical modeling	129
5.4.5. Climate change	
5.5. Results	
5.5.1. Spatio-temporal variation of electrical conductivity and hydraulic he	ad in the TSF
5.5.2. Catchment reactivity	
5.5.3. Recharge estimation	
5.5.4. Groundwater modeling	
5.5.5. Climate change	
5.6. Discussion	147

5.6.1. Hydrogeological functioning of the storage area	147
5.6.2. Catchment scale groundwater flow	147
5.6.3. Use and limitations of the hydrogeological model	
5.6.4. Climate change impact	
5.7. Conclusion	150
Synthèse	153
Annexes	155
Supplementary material	155
Complément d'information sur l'acquisition complémentaire	159
Chapitre 6 Le Cellier (Lozère)	
Préambule	
Abstract	166
6.1. Introduction	167
6.2. Site and pile description	
6.3. Materials and methods	171
6.3.1. Data	
6.3.2. Methods	174
6.4. Results	
6.4.1. Water balance	
6.4.2. Hydrological and geochemical dynamics of the pile	
6.4.3. Historical simulated discharge and water content distribution during extension	treme events 182
6.4.4. Hydrological response of the pile to climate change	
6.5. Discussion	
6.5.1. Hydrogeological and geochemical pile functioning	
6.5.2. Contribution of the numerical model	
6.5.3. Perspectives associated with climate change	
6.5.4. Long-term and sustainable water management of the site	191
6.6. Conclusion	
Synthèse	

Annexes	195
Supplementary material	195
Complément d'information sur l'acquisition complémentaire	208
Chapitre 7 Conclusion et perspectives	211
7.1. Synthèse sur le fonctionnement des sites de stockage de résidus miniers	211
7.1.1. Apport des données journalières	211
7.1.2. Apport de l'analyse des données	212
7.1.3. Apport de la modélisation	214
7.1.4. Le changement climatique	216
7.2. Perspectives	218
Bibliographie	223
Annexe	243
Article Ouédraogo et al. (2022)	243

Table des illustrations

Figure 1.1 : Schéma illustrant les différents impacts que peut engendrer une exploitation minière. Les différentes infrastructures minières peuvent engendrer des infiltrations (stockage de résidus, tas de stériles), modifier les écoulements (Travaux miniers souterrains (TMS), mine à ciel ouvert (MCO)), éroder et déstabiliser les sols, et impacter la qualité de l'air, des sols et de l'eau souterraine ou de surface (schéma modifié de GEODERIS https://geoderis.fr/lapres-mine/thematiques/environnement/)
Figure 1.2 : Schéma de la méthodologie développée dans cette thèse
Figure 1.3 : Localisation des trois sites d'étude en France
Figure 1.4 : (a) Site de Bertholène en exploitation en 1992 (à l'arrière-plan se trouve le stockage de résidus et la mine à ciel ouvert et au premier plan se trouve les différents bassins de traitement des eaux et les stalles de lixiviation) et (b) stockage de résidus avec une alvéole de stockage des boues de traitement des eaux en 2019
Figure 1.5 : (a) Site du Cellier en exploitation en 1978 (à l'arrière-plan se trouve les trois tas de lixiviation statique et au premier plan la mine à ciel ouvert et l'usine de traitement) et (b) terril de résidus étudié en 2019 recouvert de végétation
Figure 1.6 : (a) Site de Bellezane en exploitation dans les années 90 (mine à ciel ouvert qui sert de stockage de résidus avant le réaménagement) et (b) bassin de rejet après traitement en 2021.
Figure 2.1 : Mine à ciel ouvert en exploitation de la mine d'uranium de Bellezane dans les années 1980 (source : ORANO)
Figure 2.2 : Schéma illustrant (a) une couverture à faible conductivité hydraulique et (b) une couverture de rétention et évaporation (adapté de Mylona et al., 2007)
Figure 2.3 : (a) Schéma illustrant différentes méthodes de stockage des résidus sous une couche d'eau limitant la diffusivité de l'oxygène (adapté de http://www.gardguide.com) et (b) photographie de l'ancienne minier à ciel ouvert servant de stockage de résidus du site du Bernardan en Haute-Vienne en 2008 (87, France, source : AREVA NC)
Figure 2.4 : Configuration typique d'une couverture à effet de barrière capillaire (adapté de Mylona et al., 2007)
Figure 2.5 : Localisation des 16 sites de stockage de résidus avec ou sans station de traitement des eaux (source : Orano Mining, 2021)
Figure 2.6 : Station de traitement de Bertholène
Figure 2.7 : Scénarios d'émissions de gaz à effet de serre jusqu'en 2100 (source : IPCC, 2014).
2

Figure 4.4 : Concentration en radium et en uranium pour tous les pôles d'arrivée d'eau à la station de traitement et le mélange pré-traitement (BZN1) et le cumul mensuel des précipitations issues de la station Météo-France Limoges entre janvier 2010 et mai 2020 et de la station de Bessines-sur-Gartempe depuis juin 2020. Les données continues proviennent du suivi par l'AMF et les données ponctuelles pour DESC et V105 (croix) proviennent de la mission de Figure 4.5 : Localisation des points de suivi hydrologique et chimique sur le site de Bellezane Figure 4.6 : Corrélation entre les précipitations mensuelles à Bessines-sur-Gartempe et Météo-Figure 4.8 : (a) Sonde de pression installée pour mesurer la hauteur d'eau sous le pont et (b) la courbe de tarage établie pour le point Pont situé dans le ruisseau des Magnelles à 10 m du point Figure 4.9 : (a) Les deux échelles limnimétriques dans le ruisseau des Magnelles en hautes eaux et (b) basses eaux, (c) l'appareil photo installé et (d) la courbe de tarage établie pour le point MagAval......54 Figure 4.10 : Débit historique hebdomadaire mesuré entre janvier 2010 et mars 2021 et débit

Figure 4.12 : Schéma des eaux du site de Bellezane et les points de mesure de chimie avec la
disponibilité des données
Figure 4.13 : Conductivité électrique mesurée entre mars 2021 et juillet 2023 avec le cumul mensuel des précipitations
Figure 4.14 : pH mensuel mesuré entre janvier 2010 et juillet 2023 avec le cumul mensuel des précipitations. BZN2 (rouge) est le point de rejet
Figure 4.15 : Concentration mensuelle en sulfate mesurée entre (a) janvier 2010 et juillet 2023 et (b) janvier et juillet 2023 avec le cumul mensuel des précipitations. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet
Figure 4.16 : Concentration mensuelle de l'uranium mesurée entre janvier 2010 et décembre 2022 avec le cumul mensuel des précipitations. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet. 61
Figure 4.17 : Concentration mensuelle du radium mesurée entre janvier 2010 et décembre 2022 avec le cumul mensuel des précipitations
Figure 4.18 : Schéma conceptuel du modèle hydrologique
Figure 4.19 : Schéma du modèle hydrologique GR4J (P : précipitations, E : évaporation potentielle, Q : débit, Xi : paramètre i et les annotations supplémentaires correspondent aux variables internes, source : https://webgr.inrae.fr/modeles/journalier-gr4j-2/)
Figure 4.20 : Illustration de la méthode de calage/validation pour optimiser les paramètres des modèles hydrogéologiques GR4J (cas de VTMS)
Figure 4.21 : Reconstitution de l'évolution des concentrations en sulfate pour les pôles DESC,
V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange
V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange
V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange
V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange
V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange

Figure 4.39 : Différence entre les débits journaliers observés à Pont et à MagAval. Lorsque la différence est positive QMagAval est plus petit que QPont
Figure A4.40 : Concentration en sulfate observée et simulée à BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 en faisant varier le débit MagAmont et ApportNaturel par un facteur K allant de 0,7 à 1,3.
Figure A4.41 : Concentration en sulfate observée et simulée à BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 en faisant varier la concentration en sulfate au pôle ApportNaturel et en testant une chronique période définie dans le Tableau A4.6
Figure 5.1 : Abstract graphique
Figure 5.2 : Location map of the study area (base map from the IGN SCAN25 [®]) 123
Figure 5.3 : Geological map and location of the mining site (base map from BRGM, 2020)
Figure 5.4 : Location of piezometers and discharge stations in the study area (base map from the IGN SCAN25 [®])
Figure 5.5 : 3D representation of the simulation domain
Figure 5.6 : Boundary conditions of the model and material distribution in the first layer 131
Figure 5.7 : Observed daily hydraulic heads monitored in the tailings storage facility and daily rainfall at the Rodez meteorological station. The dashed lines correspond to the two sampling missions in March and October 2019
Figure 5.8 : Piezometric profile across the Balaures valley in the TSF with the mean observed water level in blue. The location of the cross-section is indicated in the insert. P3 and P4 are a projection of these two piezometers because they are not aligned in the same cross section than V1 and V2
Figure 5.9 : Cross-correlations at a daily time lag and a truncation at 40 days between (a) rainfall and water levels for the period June 2018 to November 2021, and (b) rainfall and discharges, for the period January 2006 to November 2021. The dashed lines represent the 95% confidence level
Figure 5.10 : Water balance for the sub-catchments drained by Q Venturi and Q BC, calculated between November 2006 and October 2021, showing annual average with error bars representing the standard deviation
Figure 5.11 : Scatter plot of simulated vs observed hydraulic heads with minimum and maximum observed values and 95% confidence interval in dotted lines
Figure 5.12 : Particle tracking in the tailings storage area
Figure 5.13 : Particle tracking in the lower part of the catchment

Figure 5.14 : (a) Observed groundwater level recorded in BE10 piezometer and (b) the highest observed groundwater level recorded in V1 piezometer following the same two-year return period event
Figure 5.15 : Mean number of events over the threshold (87 mm, decennial return period) over the six simulated historical period and for the six simulations for each RCP scenario and three successive 30-year periods over the next century with the maximum, minimum and the median. 146
Figure 5.16 : Estimated return levels for the three RCP scenarios in 2006-2036 and 2068-2098 and the historical period (1975-2005). Return levels are estimated for 2, 5, 10, 20 and 30 years.
Figure A5.17 : Longitudinal cross-section of the TSF with the four piezometers (BE10, BE11, V1 and BE12) in the axis of the TSF and the mean observed water table in blue
Figure A5.18 : Daily electrical conductivity monitored in piezometers P3 and V1 and daily rainfall at the Rodez meteorological station
Figure A5.19 : Coupe transversale du stockage au niveau des nouveaux piézomètres V1 et V2.
Figure A5.20 : Localisation des piézomètres et des points de mesure de débit (fond de carte IGN25®)
Figure 6.1 : Abstract graphique 166
Figure 6.2 : Location map of the study area (base map from the IGN SCN25®)
Figure 6.3 : Observed monthly one-time and daily discharges, Q_{51} electrical conductivity (EC) and pH, and daily precipitation at Le Cellier site between January 2014 and October 2022. 172
Figure 6.4 : Geometry and boundary conditions of the 4-layer model
Figure 6.5 : Cross-correlations at a daily time lag and truncation at 36 days between (a) precipitation and discharges for the period March 30, 2021 to May 31, 2022, (b) precipitation and electrical conductivity, (c) precipitation and the pH for the period July 1, 2020 to May 31, 2022. (d) Cross-correlation at a 3-month time lag and truncation at 12 months between monthly one-time discharge and the concentration of SO_4^{2-} for the period January 2014 to March 2021. The dashed lines represent the 95 % confidence level
Figure 6.6 : Simulated and observed discharges between January 2014 and October 2022 with the daily precipitation at Le Cellier. The crosses represent monthly one-time discharges and the solid green line represents daily observed discharges
Figure 6.7 : Simulated water content distribution for three consecutive days (May 10-12, 2021) with 82 mm of rain in one day on May 11
Figure 6.8 : Boxplots showing the 5-, 25-, 50-, 75-, and 95-quantiles for (a) the mean annual discharge and (b) the mean annual actual evapotranspiration for three periods of 31 years for the six simulations and for each RCP scenario. Each boxplot is calculated with 186 data 187

Figure A6.9 : Quarterly concentration of sulfate between January 2014 and March 2021 for the drain Q_{51} with the total precipitation by month
Figure A6.10 : Envelopes of the grain-size distribution of the 60 samples taken in pile 2. The grey lines represent the minimum and maximum grain-size distributions, and the black line is the mean grain-size distribution
Figure A6.11 : Illustration of samples for the different layers at (a) layer 1 between 32.5 and 33 m, (b) layer 2 between 22.5-23 m, (c) layer 3 between 12-12.5 m, and (d) layer 4 between 3.5-4 m. 197
Figure A6.12 : Saturated hydraulic conductivity of all 60 samples
Figure A6.13 : (a) Water retention curve and (b) unsaturated hydraulic conductivity curve for the four layers, estimated with the median parameters
Figure A6.14 : Annual water balance for the pile calculated by hydrological year between November 2014 and October 2022, also showing the inter-annual average with error bars representing the standard deviations. 201
Figure A6.15 : Daily discharge, electrical conductivity, pH, and precipitation between 30 March 2021 and 30 October 2022 for the drain Q_{51} . The monitoring has been interrupted due to a problem with the sensor between June 2022 and mid-October 2022. pH monitoring was not available in 2022.
Figure A6.16 : Cross-correlations at a daily time lag and truncation at 90 days between (a) discharge and electrical conductivity and (b) discharge and pH for the period 30 March 2021 to 31 May 2022 for the drain Q_{51} . Cross-correlations at a monthly time lag and truncation at 12 months between (c) rainfall and electrical conductivity and (d) rainfall and pH for the period January 2014 to December 2021. (e) Cross-correlation at a 3-months time lag and truncation at 12 months between precipitation and the concentration of SO_4^{2-} for the period January 2014 to March 2021. The dashed lines represent the 95 % confidence level
Figure A6.17 : Performance criteria for the a priori and calibrated models calculated on daily and monthly one-time discharges
Figure A6.18 : Monthly total of simulated evaporation and transpiration between 2014 and October 2022
Figure A6.19 : Monthly variations for temperature in the first line, rainfall in the second line, actual evapotranspiration in the third line, and discharge in the fourth line between the period 2068-2098 and the period 2006-2036 for the three RCP scenarios. For each month, the difference is estimated for each regional climate simulation
Figure A6.20 : Mean number of events over the threshold (118 mm, decennial return period) over the six simulated historical periods and for the six simulations for each RCP scenario and three successive 30-year periods over the next century with the maximum, minimum, and median.

Figure A6.24 : Seuil triangulaire et sonde de pression au point (a) Q₅₁ et (b) Q₄₁, Q₄₂ et Q₄₉.

Table des tableaux

Tableau 1.1 : Résumé des configurations des stockages de résidus, des conditions d'écoulement présentes sur les trois sites étudiés et des échelles d'études
Tableau 2.1 : Simulations utilisées dans cette thèse ainsi que le couple GCM/RCM correspondant. 24
Tableau 3.1 : Récapitulatif des types de données observées utilisées pour l'étude de chaque site, de leur disponibilité, de leur fréquence et de l'origine. D'autres données sont disponibles mais n'ont pas été utilisées dans ce travail. 31
Tableau 4.1 : Récapitulatif des points suivis sur le site de Bellezane et du type de suivi disponible pour chaque point. 50
Tableau 4.2 : Variation globale moyenne entre 2006-2036 et 2070-2100 simulée par 6 modèlespour chaque scénario RCP et les tendances significatives estimées par le test de Mann-Kendallpour la température et les précipitations du site de Bellezane.63
Tableau 4.3 : Récapitulatif des tests de calage effectués pour chaque modèle GR4J69
Tableau 4.4 : Récapitulatif des surfaces des sous-bassins versants estimées par le bilanhydrologique et par QGIS.79
Tableau 4.5 : Récapitulatif des surfaces drainées par chaque pôle et la proportion des pôles aux points Pont et MagAval. 81
Tableau 4.6 : Concentrations en sulfate de janvier à juillet 2023 observées pour les points BZN2, MagAmont et Pont obs et calculée par rapport à la surface pour Pont cal. La dernière colonne indique l'erreur entre la concentration en sulfate observée et calculée au point Pont.81
Tableau 4.7: Concentrations en sulfate de janvier à juillet 2023 observées pour les points Pont et MagAval obs, et calculée par rapport à la surface pour MagAval cal. La concentration en sulfate pour ApportNaturel est estimée manuellement de façon à minimiser l'erreur. La dernière colonne indique l'erreur entre la concentration en sulfate observée et calculée au point MagAval
Tableau 4.8 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point VTMS pour les deux fonctions objectif et les quatre périodes de calage. Le « h » correspond au critère calculé sur la période avec les données hebdomadaires (01/2010-03/2021), le « j » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (04/2021-07/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, il n'y a pas de validation.
Tableau 4.9 : Récapitulatif des choix de la fonction objectif et de la méthode de calage pour chaque modèle GR4J

Tableau 4.12 : SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée au point BZNB en faisant varier le débit au pôle MagAmont et ApportNaturel par le coefficient K...92

Tableau 4.13 : SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée au pointBZNB en faisant varier la concentration en sulfate au pôle ApportNaturel.93

Tableau A4.18 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point ApportNaturel pour les deux fonctions objectif et les trois périodes de calage. Le « P1 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (17/07/2021-19/06/2022), le « P2 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (20/06/2022-23/05/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Tableau A4.19 : Concentrations en sulfate par mois utilisées au pôle ApportNarurel. 113 Tableau 5.1 : A priori horizontal hydraulic conductivities from Géostock (1993) and calibrated

 Tableau 5.2 : Models used for climate change analysis.
 132

Tableau 5.3 : Mean overall variation for the 6 models for each RCP scenario for the temperature Tableau 5.4 : Electrical conductivity for piezometers V1 and P3 and at BC during the low flow and the high flow sampling missions and the mean daily electrical conductivity for V1 and P3. Tableau 5.5: Summary of average annual observed discharges in the site and hydrological surface area for the two catchments of interest. The observed discharges minus the direct runoff are specified as is the simulated discharge by the model. Summary of mean interannual value Tableau 5.6 : Summary of the Mann-Kendall tests on temperature and rainfall for the next 100 years with the number of models exhibiting significant trends and the direction of those trends. Tableau 5.7: Summary of the Mann-Kendall tests on AET and effective rainfall with the number of models exhibiting significant trends and the direction of those trends......144

 Tableau A5.8 : Depth of the piezometers
 157

Tableau A5.9 : Data for each water balance parameters between November 2006 and October Tableau A5.10 : Historical return levels of each model for the period 1975-2005...... 158 Tableau A5.11 : Return levels by model for the period 2006-2036 for each RCP scenarios 158 Tableau A5.12 : Return levels by model for the period 2068-2098 for each RCP scenarios 159 Tableau A5.13 : Récapitulatif des piézomètres suivis sur le site de Bertholène......162

Tableau A6.3 : Models used to estimate LAI variation at the study grid point
Tableau A6.4 : Models used for climate change analysis. 198
Tableau A6.5 : Variation of the annual temperature between 2006-2036 and 2068-2098 (°C)and the presence of trend (+: trend, -: no trend) for each simulation and each RCP scenario atthe study grid point.199
Tableau A6.6 : Variation of the mean annual rainfall between 2006-2036 and 2068-2098 (%)and the presence of trend (+: trend, -: no trend) for each simulation and each RCP scenario atthe study grid point.199
Tableau A6.7 : Number of events that generate more than $10,000 \text{ m}^3$ in 11 days. For each event, the sum of the rainfall over 3 days and the extreme event return period are detailed
Tableau A6.8 : Estimated return levels of the precipitation for 3 days for the 200-year return period for each simulation and the lower and upper confidence intervals. These return levels are based on the maximum by year of the 3-day cumulative precipitation for the period 2006-2100 for RCP4.5.
Tableau 7.1 : Résumé des logiciels utilisés pour modéliser les écoulements sur les trois sites, des données utilisées et des résultats obtenus. (P : précipitations, T : température, O : débit

Chapitre 1 Contexte, objectifs et organisation de la thèse

1.1. Exploitation minière et risques environnementaux

L'exploitation minière présente des enjeux financiers et sociétaux importants à travers le monde, notamment pour la production de métaux et de minerais, essentielle pour le développement des sociétés (Gerst et Graedel, 2008). Cette demande en métaux devrait continuer de croître dans les prochaines années, entraînant l'ouverture de nouvelles mines et l'extraction de minerais de moins en moins concentrés. Par conséquent, la quantité de roches solides extraites devrait augmenter et la problématique de la gestion de ces dernières au sein de mines, en activité, fermées ou abandonnées, apparaît comme un enjeu majeur au vu de tous les impacts environnementaux possibles (Watari et al., 2021).

En effet, l'extraction minière de métaux peut avoir de nombreuses conséquences sur l'environnement : érosion et instabilité des sols, perte de la biodiversité, pollution de l'air, des sols et des eaux de surface et souterraines (Environmental Law Alliance Worldwide (ELAW), 2010). Le principal risque concerne le stockage des résidus (issus du traitement du minerai pour extraire les métaux) considérés comme des déchets et dans une moindre mesure, celui des stériles (roches pauvres en minerai) à court et long terme. Ces stockages sont l'une des principales sources de la pollution de l'eau à travers le monde : le drainage minier acide (DMA) (Bell et al., 2001). Les résidus miniers, lorsqu'ils contiennent encore des minéraux sulfurés après traitement, s'oxydent lorsqu'ils sont soumis aux conditions atmosphériques, précipitations et oxygène, et génèrent des effluents acides et potentiellement riches en métaux (Khoeurn et al., 2019; Nordstrom et al., 2000). Cette réaction chimique demande une surveillance importante de façon à prédire, contrôler et traiter le DMA. L'industrie minière se doit d'assurer un stockage durable aussi bien physique pour limiter les risques liés à des ruptures de digue lorsqu'elles sont utilisées pour stocker des résidus de traitement ou effluents, que chimique lorsque les réactions chimiques accompagnant la diagénèse de ces résidus ne sont pas totalement maitrisées. Le DMA peut durer plusieurs dizaines d'années après la fermeture des mines (Akcil et Koldas, 2006). Mais le DMA n'est pas la seule problématique environnementale des sites miniers. Même lorsque ce dernier est limité ou n'est pas présent sur les sites, les effluents miniers peuvent être concentrés en métaux (métaux de transition, métalloïdes, métaux lourds) lorsque l'eau rentre en contact avec des roches mises à nu lors de l'exploitation en surface ou en profondeur. Par extension, dans les cas où l'exploitation du minerai se fait par lixiviation sur des terrils stockés en surface, les réactifs utilisés pour générer la lixiviation statique peuvent toujours être présents au sein du matériau et il en résulte des effluents acides et concentrés en métaux. Ces effluents miniers nécessitent un traitement des eaux avant d'être rejetés dans l'environnement en suivant les normes environnementales. La Figure 1.1 résume les différents impacts que peut engendrer une exploitation minière lors de son fonctionnement mais aussi après sa fermeture.



Figure 1.1 : Schéma illustrant les différents impacts que peut engendrer une exploitation minière. Les différentes infrastructures minières peuvent engendrer des infiltrations (stockage de résidus, tas de stériles), modifier les écoulements (Travaux miniers souterrains (TMS), mine à ciel ouvert (MCO)), éroder et déstabiliser les sols, et impacter la qualité de l'air, des sols et de l'eau souterraine ou de surface (schéma modifié de GEODERIS <u>https://geoderis.fr/lapres-mine/thematiques/environnement/</u>).

Le changement climatique (CC) est un enjeu important pour la gestion des stockages de résidus miniers et des anciens sites miniers. Le CC devrait modifier les précipitations et températures, en particulier les évènements pluvieux extrêmes (fréquence et intensité) pouvant modifier le fonctionnement géochimique et la stabilité physique des stockages (Nordstrom, 2009).

La plupart des pays ont développé des réglementations depuis des dizaines d'années dans le but de réduire les impacts environnementaux lors de l'exploitation des sites et après leur fermeture. Ces réglementations imposent aux entreprises minières de réaménager et de réhabiliter les sites miniers pour assurer une gestion responsable des effluents et minimiser les risques environnementaux pour les populations locales. Les plans de réhabilitation et de réaménagement et leur coût font maintenant partie du prérequis pour les nouveaux projets miniers pour qu'ils puissent être acceptés socialement. Il convient notamment d'adapter les ouvrages des sites miniers et les stockages aux futures conditions dues au changement climatique (Aubertin et al., 2015).

1.2. Objectifs de la thèse

Les conditions d'écoulement et les risques environnementaux qui découlent des stockages de résidus de traitement dépendent de la géologie des sites, du type de stockage et des installations déjà présentes sur site. La connaissance du fonctionnement hydrogéologique des sites de stockages de résidus est essentielle afin de minimiser les risques qu'ils peuvent causer à l'environnement aujourd'hui et dans le futur. Les problématiques abordées dans cette thèse seront :

- comment la compréhension du fonctionnement hydrologique à l'échelle des stockages de résidus et/ou à l'échelle du bassin versant aide-t-elle à la gestion des sites dans le présent ?
- comment assurer une gestion responsable des sites de stockages de résidus miniers à l'horizon 2100 ?

La gestion à court et long terme des anciens sites miniers nécessite une connaissance de leur fonctionnement hydrogéologique afin de minimiser les risques de pollution des écosystèmes liés aux effluents issus des stockages de résidus. La disponibilité des données d'intérêt (niveaux piézométriques, débits, précipitations, données géochimiques) à un pas de temps fin est nécessaire pour analyser la réaction des débits ou des niveaux piézométriques aux précipitations. Dans le cadre de cette thèse, les jeux de données historiques acquis préalablement sur les 3 sites par l'AMF ont été complétés par de l'acquisition à un pas de temps plus fin que le suivi historique via la mise en place de nouvelles instrumentations. Ainsi, l'analyse fine des données permet de comprendre le fonctionnement hydrogéologique des sites, déterminer les zones drainées et créer un modèle conceptuel des écoulements. L'analyse des données apporte une première connaissance des interactions entre les précipitations et le niveau piézométrique ou le débit. Ces informations sont ensuite synthétisées en des modèles conceptuels de fonctionnement hydrodynamique spécifiques pour chaque site. Ces modèles conceptuels peuvent être traduits en des modèles numériques qui diffèrent selon les sites miniers et les échelles spatiales en adaptant les modèles à chaque entité. Les modèles apportent des connaissances supplémentaires lorsque les données sont manquantes et permettent de tester divers scénarios actuels ou futurs de réaménagement et de gestion des flux (optimisation du traitement, dimensionnement d'ouvrage de collecte ou de réception des eaux, volume des flux) en intégrant en particulier l'impact du changement climatique et les modifications qu'il peut engendrer à différentes échelles temporelles (annuelle, saisonnière, journalier). La Figure 1.2 résume la méthodologie générale de la thèse.



Figure 1.2 : Schéma de la méthodologie développée dans cette thèse.

Dans le cadre de la thèse, trois sites d'étude ont été sélectionnés de manière à représenter les principaux types de stockage et les différentes modalités d'écoulement au sein des résidus : en comblement dans une ancienne mine à ciel ouvert sous couverture solide, dans une vallée comblée et sous forme de terril en surface. Dans les différents stockages étudiés, les résidus sont recouverts d'une couche de stériles miniers allant de quelque mètre à une dizaine de mètres afin que les résidus ne soient pas à l'air libre. Cette couverture permet de limiter la dispersion des résidus de traitement, mais également dans le cas des résidus de minerai d'uranium de jouer le rôle de barrière radiologique pour limiter l'exposition au ²²²Rn, gaz radioactif issu de la chaîne de décroissance de l'uranium. Les trois sites choisis sont des anciennes mines d'uranium, actuellement gérées par le département Après-mines France (AMF) d'ORANO. Il s'agit des sites de Bellezane en Haute-Vienne, Bertholène dans l'Aveyron et Le Cellier en Lozère (Figure 1.3). Ces trois sites de stockage de résidus de traitement sont aujourd'hui des installations classées pour l'environnement (ICPE) et font ainsi l'objet d'une surveillance environnementale dédiée (air, eau, sol, chaîne alimentaire) démontrant l'absence d'impact radiologique et sanitaire. Ils présentent également chacun une station de traitement des eaux avec un traitement actif ou passif pour traiter les eaux minières avant rejet vers l'environnement.



Figure 1.3 : Localisation des trois sites d'étude en France.

Le stockage de résidus du site de Bertholène (Figure 1.4a) est caractérisé par un drainage minier acide avec des rejets acides (pH~3,5) et des concentrations significatives en métaux ($SO_4^{2^-} = 10^{-2}$ mol/L, Al = 10^{-4} mol/L, Fe, Mn = 10^{-5} mol/L et U = 10^{-6} mol/L). Le stockage comble une vallée et est composé d'une alternance de couches de stériles miniers et de résidus miniers. Une

couche d'une épaisseur de dix mètres de stériles sépare les résidus de la surface. Un drain en galet reposant sur un géotextile collecte les eaux sous le stockage pour les acheminer vers la station de traitement. L'étude porte sur le fonctionnement hydrodynamique du bassin versant (Figure 1.4b) et l'origine des eaux générant le DMA au niveau du stockage. Deux nouveaux piézomètres ont été forés au sein même du stockage et un suivi piézométrique journalier sur 9 piézomètres a été mis en place. Ces nouvelles données apportent des connaissances sur les conditions d'écoulement dans le stockage et sur la nappe affleurante des gneiss dans le bassin versant. Le modèle développé représente le bassin versant de façon simplifiée et sans le stockage de résidus. Le fonctionnement actuel du site en régime permanent est simulé et un scénario de couverture sur le stockage est testé pour voir l'influence de la couverture sur les niveaux piézométriques et les débits du site



(a)



Figure 1.4 : (a) Site de Bertholène en exploitation en 1992 (à l'arrière-plan se trouve le stockage de résidus et la mine à ciel ouvert et au premier plan se trouve les différents bassins de traitement des eaux et les stalles de lixiviation) et (b) stockage de résidus avec une alvéole de stockage des boues de traitement des eaux en 2019.

L'étude du site du Cellier (Figure 1.5a) porte sur un ancien terril de lixiviation statique réaménagé (Figure 1.5b, reprofilé, avec mise en place d'une couverture de stériles pour limiter tout risque radiologique lié à l'émanation de radon) qui génère des effluents acides (pH~3,5) qui sont collectés et envoyés vers une station de traitement des eaux. L'origine de l'acidité de ces effluents est l'acide résiduel présent au sein de ces résidus et qui s'accompagne de concentrations significatives en métaux (SO₄²⁻ = 10⁻² mol/L, Al = 5x10⁻³ mol/L, Fe = 10⁻⁴ mol/L et U = 10⁻⁵ mol/L). L'instrumentation des drains qui récupèrent les effluents de ce terril offre la possibilité de mieux comprendre son fonctionnement à une échelle journalière et sa réaction lors de fortes précipitations. L'eau s'écoule en conditions non saturées à travers le terril et l'écoulement est simulé avec un modèle à double porosité pour représenter les chemins préférentiels. Le modèle intègre aussi la présence de la végétation à la surface du terril. Ce modèle fonctionne en régime transitoire et permet la simulation des débits s'écoulant à travers le terril et de l'évapotranspiration réelle jusqu'en 2100. Les simulations montrent l'évolution des débits à l'échelle annuelle et le volume généré lors d'évènements extrêmes pluvieux pour gérer de façon responsable les effluents miniers.



(a)



Figure 1.5 : (a) Site du Cellier en exploitation en 1978 (à l'arrière-plan se trouve les trois tas de lixiviation statique et au premier plan la mine à ciel ouvert et l'usine de traitement) et (b) terril de résidus étudié en 2019 recouvert de végétation.

L'étude du site de Bellezane porte sur l'ensemble du bassin versant et ses différents flux d'eau (Figure 1.6a). Sur ce site, les résidus sont stockés dans une ancienne mine à ciel ouvert et sont recouverts de stériles. L'arrêt du pompage à la fin de l'exploitation a provoqué une remontée de la nappe qui recouvre aujourd'hui la majeure partie des résidus miniers. Ce site ne présente pas de drainage minier acide car les résidus ont fait l'objet d'une neutralisation avant mise en place. Le site collecte des eaux provenant également d'autres termes sources (autre site servant de stockage de résidus, exhaure des travaux miniers souterrains, verses à stériles) dont certains sont concentrés en radium (226 Ra > 0,5 Bq/L) et en uranium (U = 10⁻⁶ mol/L). Les effluents des différents pôles sont collectés pour être traités et rejetés après avoir décanté dans trois bassins (Figure 1.6b). Les arrivées de chacun de ces pôles ont été instrumentées pour compléter le suivi historique et avoir des données journalières (débit, conductivité électrique). L'analyse des données récoltées offre la possibilité de déterminer les surfaces drainées et de comprendre le fonctionnement hydrogéologique de chaque pôle. Le modèle du bassin versant intègre, depuis la sortie des drains jusqu'à l'exutoire du bassin versant, les diverses arrivées d'eau grâce à des modèles hydrologiques indépendants ainsi que les différents aménagements hydrauliques. L'étude des mélanges des ions sulfate (considérés ici comme traceurs inertes) sur l'ensemble du site permet de valider le modèle hydrologique et la proportion de chaque partie. Enfin, le modèle est utilisé pour simuler l'évolution des débits et de l'évapotranspiration jusqu'à la fin du XXI^e siècle.



Figure 1.6 : (a) Site de Bellezane en exploitation dans les années 90 (mine à ciel ouvert qui sert de stockage de résidus avant le réaménagement) et (b) bassin de rejet après traitement en 2021.

Le Tableau 1.1 résume les particularités rencontrées sur les trois sites étudiés dans cette thèse. Ils présentent des caractéristiques différentes notamment au niveau de la complexité des infrastructures minières et des dimensions spatiales des objets d'études (du tas de résidus au bassin versant). Les conditions de stockage et les problématiques environnementales résument les différentes possibilités qui peuvent être rencontrées sur les sites miniers. Enfin, l'étude porte sur l'infiltration verticale dans des conditions non saturées (Le Cellier), la simulation des débits de surface à l'échelle d'un bassin versant (Bellezane) et la simulation de la nappe dans le bassin versant de Bertholène.

Tableau 1.1 : Résumé des configurations des stockages de résidus, des conditions d'écoulement
présentes sur les trois sites étudiés et des échelles d'études.

Site	Configuration du stockage de résidus	Problématique environnementale	Echelle d'étude	Condition d'écoulement
Le Cellier	A la surface	Acidité liée à la lixiviation statique	Stockage : 10 ha	Non saturée
Bertholène	Dans une vallée Valée comblée de résidus et de stériles miniers Digue de stériles Niveau piézométrique	Acidité et traces de métaux	Bassin versant : 234 ha	Saturée
Bellezane	En partie recouvert par la nappe Niveau piézométrique MCO comblée de résidus MCD comblée de résidus Granite	Traces de radium et uranium	Bassin versant : 263,5 ha	Modélisation hydrologique

1.3. Organisation du mémoire

Ce mémoire est divisé en 7 chapitres.

Le chapitre 2 résume l'état de l'art sur les différents sujets abordés dans cette thèse.

Le chapitre 3 présente une partie des méthodologies utilisées dans cette thèse.

Le chapitre 4 traite du site de Bellezane (Haute-Vienne, France) et de la caractérisation de chaque pôle d'arrivée d'eau dans le bassin versant récepteur. L'analyse de données permet de comprendre la dynamique de chaque pôle et d'estimer les limites des bassins versants hydrogéologiques drainés. Un modèle hydrologique et de mélange est développé avec l'utilisation du logiciel GoldSim®. Le modèle hydrologique est validé par le mélange des eaux de chaque pôle en se basant sur la conservation des ions sulfate de l'arrivée à la station de traitement jusqu'à l'aval du site. Le modèle est utilisé pour simuler l'évolution des débits jusqu'à la fin du XXI^e siècle.

Le chapitre 5 est un article publié concernant le site de Bertholène (Aveyron, France) dans lequel l'analyse des données piézométriques permet de comprendre le fonctionnement hydrogéologique du bassin versant. La modélisation du bassin versant du site est réalisée avec MODFLOW et valide le fonctionnement du site. Un scénario de couverture sur le stockage est simulé à partir du modèle et conclut sur l'impact de la couverture sur les niveaux piézométriques et les débits du site.

Le chapitre 6 est un article qui sera soumis prochainement portant sur le site du Cellier (Lozère, France). Il présente la simulation des écoulements à saturation variable dans un parc à résidus avec HYDRUS. Le modèle intègre les écoulements rapides par l'utilisation de la double porosité ainsi que la présence de végétation sur la pile de résidus par la prise d'eau racinaire. Les dimensions des bassins de collecte des eaux sont testées grâce à la simulation des débits jusqu'à la fin du siècle permettant d'assurer une gestion responsable des effluents.

Le dernier chapitre met en perspective les 3 sites étudiés dans le cadre de cette thèse, il permet d'identifier les points communs de discussion et de proposer des perspectives pour chaque site mais aussi pour l'Après-Mines en général.

Chapitre 2 Etat de l'art

2.1. Exploitation de l'uranium

Dans le monde en 2021, 2,8 milliards de tonnes de métaux ont été minées dont 93 % sont utilisés pour de la production de fer. Le restant, 181 millions de tonnes, est utilisé dans les différentes industries (BTP, chimie, énergie, électronique) ont été minées durant l'année 2021. Parmi ces 181 millions de tonne de métaux, l'uranium ne représente que 0,03 % contre 37,4 % pour l'aluminium et 11,6 % pour le cuivre (USGS, 2022). A l'échelle de tous les métaux, l'uranium ne représente qu'une infime partie de l'extraction annuelle.

L'exploitation minière de l'uranium à l'échelle industrielle s'est développée avec la découverte de la fission nucléaire en 1939, puis avec le développement des programmes civils pour produire de l'électricité à partir de 1954. L'exploitation de l'uranium a commencé par de petites mines à travers le monde avant le développement de gisements plus importants de plusieurs milliers de tonnes. Durant les années 80, les mines ayant des coûts élevés et exploitant des filons avec une teneur faible ont fermé. Ces changements ont particulièrement affecté la France et les Etats-Unis. Avec un marché du prix de l'uranium à la baisse entre 2008 et fin 2020, les mines opérationnelles sont celles présentant des coûts d'exploitation pouvant supporter des prix de l'uranium relativement faibles sur le marché (IAEA, 2000). Depuis 2021, le prix de l'uranium augmente d'environ 10 \$ par an, ce qui crée une nouvelle dynamique et ouvre de nouvelles perspectives d'exploitation.

En 2022, la production mondiale s'élève à 49 355 tonnes d'uranium et les cinq principaux pays producteurs sont le Kazakhstan (43% de la production mondiale), le Canada, la Namibie, l'Australie et l'Ouzbékistan (World Nuclear Association, 2023). La demande en uranium devrait augmenter avec la construction de nouveaux réacteurs à travers le monde.

2.1.1. Types d'exploitation de l'uranium

L'exploitation de l'uranium est assez similaire à celle des autres minerais et son extraction se fait de trois façons différentes : l'extraction en mine à ciel ouvert, l'extraction en travaux miniers souterrains et la récupération in situ.

L'exploitation en mine à ciel ouvert (MCO) est utilisée pour des gisements proches de la surface allant généralement jusqu'à 100 m de profondeur (Figure 2.1). Cette méthode extrait des quantités importantes de roches solides et crée des dégâts importants dans le paysage impactant aussi l'eau, les sols et l'air. A la fin de l'exploitation, les cratères peuvent être en partie ou totalement remblayés et revégétalisés. Ils peuvent aussi servir de lacs artificiels pour stocker des résidus miniers.


Figure 2.1 : Mine à ciel ouvert en exploitation de la mine d'uranium de Bellezane dans les années 1980 (source : ORANO).

Pour des gisements plus profonds, les travaux miniers souterrains (TMS) sont généralement privilégiés en complément ou non des MCO. La mine est exploitée en accédant au gisement par des galeries. Le minerai d'uranium est remonté à la surface pour être traité. A la fin de l'exploitation, les galeries sont généralement remblayées pour atténuer le risque d'affaissement du sol et fermées pour éviter toute intrusion et risque d'exhalation de radon. Les TMS peuvent là aussi engendrer une pollution des eaux souterraines et augmentent le risque d'effondrement du sol à proximité de la zone exploitée.

La récupération in situ (ISR) contribue à la récupération de l'U des gisements profonds et ayant une plus faible teneur en uranium. Cette méthode est très utilisée au Kazakhstan et le sera aussi en Mongolie pour le nouveau projet d'exploitation signé en octobre 2023. Elle possède l'avantage d'avoir une faible empreinte au sol et de ne générer que peu de résidus et stériles miniers. L'ISR consiste à dissoudre l'uranium dans une couche perméable captive. Les effluents générés par la dissolution dans l'aquifère sont pompés pour en extraire le métal à la surface. La connaissance du fonctionnement hydrogéologique de l'aquifère est primordiale pour contrôler les flux et ne pas générer de pollution des nappes souterraines.

L'exploitation en MCO et/ou TMS entraîne l'extraction de quantités importantes de roches solides car la proportion de minerai (économiquement exploitable) est très faible par rapport à la quantité de roche extraite. Les roches solides ne présentant pas d'intérêt économique sont appelés stériles miniers. Les stériles peuvent servir pour la construction et l'aménagement des sites miniers et pour le stockage des résidus (création de digues, couverture).

2.1.2. Traitement du minerai

Pour récupérer l'uranium, le minerai doit subir plusieurs étapes et un traitement chimique. La valorisation du minerai dépend de sa teneur. Pour un minerai pauvre, la lixiviation statique offre la possibilité de récupérer de l'uranium à faible coût. Pour le minerai riche, la lixiviation dynamique ou accélérée est préférée pour récupérer le maximum d'uranium (Orano Mining, 2019). La lixiviation est un procédé d'extraction qui consiste à mettre en solution le métal recherché par l'ajout d'une solution oxydante acide (souvent de l'acide sulfurique) ou alcaline. La première étape est commune aux deux types de lixiviation et consiste à broyer et concasser le minerai pour faciliter la réaction de lixiviation.

Pour les minerais concentrés, la lixiviation dynamique se déroule généralement en cuves agitées transformant le minerai en pulpe. Le produit est ensuite purifié et concentré et l'uranium est extrait sur des résines échangeuses d'ions ou par extraction par solvants organiques. Après séchage, il en résulte le concentré d'uranium, ou « yellow cake » (diuranate de Na/Mg (Na₂U₂O₇ ou MgU₂O₇), ou octaoxyde de triuranium U₃O₈).

Pour les minerais à faible teneur, la lixiviation statique consiste à entasser le minerai sous forme de terrils sur des aires étanches et drainées. Le terril est arrosé d'une solution acide pendant plusieurs mois générant des effluents concentrés en uranium lorsqu'il s'écoule à travers le terril. La solution est récupérée et traitée pour obtenir le concentré d'uranium. Dans certaines situations, l'acide utilisé lors du traitement en terril reste présent au sein des résidus pendant plusieurs années s'ils ne font pas l'objet d'une neutralisation. Dès lors, si aucune couverture hydraulique n'est mise en place, lors de chaque évènement pluvieux, l'eau qui s'infiltre remet en solution l'acide résiduel entraînant une génération d'effluents acides.

2.1.3. Le drainage minier acide

Le DMA est considéré comme le principal phénomène affectant les écosystèmes à proximité des sites miniers. Il affecte l'ensemble des exploitations minières quel que soit le métal extrait dès lors que le minerai ou les roches excavées pour accéder au minerai contiennent des sulfures.

Le DMA se produit lorsque les minéraux contenant du soufre, souvent présents dans le minerai résiduel ainsi que dans les stériles miniers (principalement la pyrite (FeS₂) et la pyrrhotite (Fe_(1-X)S)) réagissent avec l'eau et l'oxygène. Les minéraux sulfurés s'oxydent et génèrent une solution acide accompagnée de concentrations en métaux généralement supérieures au bruit de fond géochimique naturel composée de fer (Fe), mais aussi parfois de métaux lourds et métalloïdes comme l'arsenic (As), le plomb (Pb), l'uranium (U), le mercure (Hg) et le sélénium (Se) (Tabelin et al., 2018). Ces métaux sont issus d'une phase minérale présente originellement dans le minerai ou proviennent du traitement chimique auquel les résidus ont été exposés.

L'oxydation de la pyrite par l'oxygène peut se décrire en 4 étapes. L'équation 2.1 montre l'oxydation de la pyrite par l'oxygène. Il en résulte la production de deux moles d'acide pour une mole de pyrite. Ensuite, le fer ferreux (Fe^{2+}) généré précédemment s'oxyde (équation 2.2) et forme du fer ferrique (Fe^{3+}). Ce dernier subit une réaction d'hydrolyse (équation 2.3) formant de nouveau trois moles d'acide. Enfin, l'oxydation de la pyrite par le fer ferrique (Fe^{3+}) peut

amplifier le phénomène de DMA dans des conditions acides jusqu'à un pH ~ 3 (formule 2.4) avec la génération de 16 moles d'acide pour 1 mole de pyrite. L'oxydation de la pyrrhotite suit les mêmes étapes que la pyrite avec la génération de 2 moles d'acide par mole de pyrrhotite.

$$FeS_2 + \frac{7}{2}O_2 + H_2O \rightarrow Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 2H^+$$
 2.1

$$Fe^{2+} + \frac{1}{4}O_2 + H^+ \rightarrow Fe^{3+} + \frac{1}{2}H_2O$$
 2.2

$$Fe^{3+} + 3H_2O \to Fe(OH)_3 + 3H^+$$
 2.3

$$FeS_2 + 14Fe^{3+} + 8H_2O \rightarrow 15Fe^{2+} + 2SO_4^{2-} + 16H^+$$
 2.4

Plusieurs facteurs influencent la génération du DMA comme les propriétés minéralogiques du minerai, le type de traitement, la nature des résidus et des stériles miniers et les conditions climatiques dont la température. Les minéraux carbonatés ou silicatés, lorsqu'ils sont présents dans les résidus miniers, jouent le rôle de neutralisation de l'acide et peuvent dans certains cas diminuer voire arrêter la génération du DMA (Dold, 2017 ; Paktunc, 1999). Pour limiter le DMA, il est recommandé d'exclure l'un des réactifs par différentes techniques au niveau des stockages de résidus (couverture, désulfurisation, submersion). Lorsque ces méthodes ne sont pas appliquées, les effluents miniers sont collectés puis traités dans des stations de traitement actives ou passives pour que les eaux puissent être rejetées après traitement selon les normes environnementales.

2.1.4. Solutions pour le stockage de résidus de traitement sur le long terme

Les résidus générés par l'exploitation et le traitement du minerai doivent être stockés de manière durable, aussi bien physiquement que chimiquement, dans des sites de stockage afin de limiter les impacts environnementaux et sanitaires. Ces stockages peuvent prendre des formes différentes selon les caractéristiques de chaque site (terrils, verses, stockage dans des vallées derrière des digues de stériles ou dans les mines à ciel ouvert).

Les stockages de résidus miniers peuvent présenter des risques environnementaux majeurs puisque les résidus peuvent y être chimiquement actifs. En France, ils sont ainsi catégorisés en installations classées pour l'environnement (ICPE). La génération du DMA est un processus sur le long terme et ne peut être négligée. Différentes solutions existent pour diminuer ou arrêter le DMA et sont basées sur l'exclusion de l'un des réactifs, c'est-à-dire soit les minéraux sulfurés, soit l'oxygène, soit l'eau (SRK, 1989). Les méthodes de prévention de génération du DMA sont propres à chaque site et dépendent des conditions locales comme la ressource en eau, le climat, la géologie, les aménagements industriels et les propriétés des résidus miniers. La gestion des résidus doit être étudiée en amont de l'exploitation pour une meilleure intégration des évolutions chimiques après stockage.

L'exclusion des minéraux sulfurés est la méthode la plus radicale mais celle-ci est assez coûteuse. Deux méthodes sont utilisées dans l'industrie minière. La désulfurisation par flottation consiste à éliminer la fraction de sulfures problématiques par différence de densité avec le reste des résidus miniers (Azzouzi, 2015). La biolixiviation dégrade les minéraux sulfurés et récupère les métaux grâce à l'action de bactéries. L'acidité générée doit être dès lors également gérée. Ces méthodes d'exclusion doivent être réalisées à la fin du traitement du minerai.

Il est possible de diminuer l'apport d'eau en imperméabilisant le stockage pour réduire la génération du DMA et l'émanation de radon dans le cas spécifique des mines d'uranium (IAEA et OECD, 2002). Dans les climats tempérés et humides, l'étanchéité se fait avec une couche de matériaux ayant une faible conductivité hydraulique comme des stériles compactés ou de l'argile et en utilisant des géomembranes et des géotextiles (Hersey et Power, 2023 ; Mylona et al., 2007, Figure 2.2a). Dans les climats secs avec une forte évapotranspiration, les stockages peuvent être recouverts d'une couche (ou de plusieurs couches) de matériaux fins en surface pour assurer la rétention d'eau surmontant une couche de matériaux grossiers créant une barrière capillaire (Bossé et al., 2016 ; Jamson et al., 2019). L'eau est ainsi stockée par capillarité dans la couche de matériaux fins et évaporée lors des périodes sèches (Figure 2.2b).





Dans les climats humides, limiter l'apport d'oxygène se révèle être la meilleure solution pour contrôler le DMA (Aubertin et al., 2016; Brett et al., 2009). Une des solutions est de noyer entièrement les résidus miniers, stoppant ainsi l'oxydation. Cette solution ne peut se réaliser qu'en utilisant des lacs créés pour le stockage avec un suivi géotechnique sur le long terme

(Figure 2.3). Cette solution convient pour les climats ayant des précipitations supérieures à l'évaporation. Dans les climats secs avec une forte évapotranspiration, l'utilisation d'une nappe surélevée artificiellement ou non permet de noyer partiellement les résidus (Ethier et al., 2018 ; Ouangrawa et al., 2010). Le stockage est aussi recouvert d'une couche de matériaux grossiers pour augmenter l'infiltration, diminuer le ruissellement et les pertes par évaporation.



(*a*)



La mine à ciel ouvert en eau



(b)

Figure 2.3 : (a) Schéma illustrant différentes méthodes de stockage des résidus sous une couche d'eau limitant la diffusivité de l'oxygène (adapté de <u>http://www.gardguide.com</u>) et (b) photographie de l'ancienne minier à ciel ouvert servant de stockage de résidus du site du Bernardan en Haute-Vienne en 2008 (87, France, source : AREVA NC).

Enfin, les couvertures avec des effets de barrière capillaire limitent aussi l'entrée d'oxygène en utilisant plusieurs couches de matériaux différents (Figure 2.4). Une couche de protection, placée sous la surface végétalisée, limite l'intrusion des racines. En dessous, une couche de rétention d'humidité se trouve entourée de deux couches de matériaux grossiers. La couche de rétention a pour but d'être toujours saturée pour limiter la diffusion de l'oxygène. La couche de matériaux grossiers du dessus draine l'eau et celle d'en dessous préserve l'humidité de la couche de rétention par contraste de granulométrie (Hotton et al., 2020 ; Pabst et al., 2018).



Figure 2.4 : Configuration typique d'une couverture à effet de barrière capillaire (adapté de Mylona et al., 2007).

Il est aussi possible de neutraliser les résidus (à la chaux par exemple), ce qui a pour but de stabiliser le pH alcalin mais qui peut générer une augmentation de solubilité des métaux en conditions alcalines et carbonatées.

Toutes ces méthodes visent à limiter ou stopper la génération du drainage minier acide. Pour que ces solutions soient pérennes dans le temps, il est important de suivre ces aménagements et ces stockages à court et long terme car elles ne réduisent pas la quantité de minéraux sulfurés. La présence de minéraux sulfurés laisse planer le risque de pollution environnementale dans le futur.

2.1.5. L'exploitation de l'uranium en France

L'exploitation de l'uranium de façon industrielle s'est déroulée entre 1949 et 2001 sur le territoire français dans 247 sites miniers uranifères (recensement exhaustif intégrant mines exploitées mais également simples travaux d'exploration). Les mines françaises étaient généralement petites et exploitées en MCO et/ou avec des TMS principalement dans des gisements en milieu granitique ou gréseux. Durant ces 50 années, la production française a généré quelque 80 000 tonnes d'uranium, ce qui représente environ une année et demie de la production mondiale actuelle. En France, la production d'uranium a généré près de 200 Mt de stériles miniers et 52 Mt de résidus miniers (CartOmines et Orano Mining, 2021). En France, les résidus miniers sont considérés comme des déchets issus du procédé au sens du Code pour l'environnement (ANDRA, 2018), c'est pourquoi ils sont stockés dans des installations classées pour l'environnement (ICPE) sur 16 sites de stockage de résidus miniers en France (Figure 2.5).



Figure 2.5 : Localisation des 16 sites de stockage de résidus avec ou sans station de traitement des eaux (source : Orano Mining, 2021).

Les risques environnementaux dus au stockage de résidus ont été présentés précédemment (DMA, rejet de métaux) auxquels il faut rajouter les risques liés à l'émanation de radon liée aux descendants radioactifs de l'uranium non extraits avec l'uranium. La gestion des sites de stockage de résidus miniers est donc un enjeu important pour limiter leur impact environnemental et sanitaire. Dans le cadre du Plan National de Gestion des Matières et Déchets Radioactifs (PNGMDR), il est demandé entre autres choses de développer des modèles hydrogéochimiques capables de prédire l'évolution du pH, ou/et des concentrations en métaux, uranium, sulfate et radium 226 en sortie de ces sites sur le long terme.

2.1.6. Rôle de l'Après-mines

Parmi les 247 sites miniers recensés, 236 sont sous la responsabilité d'ORANO Mining et gérés par la Direction de l'Après-Mines France (AMF). Seulement 115 sont sous police des mines effective. L'AMF assure la surveillance des sites miniers réaménagés d'un point de vue environnemental, sanitaire et sécuritaire et est chargée d'envisager la seconde vie des sites (Direction des Risques du Sol et du Sous-sol, 2017). L'AMF réalise un suivi environnemental sur les sites en réalisant des prélèvements sur les sols, l'eau, la chaîne alimentaire et l'air. L'objectif de ce suivi est de contrôler la stabilité des ouvrages de stockage et l'intégrité de la couverture, l'impact radiologique (< 1 mS/an), l'impact atmosphérique (poussières, radon et

rayonnement), l'impact aquatique (suivi piézométrique, qualité des eaux de surface/souterraines, sédiments, faune et flore) et l'impact sur le milieu terrestre (sols, faune et flore).

Sur les sites ayant une station de traitement des eaux, le traitement est passif et/ou actif (Figure 2.6) (Orano Mining, 2021). Le traitement actif se fait par résines échangeuses d'ions ou par ajout de réactif chimique pour créer une réaction de précipitation-coagulation-floculation-décantation. Le traitement passif consiste à utiliser des drains calcaires pour augmenter le pH, à piéger les radioéléments sur des hydroxydes de fer, à réaliser des traitements sur tourbe en zone humide et des traitement par filtration sur des zéolithes (traitement sans ajout de produit chimique). Le traitement des eaux demande des aménagements tels que des bassins de décantation et de rejet qui doivent être dimensionnés pour les conditions météorologiques actuelles et futures. L'objectif final est de remettre ces sites à l'état naturel avec très peu ou pas d'intervention humaine et de les valoriser avec des activités agricoles, industrielles ou des centrales photovoltaïques.



Figure 2.6 : Station de traitement de Bertholène.

2.2. Changement climatique

La gestion des sites de stockage de résidus miniers est un enjeu sociétal et environnemental important qui s'inscrit dans la durée. Il convient donc d'étudier l'impact du changement climatique sur ces sites de façon à anticiper de possibles changements à différentes échelles de temps. Selon les trajectoires représentatives de concentration (RCP, *Representative Concentration Pathways* en anglais), la température en France devrait augmenter de 2°C à 5°C et les précipitations devraient varier de +2 à +6 % d'ici à la fin du XXIe siècle (Soubeyroux et al., 2020). Les projections climatiques globales issues du projet d'intercomparaison des modèles couplés (CMIP, *Coupled Model Intercomparison Project*) font intervenir un large choix de modèles et de scénarios. La comparaison entre tous ces modèles assure une analyse robuste concernant l'évolution du climat futur. Pour être utilisées sur des échelles plus fines (bassin versant), les projections climatiques globales sont descendues d'échelle et corrigées de biais par différentes techniques.

2.2.1. Scénarios d'émissions

Les scénarios RCP représentent l'évolution de l'émission des gaz à effet de serre (GES) dans le 5^e rapport du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (IPCC, 2014). Dans le 6^e rapport (IPCC, 2021), les scénarios sont nommés les trajectoires socio-économiques communes (SSP, *Shared Socioeconomic Pathways*) et intègrent l'évolution de la démographie, du produit intérieur brut, de l'éducation, etc. Les scénarios RCP ont leur équivalent dans les scénarios SSP et restent valides. Les scénarios RCP sont représentés par des trajectoires de forçage radiatif (Moss et al., 2010). Trois scénarios sont considérés dans cette thèse (Figure 2.7). Le scénario RCP2.6 est le plus optimiste et est conforme avec l'accord de Paris sur le climat. Le scénario RCP8.5 est le plus pessimiste, sans politique d'atténuation des GES. Le scénario médian est considéré comme le plus probable pour le futur avec une augmentation puis une stabilisation des émissions de GES (RCP4.5). Ces trois scénarios impactent différemment la température et les précipitations à la fin du siècle.



Figure 2.7 : Scénarios d'émissions de gaz à effet de serre jusqu'en 2100 (source : IPCC, 2014).

2.2.2. Modélisation climatique et descente d'échelle

La modélisation climatique se base sur des modèles de circulation générale (GCM, *General Circulation Models*) ayant une résolution spatiale de 100 km. Le but de ces modèles est de reproduire au mieux l'état réel de l'atmosphère mais ils ne tiennent pas compte des processus régionaux, nécessaires pour réaliser des études hydrogéologiques à l'échelle locale. Pour cela, des modèles régionaux (RCM, *Regional Climate Models*) simulent le climat à partir des sorties des GCM à une résolution spatiale plus fine (de 10 à 20 km). Les RCM intègrent les phénomènes liés à la topographie, les phénomènes extrêmes et une meilleure variabilité temporelle du bilan hydrologique (Prein et al., 2016). Avec les RCM, les processus physiques sont mieux simulés même si ces modèles ne prennent que l'atmosphère et la végétation en compte. Cependant les projections issues des RCM ne peuvent pas être directement utilisées à l'échelle locale car elles présentent des biais par rapport aux observations (Figure 2.8).



Figure 2.8 : Etapes de descente d'échelle depuis la modélisation globale à la modélisation régionale et la correction des biais à l'échelle locale (modifié du rapport DRIAS2020 - Soubeyroux et al., 2020).

Pour utiliser les données climatiques globales puis régionales à des échelles plus fines, les données sont descendues d'échelle pour mieux représenter la température et les précipitations grâce à une topographie plus précise (Montesarchio et al., 2014). Les deux approches pour la descente d'échelle sont l'approche statistique et dynamique (Fowler et al., 2007). La première repose sur la relation statistique entre les données historiques locales et les sorties des modèles de climat sous réserve d'avoir une période de données suffisamment longue. De nombreuses méthodes statistiques existent comme la méthode DSClim (Page et al., 2009), la méthode CDF-t (Cumulative Distributive Function – transform, Michelangeli et al., 2009), la méthode « quantile-quantile » (Déqué, 2007) et la méthode ADAMONT développée par Météo-France (Verfaillie et al., 2017). La descente d'échelle dynamique est très demandeuse en temps puisqu'elle consiste à résoudre la physique et la dynamique du système climatique régional. Au

vu du grand nombre de méthodes possibles, aucune n'est universelle et toutes sont débattues dans la communauté scientifique.

2.2.3. Données DRIAS-2020

Le jeu de données DRIAS-2020 utilisées dans cette thèse fournit des données à haute résolution à l'échelle de la France des projections climatiques futures. Ces données sont issues du projet européen Euro-Cordex (Jacob et al., 2014, 2020) qui comprend plus d'une centaine de projections climatiques issues de CMIP5. L'ensemble DRIAS-2020 provient d'une sélection de couples GCM/RCM basée sur différents critères, comme l'utilisation des GCM les plus réalistes sur l'Europe, la diversité des RCM utilisés, l'absence d'erreur manifeste, la sélection des RCM issus de centres français de modélisation climatique et l'optimisation de la dispersion du changement climatique sur la France (Soubeyroux et al., 2020). Au final, il reste 30 simulations du climat futur pour les 3 scénarios RCP considérés. Les simulations sont corrigées de leur biais par la méthode ADAMONT qui s'approche de la méthode « quantile-quantile » en se basant sur des observations quotidiennes (ici les réanalyses SAFRAN) et prend en compte les types de temps. Les données corrigées sont ensuite projetées sur la grille SAFRAN de maillage 8x8 km². Les projections climatiques à l'échelle de la France sont disponibles sur le site DRIAS (http://www.drias-climat.fr/).

Les projections de l'ensemble DRIAS-2020 montrent une augmentation des températures pour les trois scénarios RCP par rapport à la période simulée de référence 1975-2005. A l'échelle de la France, la température devrait augmenter de +1°C pour le scénario RCP2.6, de +2,1°C pour le scénario RCP4.5 et de +3,9°C pour le scénario RCP8.5 à la fin du siècle. D'un point de vue saisonnier, les étés et les printemps devraient être plus chauds avec un réchauffement plus marqué en été. Le réchauffement est plus marqué dans le sud-est avec une différence d'environ 1°C par rapport au nord-ouest. Toutes les projections montrent une augmentation des précipitations en moyenne de +6,5% pour le scénario RCP2.6, de +2,9% pour le scénario RCP4.5 et de +1,8% pour le scénario RCP8.5 à la fin du siècle. Pour les précipitations, il y a un contraste entre le nord et le sud avec une baisse marquée dans le sud et une hausse dans le nord. De plus, les étés devraient devenir plus secs et les hivers plus humides. Les évènements extrêmes pluvieux devraient s'intensifier sur l'ensemble de la France d'environ 10%.

Dans le cadre de cette thèse, le choix s'est porté sur une comparaison de simulations du climat futur utilisant les mêmes couples de modèles GCM/RCM pour les 3 scénarios RCP (2.6, 4.5, 8.5). Cette sélection réduit à 6 le nombre de couples de modèles GCM/RCM (Tableau 2.1). L'analyse de la dispersion précipitations/températures des simulations sélectionnées montrent qu'elles sont proches de la médiane de l'ensemble DRIAS2020 pour le scénario RCP8.5 pour les étés et les hivers entre 2071 et 2100. En hiver, les deux simulations MPI-ESM simulent un climat plus froid que la médiane et légèrement plus humide sur la période 2071-2100. Le couple CNRM-CM5/ALADIN63 simule aussi un climat plus froid. Sur la même période temps mais en été, seul le modèle CNRM-CM5/RACMO22E montre un climat plus froid et humide. Les données sont disponibles au pas de temps journalier entre 1971 et 2100 avec une partie historique entre 1971 et 2005 et la projection climatique entre 2006 et 2100. Dans cette thèse,

seules les données de précipitations et de températures ont été utilisées pour l'étude du climat futur sur les sites miniers.

Tableau	2.1 :	Simulations	utilisées	dans	cette	thèse	ainsi	que	le	couple	GCM/RCM
correspon	ndant.										

Simulation	GCM	RCM
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM-ALADIN63	CNRM-CM5	ALADIN63
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI-RACMO22E	CNRM-CM5	RACMO22E
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E	EC-EARTH	RACMO22E
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	EC-EARTH	RCA4
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-8-17	MPI-ESM	CCLM4-8-17
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-REMO2009	MPI-ESM	REMO2009

2.3. Modélisation numérique des écoulements

La modélisation hydrogéologique est définie comme la représentation simplifiée d'un système hydrogéologique à différentes échelles spatiales (du pore à l'échelle globale). La modélisation hydrogéologique est utilisée depuis de nombreuses années dans le domaine minier pour la conception des mines, leur fermeture, pour évaluer les impacts potentiels des mines et pour envisager différents scénarios de réaménagement.

La plupart des modèles concerne le dénoyage des mines (Hang et al., 2009), la stabilité des digues (Fortuna et al., 2021 ; Ronchi et al., 2018) et l'écoulement à travers les stockages de résidus miniers (Blackmore et al., 2018 ; Dawood et al., 2011). Les modèles servent à analyser les données obtenues sur le terrain et comprendre le fonctionnement hydrogéologique des sites miniers. Ils s'utilisent aussi comme une aide pour la prise de décision ou la conception des ouvrages. Les modèles numériques d'écoulement peuvent être couplés à des modèles géochimiques simulant l'impact des rejets d'un ouvrage sur l'environnement. Il est alors plus facile d'identifier la source et de gérer les effluents. Pour la fermeture des mines, divers scénarios de réaménagement peuvent être simulés pour en estimer les effets sur les écoulements. Les modèles peuvent aussi aider à évaluer les modifications liées au changement climatique.

Le développement d'un modèle se doit d'être adapté aux problématiques étudiées. Le choix du logiciel de modélisation s'établit selon les données disponibles, les types d'écoulement et la complexité des processus à représenter. La modélisation hydrogéologique est un outil puissant s'il est basé sur de bonnes hypothèses et des données fiables (topographie, débits, niveaux piézométriques, granulométrie, précipitations, température). Avec la généralisation des modèles numériques, plusieurs régions ont développé des guides de bonnes pratiques pour la

modélisation hydrogéologique concernant les projets portant sur les ressources minérales (Colombie Britannique (Wels et al., 2012) et Australie (Barnett et al., 2012) par exemple).

Dans le secteur minier, de nombreux types de modèles peuvent être utilisés selon ce que l'on veut étudier, ce que l'on cherche à montrer, ce que l'on a comme données pour caler et valider le modèle et la complexité des écoulements à reproduire. Les approches de modélisation développées dans cette thèse sont toutes différentes avec un modèle de nappe à l'échelle du bassin versant (Bertholène), un modèle d'écoulement non saturé à travers un terril de résidus (Le Cellier) et un modèle intégré des écoulements incluant tous les aménagements du site (Bellezane).

2.3.1. Ecoulement saturé

Les écoulements saturés sont définis par la loi de Darcy (1856) qui exprime le débit surfacique d'un fluide incompressible à travers un milieu poreux à partir de la conductivité hydraulique à saturation du milieu (K_{sat}) et du gradient de charge du fluide (charge hydraulique en hydro(géo)logie). La charge hydraulique renseigne sur l'évolution de la nappe au cours du temps, sur les échanges entre nappes et cours d'eau proche de la surface, sur les zones de recharge de l'aquifère et la direction des écoulements.

Dans le secteur minier, la connaissance des écoulements souterrains est importante de la conception de la mine jusqu'à son réaménagement et pour l'après-mine (Rapantova et al., 2007). Pour les mines exploitées avec des TMS, il est parfois nécessaire de pomper la nappe pour atteindre le minerai ou assurer la sécurité des mines (Hang et al., 2009 ; Mu et al., 2018). La modélisation du dénoyage de la mine permet la visualisation des effets du pompage sur les zones proches de la mine et de tester différents scénarios de pompage (Mohan et al., 2022 ; Szczepiński, 2019). La modélisation du rebond de la nappe est un enjeu important lors de la fermeture de la mine et de l'arrêt du pompage. Prévoir la remontée de nappe est important pour anticiper de possibles pollutions liées aux minéraux découverts lors de l'exploitation, prédire le niveau piézométrique maximum de la zone impactée par le pompage et estimer le tassement des terrains (Adams et Younger, 2001 ; Ardejani et Singh, 2004 ; Boyaud et Therrien, 2004). Beaucoup d'études s'intéressent au drainage minier acide à différentes échelles spatiales pour simuler la pollution engendrée et le devenir des effluents (e.g. Myers, 2016 ; Obasi et al., 2023). Ces études ont en commun de modéliser les écoulements souterrains pour comprendre le fonctionnement hydrogéologique des sites miniers et leurs alentours.

Il existe de nombreux logiciels reconnus mondialement pour simuler les écoulements en conditions saturées. Dans le cadre de cette thèse, le code de calcul MODFLOW (Harbaugh, 2005) a été choisi pour l'étude du site de Bertholène. MODFLOW est mondialement reconnu et est utilisé dans de nombreux domaines (minier, agricole, eau potable, etc.). Pour notre étude, nous avons choisi d'interfacer MODFLOW avec le logiciel GMS (version 10.4, Aquaveo, 2017).

2.3.2. Ecoulement non saturé

La modélisation est très utilisée pour simuler les écoulements non saturés à travers les terrils de résidus miniers ou de stériles miniers. Ces modélisations se basent sur la résolution de l'équation de Richards (1931). Le comportement de l'eau dans un milieu non saturé est décrit par deux fonctions de la succion (ψ), la conductivité hydraulique ($K(\psi)$) et la courbe de rétention d'eau ($\theta(\psi)$, WRC, *water retention curve*). Ces deux fonctions doivent être définies pour simuler l'écoulement en milieu non saturé.

La WRC exprime la teneur en eau (θ) en fonction de la succion (ψ). Elle se mesure en laboratoire selon différentes méthodes et peut se définir selon plusieurs modèles (Brooks et Corey, 1964 ; Fredlund et Xing, 1994 ; van Genuchten, 1980). En l'absence de mesures directes, l'estimation est possible à partir de la texture du sol par un modèle donnée. Aubertin et al. (2003) ont modifié le modèle de Kovács (1981) pour permettre d'établir la courbe de rétention en utilisant seulement la taille des particules et la porosité.

La conductivité hydraulique en fonction de la succion $(K(\psi))$ peut se définir sur quelque point en laboratoire mais les techniques à employer sont difficiles à appliquer et chères. En utilisant les mêmes paramètres que ceux utilisés pour déterminer la WRC, il est possible de définir la conductivité hydraulique $(K(\psi))$ en utilisant un modèle empirique dont le plus connu est celui de van Genuchten (1980). La méthode d'estimation de la WRC développée par Aubertin et al. (2003) peut-être combinée avec des modèles statistiques permettant d'arriver à la définition de $K(\psi)$. Ces méthodes ont montré des bons résultats sur des sols composés de matériaux grossiers (Mbonimpa et al., 2006).

En supposant avoir un matériel au sein de l'empilement présentant des propriétés différentes, cette étape préliminaire est obligatoire avant de tester différentes méthodes d'empilement des résidus miniers (Fala et al., 2003) et/ou de tester des méthodes de protection pour stopper le drainage minier acide (Pabst et al., 2018). De nombreuses études montrent l'importance de bien connaître les propriétés physiques des matériaux et l'hétérogénéité de l'objet simulé (Bauser et al., 2022 ; Slimene et al., 2017). En effet, selon la taille des particules et le degré de compaction, des chemins préférentiels peuvent se produire à travers des macropores, ces derniers étant présents à toutes les échelles spatiales des écosystèmes (Clothier et al., 2008). Ces macropores peuvent provenir de matériaux plus grossiers créant des vides dans les résidus miniers (Blackmore et al., 2014 ; Broda et al., 2013) et de l'altération due le traitement chimique des résidus (Amos et al., 2015 ; Stockwell et al., 2006). L'écoulement à travers ces chemins préférentiels est souvent rapide même si un changement rapide n'implique pas toujours la présence de macropores (Nichol et al., 2005). Ces écoulements préférentiels sont difficiles à modéliser, avec parfois des incohérences lorsque le modèle est utilisé pour simuler les flux d'eau et le transport de polluants (Bauser et al., 2022 ; Haws et al., 2005). Il est important de modéliser ces écoulements rapides car ils peuvent générer une plus grande quantité de polluants (Kalisman et al., 2022) et augmenter la lixiviation des metalloïdes ou d'agir comme un puit à métaux (Garrido et al., 2014), même si l'effet de ces écoulements rapides sur la distribution de métaux n'est pas encore clair (Jarvis, 2007).

Plusieurs approches existent pour modéliser ces écoulements rapides qu'il est possible de réduire à une liste non exhaustive de deux types de modèle : le modèle double porosité et le modèle double perméabilité (Figure 2.9, Gerke et van Genuchten, 1993 ; Šimůnek et al., 2008). Le modèle double porosité se base sur le modèle mobile-immobile, où l'écoulement se produit seulement dans la région mobile (macropore). L'échange d'eau entre la région immobile et la région mobile se base sur la teneur en eau ou la pression. Le modèle double perméabilité rajoute de la complexité avec des écoulements dans la région immobile (matrice) nécessitant une paramétrisation supplémentaire pour cette région.



Figure 2.9 : Schéma des modèles physiques pour le transport d'eau pour a) le modèle homogène, b) le modèle double porosité et c) le modèle double perméabilité (modifié de Šimůnek et al., 2008).

Les modèles à double porosité ou double perméabilité représentent des phénomènes plus complexes que les modèles homogènes, avec ou sans transfert de polluants dans le domaine minier (Blackmore et al., 2018 ; Ma et al., 2014 ; Varvaris et al., 2018). La paramétrisation de ces modèles demande plus de données et peut s'avérer complexe. Des logiciels comme HYDRUS (Šimůnek et al., 2008b) intègrent ces différents types de modèles et permettent de caler les paramètres par modélisation inverse (Köhne et al., 2006, 2004). Le modèle double porosité est utilisé dans cette thèse pour simuler des écoulements rapides à travers un terril de résidus ayant subi une lixiviation statique à l'acide sulfurique.

2.3.3. Modélisation intégrée pour la gestion des flux d'eau

Les modèles hydrogéologiques à base physique, qui représentent les écoulements saturés et/ou non saturés, nécessitent une grande quantité de données et peuvent s'avérer complexes (Hrachowitz et Clark, 2017). Les modèles à réservoirs, plus souvent utilisés en hydrologie, sont une alternative intéressante. Ces modèles parcimonieux sont plus faciles à paramétrer et ne fonctionnent qu'avec peu de données d'entrée. Ils permettent de simuler le débit d'une entité à partir des précipitations et de la température et sont considérés comme une sous-catégorie des modèles « pluie-débit » nommée modèle de fonction de transfert (Beven, 2012). Les modèles peuvent s'intégrer dans une chaîne de modélisation pour représenter le fonctionnement de plusieurs bassins versants (Le Moine et al., 2008). L'utilisation de ces modèles dans un contexte de changement climatique reste problématique car les paramètres du modèle sont fixés à partir d'une période donnée et n'évoluent pas dans le temps ajoutant de l'incertitude aux résultats des projections hydrologiques (Brigode et al., 2013).

Ces modèles peuvent être développés dans des logiciels de modélisation comme GoldSim® (GoldSim Technology Group, 2023). GoldSim® est la principale solution de simulation de Monte Carlo et permet de réaliser des simulations dynamiques de système complexe (Ahmadisharaf et al., 2018). Elle se base sur des blocs qui représentent différents objets (qualité de l'eau, débit, précipitation, bassin de décantation, station de traitement des eaux, pompage, etc.) dont l'assemblage crée un schéma conceptuel du fonctionnement de l'entité à modéliser. Goldsim® est un logiciel flexible et son interface visuelle facilite le développement de sous-modèles (Usher et al., 2010).

Ce logiciel est largement utilisé dans le domaine minier (Usher et al., 2010 ; Wickham et al., 2004), pour la modélisation du bilan hydrologique au niveau des sites miniers ou des stockages de résidus (Plagnes et al., 2017 ; Puhlmann et al., 2006). Sa facilité d'utilisation permet d'envisager des scénarios lors de la fermeture de mine (Eary et al., 2008). De nombreuses études géochimiques sont aussi réalisées avec GoldSim® (Johnson et al., 2018). Ce logiciel permet facilement de faire communiquer différents fichiers et de pouvoir les modifier pour utiliser de nouvelles données ou simuler l'impact du CC sur les écoulements.

2.3.4. Modélisation dans le domaine minier de l'impact du changement climatique

Les études de l'impact du changement climatique (CC) dans le domaine minier sont récentes et peu nombreuses comparées aux études du CC concernant l'agriculture, la ressource en eau, l'énergie et les transports (Odell et al., 2018). Dans le domaine minier, les études s'intéressent aux impacts engendrés par le CC lors de l'exploitation et aux risques financiers que cela implique (Sharma, 2017, 2013 ; Sun et al., 2020). Mais trop peu d'industries minières considèrent encore le changement climatique comme un risque (Klein et al., 2022). Janson et al. (2020) listent tous les effets potentiels du changement climatique et concluent par la nécessité de créer des plans de gestion des risques incluant des simulations prenant en compte les projections climatiques. Les auteurs précisent qu'il y a un manque d'études appliquées au secteur minier européen en activité prenant en compte le CC. Pearce et al. (2011) ont montré que les compagnies minières canadiennes n'étaient que peu concernées par le changement climatique, sous-estimant son effet, ayant des plans de gestion à long terme limités et d'importantes vulnérabilités dans la phase d'après-mine.

La prise en compte du CC dans la gestion post mine est un enjeu important car le dimensionnement et la conception des aménagements se basent sur les propriétés des matériaux, les conditions hydrogéologiques mais aussi les conditions météorologiques. En général, les aménagements sont dimensionnés avec les données météorologiques actuelles et non les données futures.

De plus, la génération de DMA est un phénomène qui peut se produire pendant plus de 100 ans et nécessite une gestion sur le long terme (Akcil et Koldas, 2006). Le DMA pourrait s'intensifier avec les évènements extrêmes pluvieux et de chaleur (Anawar, 2013 ; Phillips, 2016). Or la gestion des effluents et la réhabilitation des sites miniers doivent être responsables et s'appuyer sur la réalisation de suivis géotechniques, géochimiques et hydrologiques pour s'assurer de la stabilité des ouvrages, de la qualité et de la quantité des rejets à long terme.

Le CC devrait affecter les précipitations et la température au cours des 100 prochaines années modifiant la recharge, les niveaux des eaux souterraines et leurs débits. Les modifications de la ressource en eau influencent aussi la végétation qui joue un rôle important pour contrôler l'érosion (Lersow, 2010), augmente la transpiration et limite l'infiltration des précipitations. La fréquence et l'intensité des évènements extrêmes devraient aussi être modifiées, pouvant générer des volumes importants d'eau dans un cours laps de temps (O'Gorman et Schneider, 2009 ; Tramblay et Somot, 2018). Récemment, des études ont porté sur l'efficacité des protections des stockages de résidus face au CC en simulant des scénarios de sécheresse. Elles ont montré que la méthode de la nappe élevée avec une couche de protection reste robuste (Lieber et al., 2022) et que la méthode utilisant des barrières capillaires continue de jouer son rôle face au CC (Hotton et al., 2020). Les périodes de sécheresse peuvent aussi engendrer des effluents miniers plus concentrés en métaux. Moreno González et al. (2020) ont montré que les métaux présents dans la roche du milieu (Al, Mn et Ni) étaient plus concentrés durant la période estivale et que les résidus riches en sulfure jouaient un rôle de puits pour des métaux comme l'arsenic, le plomb et le vanadium pendant cette même période et devenant alors une source en période pluvieuse. D'autres études ont montré l'impact de la saisonnalité sur les concentrations en arsenic (Kumpulainen et al., 2007; Tum et al., 2022).

La rupture de digue des stockages de résidus peut être favorisée par le CC est un sujet étudié puisque ces ruptures peuvent engendrer des dégâts importants sur l'environnement (Kossoff et al., 2014). Elles sont principalement liées à une mauvaise gestion de l'eau et à des évènements extrêmes (Niekerk et Viljoen, 2005). Avec le CC, la répartition des précipitations devrait changer et les évènements extrêmes devraient s'intensifier créant plus de risques pour ces installations. Outre la rupture de digue, les stockages de résidus miniers sont amenés à perdurer dans le temps car pour le moment, peu de solutions existent pour réutiliser ces derniers (Araujo et al., 2022 ; Lemos et al., 2023 ; Yilmaz et al., 2023). L'érosion des stockages est ainsi étudiée à très long terme (100 à 1000 ans, Hancock, 2021 ; Hancock et Coulthard, 2022).

En revanche, trop peu d'études s'intéressent à l'évolution des termes du bilan hydrologique dans le futur (Alam et al., 2020) et à la gestion des sites miniers et des stockages de résidus dans le cadre du changement climatique. La modification des précipitations et des températures pourrait engendrer une augmentation des flux à traiter à l'échelle annuelle. Sans prise en compte du CC, les infrastructures actuelles peuvent être sous dimensionnées. L'impact des évènements extrêmes sur les stockages et la gestion des eaux est encore très peu étudié (Labonté-Raymond et al., 2020). Les évènements extrêmes (EE) peuvent être à l'origine de flux plus concentrés en métaux et plus acides que lors de précipitations peu intenses (Kalisman et al., 2022 ; Mayes et al., 2021). De plus, les EE devraient être plus intenses ce qui pourrait générer ponctuellement un volume d'effluent supérieur au volume des bassins utilisés pour le traitement des eaux. Le risque est de rejeter les effluents directement dans l'environnement. Ces volumes d'eau doivent être quantifiés pour aider à la gestion des flux sur le long terme au niveau des stations de traitement. La prise en compte du changement climatique dans les modélisations permet d'adapter, si nécessaire, les aménagements et d'anticiper des plans d'action pour les futures années afin de minimiser les impacts sur le fonctionnement géochimique des sites et sur l'environnement.

Chapitre 3 Méthodologie

La méthodologie utilisée pour étudier les trois sites de stockages de résidus s'articule autour de trois axes présentés dans la Figure 1.2. Le premier axe concerne les données avec un travail de collecte de données historiques et d'acquisition de nouvelles données, présentée par la suite. Deux méthodes, communes aux trois sites, d'analyse des données observées sont décrites dans ce chapitre et sont partiellement ou synthétiquement explicitées dans le cadre des chapitres, rédigés sous forme d'article. Le second axe concerne la modélisation hydro(géo)logique des trois entités étudiées. Celle-ci est adaptée à chaque site et sera détaillée dans le chapitre correspondant à l'étude des sites. Le troisième axe concerne l'analyse du changement climatique à différentes échelles temporelles (annuelle, saisonnière et journalière). Cette analyse est similaire pour les trois sites et est détaillée dans ce chapitre.

3.1. Suivi environnemental

La disponibilité et la fiabilité des données hydro(géo)météorologiques est un enjeu essentiel pour la compréhension du fonctionnement hydrogéologique ainsi que la modélisation. L'utilisation du maximum de données disponibles permet d'observer les tendances à long terme et réaliser des simulations sur de longues périodes. Dans cette thèse, les données utilisées sont issues du suivi environnemental d'ORANO AMF complétées par celles obtenues via une nouvelle instrumentation (Tableau 3.1).

Tableau 3.1 : Récapitulatif des types de données observées utilisées pour l'étude de chaque site, de leur disponibilité, de leur fréquence et de l'origine. D'autres données sont disponibles mais n'ont pas été utilisées dans ce travail.

Type de données	Suivi environnemental	Suivi complémentaire							
Bertholène									
Niveaux piézométriques	1999-2021 (mensuel)	2018-2021 (journalier)							
Débits	2006-2021 (hebdomadaire)	-							
Conductivité électrique	_	2018-2021 (journalier)							
Le Cellier									
Débits	2014-2021 (mensuel)	2021-2022 (journalier)							
Conductivité électrique	2014-2021 (mensuel)	2021-2022 (journalier)							
рН	2014-2021 (hebdomdaire	_							
	puis journalier)								
Sulfate	2014-2021 (trimestriel)	—							
Bellezane									
Débits	2010-2021 (hebdomadaire)	2021-2023 (journalier)							
Sulfate	2010-2021 (mensuel)	2021 et 2023 (ponctuel et							
		mensuel)							

Les données météorologiques proviennent du suivi historique des sites réalisé par l'AMF. Elles sont complétées par des données des stations météorologiques Météo-France ou Météo-Ciel les plus proches. Les précipitations et la température sont des données essentielles pour l'analyse du fonctionnement hydrogéologique des sites et la modélisation. L'utilisation des données provenant directement d'une station sur le site permet d'observer les évènements pluvieux extrêmes locaux.

Les données collectées par l'AMF lors du suivi environnemental des sites anciens miniers sont variées (météorologiques, hydrologiques et chimiques, Tableau 3.1) et disponibles sur une longue période de temps à un pas de temps hebdomadaire et mensuel (Tableau 3.1). Mais ces données ne sont pas toujours disponibles sur tous les points étudiés ni à des pas de temps assez fins pour réaliser des études hydrogéologiques sur des objets d'études ayant des réactions rapides aux précipitations. Pour obtenir des données sur tous les points d'intérêt étudiés et à une échelle journalière, nous avons implémenté avec ORANO un suivi complémentaire régulier. L'acquisition supplémentaire est détaillée pour chaque site (Bellezane : partie 4.3.1.2, Bertholène : Annexes p.159 et Le Cellier : Annexes p.208). Les sondes de pression utilisées pour assurer le suivi des données de pression et du niveau piézométrique sont recalibrées lors de chaque déplacement sur le terrain pour limiter les dérives des sondes et assurer une bonne fiabilité des données.

En complément des données hydrologiques, des missions de prélèvements en hautes et basses eaux ont été réalisées sur les trois sites pour analyser les compositions chimiques des eaux (anions, cations, traces). A Bellezane, un suivi mensuel complémentaire et continu de 7 mois a été réalisé (anions et cations) pour obtenir une chronique des éléments majeurs sur tous les points.

3.2. Méthodes relatives à l'analyse de données

L'analyse des données est une étape importante pour comprendre le fonctionnement hydrogéologique des sites. Les données historiques disponibles à un pas de temps hebdomadaire ou mensuel renseignent sur l'évolution depuis plusieurs années des débits, précipitations, concentrations en sulfates, pH, etc. Les données journalières renseignent sur des dynamiques plus rapides. Les différentes analyses de données réalisées pour les trois sites sont similaires. Une analyse visuelle et statistique des données. Les méthodes de corrélation croisée et du bilan hydrologique sont présentées ci-dessous. L'ensemble des analyses de données apportent des informations permettant de créer un schéma conceptuel du fonctionnement des objets étudiés et de pouvoir adapter la modélisation selon les hypothèses réalisées lors de cette analyse de données.

3.2.1. Corrélation croisée

Les corrélations croisées sont utilisées dans de multiples domaines des géosciences (Delbart et al., 2014 ; Qu et al., 2021 ; Zhang et al., 2013). Elles sont utilisées pour décrire le comportement

hydrologique et géochimique des sites et notamment sur les réponses temporelles, à différentes pas de temps selon la disponibilité des données. La corrélation croisée est une comparaison entre deux séries temporelles permettant de constater un lien entre la série d'entrée x_t et la série de sortie y_t (équation 3.1). La fonction de corrélation ($r_{xy}(k)$) est définie par l'équation 3.2 :

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t+k} - \bar{y})$$
3.1

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y}$$
 3.2

où $C_{xy}(k)$ est le corrélogramme croisé, *n* est la longueur de la série temporelle, *k* est le décalage, \bar{x} et \bar{y} sont les moyennes des séries temporelles, et σ_x et σ_y sont les écarts-types des séries temporelles. Le temps de réponse du système au signal d'entrée est estimé lorsque la valeur maximale de $r_{xy}(k)$ est atteinte. La corrélation est considérée comme significative à 95 % lorsque $r_{xy}(k)$ dépasse $\pm 2/\sqrt{N}$, avec *N* le nombre d'observations.

3.2.2. Bilan hydrologique

Le bilan hydrologique décrit les flux entrants et sortants d'un système, que ce soit à l'échelle d'un ou plusieurs bassins versants, d'un champ ou d'une ville. Il permet d'estimer la surface drainée par l'exutoire étudié, l'évapotranspiration réelle, la recharge sur chaque site et de contrôler si le suivi est correct d'un point de vue quantitatif (Mohajerani et al., 2021). Dans le bilan hydrologique, chaque flux est exprimé en hauteur d'eau par unité de temps en fonction de la surface du système étudié. L'équation 3.3 décrit le bilan hydrologique annuel exprimé en mm/an :

$$P = AET + R + I = AET + P_{eff}$$
 3.3

$$R + I = P_{eff} = Q \tag{3.4}$$

où *P* est la pluie, *AET* l'évapotranspiration réelle, *R* le ruissellement et *I* l'infiltration. Pour une unité hydrologique bien définie, la pluie efficace calculée avec le bilan hydrologique (*Peff*) dans l'équation 3.3 doit être égale à la lame d'eau Q mesurée à l'exutoire du système étudié (équation 3.4).

AET est estimée à l'aide de la méthode de Thornthwaite (1948). La réserve utile (RU) est la quantité d'eau que le sol peut absorber et restituer aux plantes en dessous de la capacité de rétention capillaire. Cette RU varie selon les sites et les types de sols. A Bellezane et au Cellier, la RU a été fixée à 100 mm et à Bertholène sur un sol granitique, la RU a été fixée à 50 mm. A noter que la RU pour les trois sites est estimée dans une gamme de 50 à 100 mm selon les valeurs estimées par Le Bas (2018) avec une carte à l'échelle de la France au 1/1000000^e.

La formule utilisée pour le calcul de l'évapotranspiration potentielle (*PET*) a été choisie car elle ne nécessite que de connaître la température de l'air. La *PET* est calculée avec la formule d'Oudin et al. (2005) (équation 3.5).

$$Si T + 5 > 0^{\circ}C, PET = \frac{Re}{\gamma\rho} \times (\frac{T+5}{100})$$

$$Sinon, PET = 0$$

$$3.5$$

où *Re* est le rayonnement extraterrestre (MJ m⁻²d⁻¹) selon le jour julien et la latitude, γ la chaleur latente de la vaporisation de l'eau (kJ/kg), ρ la masse volumique de l'eau (kg/m³) et *T* la température moyenne journalière (°C). Cette formule permet de calculer l'évapotranspiration potentielle au pas de temps journalier.

Le bilan hydrologique est calculé au pas de temps mensuel et agrégé à l'échelle annuelle et sur les années hydrologiques de chaque site, d'Octobre à Septembre pour le site de Bellezane, de Novembre à Octobre pour les sites du Cellier et de Bertholène. Selon les sites, l'étude porte sur le bassin versant ou l'objet étudié est délimité par sa topographie (Bertholène et Le Cellier) ou en se basant sur ses limites souterraines (Bellezane).

3.3. Méthodes relatives au changement climatique

Pour étudier le changement climatique à différentes échelles temporelles, nous avons développé une méthodologie statistique s'appuyant sur les projections journalières (P) de la température (T) et des précipitations jusqu'en 2100 (Figure 3.1). Les projections climatiques utilisées proviennent des jeux de modèles présentés dans le Tableau 2.1 pour les trois scénarios RCP. Trois échelles de temps ont été étudiées.

- Le travail à l'échelle annuelle permet d'évaluer l'évolution des données (*P* et *T*) jusqu'en 2100 d'un point de vue statistique (test de Mann-Kendall (Kendall, 1975)) et de calculer les variations entre le début et la fin du siècle. Ces renseignements offrent la possibilité d'envisager, si besoin, des modifications dans la gestion actuelle des eaux.
- Le travail à l'échelle saisonnière précise la période de l'année où les variations de *P* et *T* sont les plus marquées. Cela peut impacter les concentrations des effluents.
- Le travail à l'échelle journalière analyse l'évolution de la fréquence et de l'intensité des évènements pluvieux extrêmes (EE). Les volumes d'eau engendrés lors de ces EE peuvent être importants et dépasser les capacités de stockage des aménagements de traitement. Il convient donc d'étudier la modification de l'intensité et de la fréquence de ces évènements dans le futur pour assurer une gestion responsable des effluents à l'échelle du site.

Les méthodes sont détaillées à la suite.



Figure 3.1 : Schéma de la méthodologie pour l'analyse du changement climatique développée dans cette thèse.

3.3.1. Analyse de tendances annuelles

Le test non paramétrique de Mann-Kendall (Kendall, 1975) est couramment utilisé pour détecter les tendances dans les séries chronologiques de données environnementales (Chaouche et al., 2010 ; Oni et al., 2012 ; Renard, 2008). Ce test basé sur les rangs et ne requiert de distributions particulières des données (Kendall, 1975 ; Mann, 1945). Comme les tendances peuvent être affectées par la présence d'autocorrélations négatives ou positives (Hamed et Ramachandra Rao, 1998), un test d'autocorrélation des données est d'abord effectué pour vérifier l'indépendance des données.

L'hypothèse nulle est qu'il n'y a aucune tendance sur la série de données. Si cette hypothèse est rejetée, il y a alors une tendance sur les données. Pour une série de données temporelles de plus de 10 valeurs dans l'ordre chronologique (x allant de 1 à n), le signe S est défini par l'équation 3.6 et indique la tendance de la série de données :

$$S = \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^{n} signe(x_i - x_j) \text{ où } signe(x_i - x_j) = \begin{cases} 1, si (x_i - x_j) > 0\\ 0, si (x_i - x_j) = 0\\ -1, si (x_i - x_j) < 0 \end{cases}$$
3.6

Pour l'hypothèse nulle, S est proche de 0. Pour S > 1, les valeurs augmentent avec le temps et pour S < 1 les valeurs diminuent avec le temps. La variance de S est calculée par l'équation 3.7:

$$Var(S) = \frac{n(n-1)(2n+5)}{18}$$
 3.7

Le test statistique (Z) de Mann-Kendall est défini par l'équation 3.8 :

$$Z = \begin{cases} \frac{S-1}{(Var(S))^{\frac{1}{2}}}, & S > 0\\ 0, & S = 0\\ \frac{S+1}{(Var(S))^{\frac{1}{2}}}, & S < 0 \end{cases}$$
3.8

Une valeur positive de Z indique une tendance à l'augmentation et une valeur négative à la diminution. Après vérification de l'indépendance des données, le test Mann-Kendall a été appliqué sur le cumul annuel des précipitations et sur la température moyenne annuelle entre 2006 et 2100 pour détecter la présence d'une tendance. Le seuil de significativité est fixé à 0,1 dans ce travail.

Pour compléter l'analyse de tendances, la variation moyenne interannuelle a été estimée entre le début (2006-2036) et la fin du siècle (2068-2098) sur les précipitations et la température pour les 18 simulations modèles pour les trois scénarios RCP (équations 3.9 et 3.10).

$$\Delta T(^{\circ}C) = \bar{T}_{2068-2098} - \bar{T}_{2006-2036}$$
3.9

$$\Delta P(\%) = \frac{\bar{P}_{2068-2098} - \bar{P}_{2006-2036}}{\bar{P}_{2006-2036}}$$
3.10

où \overline{T} est la température moyenne annuelle et \overline{P} le cumul annuel des précipitations.

3.3.2. Analyse de la variabilité saisonnière

La variation saisonnière est analysée en se basant sur les données simulées à l'échelle mensuelle. Cela permet de quantifier la variabilité entre le début (2006-2036) et la fin du siècle (2068-2098) et la disparité des simulations climatique. La variabilité est calculée par mois pour chaque simulation pour chaque scénario RCP (équations 3.11 et 3.12) :

$$\Delta T(m)(^{\circ}C) = \overline{T(m)}_{2068-2098} - \overline{T(m)}_{2006-2036}$$
3.11

$$\Delta P(m)(\%) = \frac{P(m)_{2068-2098} - P(m)_{2006-2036}}{\overline{P(m)}_{2006-2036}}$$
3.12

Où *m* est le numéro du mois (1 à 12), \overline{T} la température moyenne du mois *m* et \overline{P} le cumul mensuel des précipitations du mois *m*. La variabilité saisonnière a été calculée pour la température, les précipitations, l'évapotranspiration réelle et le débit lorsqu'ils sont simulés. L'équation 3.12 est alors appliquée pour l'évapotranspiration réelle et le débit.

3.3.3. Fréquence et intensité des évènements pluvieux extrêmes en contexte de changement climatique

Les évènements pluvieux extrêmes devraient devenir plus intenses et plus fréquents dans le futur (IPCC, 2021). Dans cette thèse, nous utilisons le cumul maximum sur 3 jours consécutifs par an pour estimer la période de retour pour les trois périodes de temps. Ce choix a été fait pour permettre de travailler à la fois sur des réactions liées à des niveaux piézométriques (moins réactifs aux précipitations) et des débits (plus réactifs). Les temps de retour ont été estimés quel que soit la saison (été/hiver) et les conditions initiales de saturation du sol (sol saturé ou non saturé selon les précipitations des 20 jours précédents).

Pour quantifier la modification de l'intensité des EE, la quantité de pluie estimée pour une même période de retour est analysée pour les périodes 1975-2005, 2006-2036 et 2068-2098 pour les trois scénarios RCP. La période de retour est estimée avec la loi d'extremum généralisée (GEV, équation 3.13, Fisher et Tippett (1928)) qui combine les trois formes de distribution des valeurs extrêmes Gumbel (1941, équation 3.14), Fréchet (1927, équation 3.15) et Weibull (équation 3.16). Cette loi est considérée comme la distribution limite du maximum d'une série de variables aléatoires indépendantes et de même distribution. Les fonctions de répartition cidessous sont décrites pour les valeurs extrêmes maximum. Trois paramètres décrivent la distribution : μ , le paramètre de position, σ , le paramètre de dispersion et ε , le paramètre de forme appelé « indice des valeurs extrêmes ». Ce dernier paramètre spécifie le comportement des queues de la distribution. Si le paramètre de forme n'est pas défini, la fonction de répartition est nulle et la loi de Gumbel est alors définie comme limite.

GEV:
$$F(x; \mu, \sigma, \varepsilon) = \exp\left(-\max\left(0, 1 + \varepsilon \left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)\right)^{-\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)}\right)$$
 3.13

Gumbel :
$$Si \ \varepsilon = 0, F(x; \mu, \sigma, 0) = \exp\left(-\exp\left(\frac{\mu - x}{\sigma}\right)\right)$$
 3.14

Fréchet :
$$Si \ \varepsilon > 0, F(x; \mu, \sigma, \varepsilon) = \begin{cases} 0 \\ \exp\left(-\left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)^{-\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)}\right) si \ x \le \mu \\ si \ x > \mu \end{cases}$$
 3.15

Weibull :
$$Si \ \varepsilon < 0, F(x; \mu, \sigma, \varepsilon) = \begin{cases} \exp\left(-\left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)^{-\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)}\right) si \ x < \mu \\ 1 \end{cases}$$
 3.16

Cette loi est utilisée en hydrologie (Katz et al., 2002 ; Nerantzaki et Papalexiou, 2022) pour modéliser les évènements extrêmes et estimer les périodes de retour à partir de données journalières de précipitations en prenant en compte l'évènement pluvieux le plus intense de chaque année (Gaur et al., 2018 ; Santos et al., 2016).

La modification de la fréquence des EE a été estimée en dénombrant le nombre d'évènements avec un cumul sur 3 jours supérieur à la quantité d'eau correspondant à une période de retour

de 10 ans estimée à partir des simulations réalisées avec les 6 jeux de modèles pour la période 1975-2005. Ce seuil est estimé à 97 mm à Bellezane, 118 mm au Cellier et 87 mm à Bertholène avec la pluie historique (1975-2005) simulée pour les 6 jeux de modèles. La période de retour maximum est observée pour le site ayant l'altitude la plus haute (1100 m). Le nombre d'occurrences est calculé pour 4 périodes pour les 18 simulations (6 jeux de modèles et 3 scénarios RCP) : 1975-2005, 2006-2036, 2037-2067 et 2068-2098.

L'étude du changement climatique est facile à mettre en place et s'adapte à tous les sites sous réserve d'avoir les données de projections climatiques disponibles et descendues d'échelle.

Chapitre 4 Bellezane (Haute-Vienne)

4.1. Introduction

Dans le contexte de l'après-mine, la gestion des eaux d'un site de stockage de résidus miniers est un enjeu important pour contrôler le rejet dans l'environnement des eaux encore impactées par l'exploitation minière et l'après-mine. Connaître et comprendre les écoulements souterrains de même que collecter toutes les eaux d'un site de stockage de stériles et de résidus miniers sont des tâches complexes. Les infrastructures réalisées pendant et après l'exploitation du minerai comme les travaux miniers souterrains comblés ou noyés, les mines à ciel ouvert et les stockages de résidus de traitement affectent les écoulements naturels, modifient les chemins d'écoulement et peuvent drainer des zones se trouvant en dehors du bassin versant topographique (Luan et al., 2020 ; Song et al., 2020). Le suivi des eaux minières, que ce soit au niveau de leur débit ou de leur qualité est essentiel pour identifier et quantifier les flux impactés et qui devront être traités (Drobniewski et Witthaus, 2017 ; Wolkersdorfer, 2008).

Du fait de multiples aménagements liés au traitement du minerai et de l'eau, les écoulements souterrains et de surface dans les anciens sites miniers sont généralement complexes avec différents pôles de contribution d'eau. De nombreuses études utilisent ainsi des modèles de bilan d'eau à l'échelle des sites pour quantifier l'évolution spatiale et temporelle des volumes d'eau qui transitent à travers ces sites et leur qualité (Boughton, 2004 ; Cooper et al., 2018 ; Plagnes et al., 2017). Ces modèles doivent représenter tous les flux s'écoulant à travers un site minier aujourd'hui et dans le futur (Alam et al., 2020 ; Nalecki et Gowan, 2008). La réalisation de modèles développés à partir des données collectées lors du suivi environnemental des sites peut alors servir à tester différents scénarios de gestion des eaux (Côte et al., 2010) et à estimer l'impact à long terme du changement climatique pour assurer une gestion responsable des effluents miniers (L'Hermite et al., 2022; Tannor et al., 2023).

Dans ce contexte, le site de Bellezane apparait comme un cas intéressant d'étude. En effet, ce site est caractérisé par la présence de différentes mines à ciel ouvert, de travaux miniers souterrains remblayés et de plusieurs verses à stériles et ainsi, représentatifs de la diversité des aménagements possibles sur un site minier. Le site a servi et sert encore de stockage de résidus miniers partiellement noyés dans la principale mine à ciel ouvert. Les eaux provenant de ces différents pôles sont drainées séparément pour être traitées avant d'être rejetées dans l'environnement. Avec tous ces aménagements, l'étude du site de Bellezane est complexe d'autant que les connaissances relatives à chaque pôle étaient limitées jusqu'à présent.

Des études ont déjà été menées sur ce site (Ballini et al., 2020 ; BURGEAP, 2006 ; Ledoux et Schmitt, 2010), en particulier sur le fonctionnement hydrogéochimique. L'étude de BURGEAP (2006) a permis de comprendre les grandes lignes du fonctionnement hydrologique du site et d'estimer les surfaces drainées par chaque pôle. Ledoux et Schmitt (2010) ont développé un modèle hydrologique sur le stockage de résidus et différents scénarios d'évolution du stockage ont été testés (diminution des précipitations, détérioration de la couverture sur les résidus et mise en place d'une couverture imperméable). La problématique environnementale de ce site

porte sur les concentrations en uranium et radium des eaux du site. Les auteurs ont donc développé des modèles hydrogéochimiques pour étudier l'évolution des concentrations de ces deux éléments dans les eaux pendant 50 ans.

Pour comprendre le fonctionnement hydrogéologique du bassin versant et des divers aménagements miniers (pôles) rencontrés sur le site de Bellezane, une approche par pôle a été développée pour ce chapitre. Elle s'adapte parfaitement aux particularités de ce site et aux données disponibles. L'objectif est de connaître la dynamique et les surfaces drainées de chaque pôle et du bassin versant dans sa globalité. Les eaux en provenance de chacun des pôles du site minier (verses à stériles, MCO, TMS) sont collectées et drainées vers la station de traitement du site. Chaque pôle d'eau est d'abord étudié indépendamment en réalisant une analyse des données hydrologiques et chimiques.

Ensuite, un modèle hydrologique « pluie-débit » est développé pour chaque pôle au pas journalier. Ces modèles, très utilisés en hydrologie (Boughton, 2004 ; Perrin et al., 2003 ; W. Sun et al., 2020) et dans les études opérationnelles (Hrachowitz et Clark, 2017), représentent la relation entre la pluie et le débit pour estimer ce dernier. Ces modèles se situent entre les modèles empiriques ou « boîtes noires » établissant une relation mathématique entre la pluie et le débit sans tenir compte des processus hydrologiques et les modèles à base physique utilisant les lois physiques qui régissent les processus à l'échelle des bassins versants (Pechlivanidis et al., 2011). Les modèles « pluie-débit » décrivent le fonctionnement d'une entité de façon simplifiée par des équations mathématiques paramétrés s'appuyant sur des réservoirs interconnectés représentants les systèmes de recharge, stock et de vidange du bassin versant. L'avantage de ces derniers modèles est qu'ils ne nécessitent que peu de connaissances sur les systèmes pour fonctionner (données hydrométéorologiques), ce qui les rend faciles à utiliser. Cependant, ces modèles nécessitent des données de débit pour être paramétrés, avec une contrainte forte sur la disponibilité des chroniques météorologiques et débits.

Enfin, les modèles hydrologiques sont intégrés dans un modèle global développé avec le logiciel GoldSim®. Ce dernier permet de gérer les relations entre les modèles hydrologiques et les entités hydrauliques liées au traitement des eaux (bassins de réception, de décantation et de rejet) de simuler les débits jusqu'à l'exutoire du bassin versant. La concentration en sulfate, prise ici en première approximation comme un traceur chimique inerte, de chaque pôle est utilisée pour valider le modèle hydrologique global grâce à la comparaison entre les concentrations simulées par des mélanges calculés par le logiciel GoldSim® et les concentrations observées lors de 9 missions de prélèvements réalisées à différentes périodes hydrologiques entre 2021 et 2023.

Dans un contexte de changement climatique, le bilan hydrologique à l'échelle annuelle devrait être modifié à cause de l'augmentation des températures et des variations des précipitations (Clark et al., 2017) qui se répercuteront sur les débits et sur la concentration des flux à traiter du fait de la fluctuation des débits à venir. L'utilisation de modèles hydrologiques permet la simulation de cet impact sur les débits dans le futur (Chernos et al., 2022). Cependant la simulation dans un contexte non-stationnaire comme le changement climatique peut être problématique car la relation entre la pluie et le débit peut évoluer dans le temps alors que les paramètres du modèle sont fixes et n'ont pas de sens physique (Thirel et al., 2015). Pour compléter l'étude de l'impact du changement climatique, une analyse statistique de la fréquence et de l'intensité des évènements pluvieux est réalisée car ces évènements peuvent générer des flux importants dans un court laps de temps (L'Hermite et al., 2022).

4.2. Site de Bellezane

4.2.1. Description du site

Le site de Bellezane est situé en Haute-Vienne au nord de Limoges (trait violet sur la Figure 4.1a). Il s'inscrit au sein d'un massif de leucogranite à deux micas de Saint-Sylvestre (Kanzari et al., 2017 et références citées). Le gisement s'est développé sur des structures filoniennes à pechblende (Fraipont et Raines, 1984). Le socle granitique est fissuré et très peu perméable à l'exception d'une épaisseur de quelques mètres de roches altérées proche de la surface. Le site minier de Bellezane a été exploité entre 1975 et 1992 avec un total de 4053 tonnes d'uranium extraites (Figure 2.1).





(b)

Figure 4.1 : (a) Localisation et organisation du site de Bellezane avec fond de carte IGN SCAN25® et (b) les deux mines à ciel ouvert (MCO105 et MCO68) servant de stockage de résidus miniers après le réaménagement et la revégétalisation en 2021.

De 1992 à 1977, le site a été réaménagé et revégétalisé (Figure 4.1b). Il est depuis sous surveillance environnementale et aujourd'hui géré par la direction de l'Après-Mines France d'ORANO avec un suivi des eaux souterraines et de surface, du sol, de l'air et de la chaine alimentaire. Il dispose d'une station de traitement des eaux et de plusieurs bassins post traitement (rectangles bleus sur la Figure 4.1a) pour traiter des eaux riches en radium (~0,7 Bq/L avant traitement, concentration supérieure à la norme de rejet spécifique au site définie par arrêté préfectoral, 0,25 Bq/L) et en uranium (~0,3 mg/L, concentration inférieure à la norme de rejet spécifique au site définie par arrêté préfectoral, 0,8 mg/L).

Ce site s'inscrit dans le bassin versant du ruisseau des Magnelles (limites rouges sur la Figure 4.1a) qui se jette dans la Gartempe, la masse d'eau réceptrice à l'aval du bassin versant. Le bassin versant topographique du ruisseau des Magnelles s'étend sur 235 ha. Le sud du bassin versant est principalement composé par le site minier ainsi que par des surfaces forestières et agricoles. La partie nord est composée de plusieurs champs et de zones humides.

4.2.2. Stockage de résidus et de stériles miniers

Le site de Bellezane a été exploité par différentes MCO (MCO68, MCO105 et MCO201) pour les plus volumineuses et d'autres plus petites aujourd'hui totalement remblayées. Un réseau de travaux miniers souterrains reliait toutes les MCO par le fond (traits orange sur la Figure 4.1a). Au fur et à mesure de l'exploitation, les TMS ont été partiellement remblayés par un mélange constitué de résidus de traitement dynamique. A la fin de l'exploitation, les accès des TMS ont été comblés et le pompage a été arrêté, les TMS sont maintenant ennoyés.

Depuis le début de l'exploitation, le site est aussi utilisé pour le stockage de résidus miniers issus de l'usine de traitement de Bessines-sur-Gartempe (3 km à l'ouest) où les minerais ayant une teneur en uranium entre 1,5 et 2,5 ‰ étaient traités. Ils étaient concassés et broyés avant d'être mis dans une solution acide. Après la lixiviation dynamique, l'uranium était récupéré à l'aide de filtres et les résidus étaient lavés à l'eau, neutralisés à la chaux (CaO) puis stockés. Ces étapes permettent une neutralisation de l'acide résiduel et évite ainsi tout drainage minier acide futur. Les résidus stockés ont perdu 95 % de leur teneur en uranium après traitement mais pas le radium ni ses descendants qui ne sont pas affectés par le traitement du minerai.

Les différentes MCO ont été utilisées pour stocker ces résidus et des verses à stériles ont en plus été créées. La MCO201 a été complètement remblayée et une verse à stériles a été constituée en contrebas (V201). La MCO105 est l'ouvrage le plus excavé du site et se prolonge par la MCO68. Au total, 1,5 million de tonnes de résidus sont stockées dans ces deux MCO dont 97 % proviennent de la lixiviation dynamique. Le stockage a été réalisé en empilant environ 40 m de résidus miniers dans le fond, puis une couche de 10 m de stériles miniers et enfin une couche de terre végétale par-dessus. Les résidus dans la MCO105 sont aujourd'hui totalement noyés alors que les résidus dans la MCO68 le sont partiellement. Ballini et al. (2020) ont étudié la stabilité chimique des résidus miniers stockés sur le site de Bellezane. En utilisant différentes approches, les auteurs ont conclu que les pièges de rétention (smectite ou barite) présents dans le stockage.

Depuis 2006, le site sert aussi de stockage pour les boues de curage du lac de Saint Pardoux, de l'étang de la Crouzille et d'étangs privés. En 2014, un stockage de sédiments a été ouvert sur la MCO105 (Figure 4.1b). La verse à stériles (V105) se situe en contrebas de ces stockages et la verse à stériles TMS (VTMS) se situe en aval du site (Figure 4.1a).

4.2.3. Description hydrogéologique et géochimique du site

Les ouvrages miniers souterrains et de surface impactent les débits et la qualité des écoulements du bassin versant du ruisseau des Magnelles. Les eaux sous influence minière sont donc drainées et traitées lorsque c'est nécessaire avant d'être rejetées dans l'environnement. La Figure 4.2 résume le fonctionnement hydrologique du bassin versant.



😑 Point de mesure

Figure 4.2 : Schéma des eaux du site de Bellezane et en jaune les points de mesure de débit avec la disponibilité des données.

Quatre drains alimentent un bassin de réception où les eaux sont mélangées avant d'être pompées (BZN1, Figure 4.3b) vers la station de traitement (Figure 4.3a). Le pompage se déclenche lorsque le niveau d'eau dans le bassin dépasse un seuil haut et s'arrête lorsqu'il atteint un seuil bas. Les différents drains sont décrits ci-dessous :

Les eaux d'exhaure des TMS s'écoulent par débordement et arrivent à la station de traitement par deux drains (DESC1 et DESC2). Le flux s'écoule majoritairement par le drain DESC1. Lors d'évènements de pluie intense ou en très hautes eaux, le flux s'écoule aussi par le drain DESC2. Les eaux DESC1 et DESC2 ont les mêmes caractéristiques chimiques et sont représentées par un seul pôle, DESC. Ces eaux ne sont pas acides (pH ~ 6,8) mais présentent des concentrations en radium ([226Ra] = 0,6 Bq/L) et uranium ([U] = 266 µg/L) élevées.

- Les eaux superficielles de la MCO68 et MCO105 sont captées par la galerie TB100, qui traverse le massif granitique, et débouche dans le bassin de réception. Elles sont peu acides (pH ~ 6,4) mais sont concentrées en uranium ([U] = 156 μg/L).
- La verse à stériles 105 (V105) génère un écoulement qui est collecté et traité car ces eaux présentent un pH modérément acide (pH ~ 4,5) et une concentration significative en uranium ([U] = $210 \mu g/L$) lié à l'altération du milieu granitique par les eaux météoriques (pH = 5,5).
- L'ancien site minier de Montmassacrot (MMT) situé au sud du site de Bellezane est un autre stockage de résidus miniers dont les eaux sont réceptionnées dans un bassin intermédiaire puis acheminées dans le bassin de réception des eaux de Bellezane par pompage une fois par semaine (Figure 4.1a). Ces eaux sont concentrées en radium ([226Ra] = 0,73 Bq/L) et en uranium ([U] = 267 µg/L).



(*a*)

(b)

Figure 4.3 : (a) Arrivée des drains à la station de traitement (avant l'installation des déversoirs) et (b) le bassin de réception et la pompe acheminant l'eau vers la station de traitement.

Les effluents de la verse V201 ne sont pas traités car leur qualité ne pose pas de problème et s'écoulent dans le bassin versant du ruisseau de Bellezane situé à l'est du bassin versant étudié. Ces effluents ne sont pas pris en compte dans l'étude.

Il n'y a pas de drainage minier acide sur ce site (à l'exception limitée du point V105) car les résidus de traitement ont été neutralisés à la chaux après la lixiviation dynamique. En revanche, l'eau ayant circulé dans les résidus miniers est riche en fer, manganèse et aluminium ([Fe] = 10^{-6} mol/L, [Mn] = 10^{-5} mol/L, [Al] = 10^{-4} mol/L). Les eaux présentent une signature sulfatée et particulièrement les eaux de V105 (SO4²⁻ ~ 650 mg/L) et de MMT (SO4²⁻ ~750 mg/L), exceptées les eaux de DESC et de TB100 qui ont des concentrations d'environ 150 mg/L. Le bruit de fond des ions sulfate hors incidence minière est d'environ 15 mg/L. Pour rappel, la limite fixée par l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) pour la consommation d'eau potable est de 500 mg/L. A titre de comparaison, la concentration en sulfate à l'exutoire du
stockage à Bertholène est de 260 mg/L en mars 2021 et 950 mg/L en octobre 2021. Au Cellier, la concentration en sulfate à la sortie du terril étudié est de 1500 mg en mars et en septembre 2021.

Le traitement des eaux vise principalement le radium dissous (et dans une moindre mesure l'uranium, même si la concentration en uranium a bien diminué depuis le réaménagement et est passée aujourd'hui en dessous de la limite de rejet avant traitement, Figure 4.4). L'eau issue des quatre pôles est traitée par ajout de chlorure de baryum (pour précipiter le radium au sein de sulfate de baryum, barytine), de sulfate d'alumine (pour la coagulation et la floculation des matières en suspension ; cette étape favorise la formation d'hydroxydes métalliques piégeant les métaux par sorption) et de soude pour augmenter le pH. Une fois traitée, l'eau passe par deux bassins de décantation (bassins de décantation 1 et 2) pour permettre la floculation et la coagulation et la coagulation et la concentration du réactif est faible (35 mg/L) n'ayant que peu d'impact sur la concentration en sulfate de l'eau. Le transfert entre les bassins se fait par débordement au-dessus d'un seuil.



Figure 4.4 : Concentration en radium et en uranium pour tous les pôles d'arrivée d'eau à la station de traitement et le mélange pré-traitement (BZN1) et le cumul mensuel des précipitations issues de la station Météo-France Limoges entre janvier 2010 et mai 2020 et de la station de Bessines-sur-Gartempe depuis juin 2020. Les données continues proviennent du suivi par l'AMF et les données ponctuelles pour DESC et V105 (croix) proviennent de la mission de prélèvement du 20 mars 2021.

Le dernier bassin (bassin de rejet) mélange les eaux traitées et les eaux non traitées de VTMS. Les eaux sont ensuite rejetées par surverse dans un drain (mesure du rejet à BZN2) et se mélangent avec le ruisseau des Magnelles amont (MagAmont). Le point Pont est situé à 10 m à l'aval du point de mélange (rejet et magnelles amont) puis, le ruisseau des Magnelles s'écoule jusqu'à la Gartempe (MagAval situé 15 m avant l'exutoire du bassin versant). La Figure 4.5 montre la localisation des points de suivi et le Tableau 4.1 résume le type de suivi de chaque point.



Figure 4.5 : Localisation des points de suivi hydrologique et chimique sur le site de Bellezane (fond de carte IGN25®).

Points de suivi	Hydrologique	Géochimique		
DESC	Sonde de pression	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
V105	Sonde de pression	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
TB100	Sonde de pression	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
MMT	Mesure de volume	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
BZN1	_	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
VTMS	Sonde de pression	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
BZN2	Mesure de volume	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
MagAmont	_	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
Pont	Sonde de pression et mesure manuelle de débit	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
BZNB	_	Prélèvement et sonde multi- paramètres		
MagAval	Suivi photographique et mesure manuelle de débit	Prélèvement et sonde multi- paramètres		

Tableau 4.1 : Récapitulatif des points suivis sur le site de Bellezane et du type de suivi disponible pour chaque point.

4.3. Données et méthodes

4.3.1. Données

Le site de Bellezane est suivi par ORANO AMF depuis son réaménagement en 1992. Les données utilisées dans ce chapitre sont issues d'un suivi hydrologique, météorologique et géochimique entre janvier 2010 et juillet 2023 (Figure 4.5). Avant janvier 2010, les données n'étaient pas disponibles.

4.3.1.1. Suivi météorologique

Les données météorologiques proviennent de la station Météo-France de Limoges située à 30 km au sud du site et acquises entre 2010 et juin 2020 au pas de temps journalier. Depuis juin 2020, une station météorologique est installée à Bessines-sur-Gartempe (3 km à l'ouest du site)

permettant d'observer plus précisément les évènements locaux. Les deux jeux de données présentent une bonne corrélation (r = 0,67, Figure 4.6) et sont cohérents avec 2 % d'erreur sur les cumuls mensuels de précipitations entre juillet 2020 et mai 2023. Les chroniques de température et de précipitations utilisées dans cette thèse sont issues de Météo-France Limoges jusqu'en juin 2020 puis de la station d'ORANO à Bessines-sur-Gartempe. Les précipitations moyennes sont de 961 mm/an et la température moyenne annuelle est de 11,9°C entre janvier 2010 et décembre 2022.



Figure 4.6 : Corrélation entre les précipitations mensuelles à Bessines-sur-Gartempe et Météo-France Limoges entre juillet 2020 et mai 2023.

4.3.1.2. Suivi hydrologique

Depuis janvier 2010, le suivi du site est réalisé au pas hebdomadaire avec une mesure de débit effectuée avec un seau et un chronomètre sur trois pôles d'eaux (TB100, V105 et VTMS) et un cumul du volume sortant du site par surverse toutes les semaines (BZN2, Figure 4.2). Les eaux provenant de MMT sont pompées une fois par semaine (chronique disponible de janvier 2010 à décembre 2022) à partir d'un bassin tampon vers le site de Bellezane. Le pôle descenderie (DESC) n'était pas quantifié avant le début de cette thèse. Pour étudier le site et avoir une idée du fonctionnement au pas de temps journalier de l'amont à l'aval du bassin versant, plusieurs points ont été instrumentés en mars 2021 pour suivre le débit et la conductivité électrique lorsque cela était possible.

Un déversoir à seuil triangulaire muni d'une sonde de pression et de conductivité électrique OTT (précision $\pm 0,05$ %, échelle totale 0 - 10 m, Figure 4.7) a été installé sur cinq points d'arrivée d'eau par des drains. Ces instruments permettent d'avoir un suivi journalier, par conversion hauteur d'eau/débit, des débits vers la station de traitement (pôles DESC1, DESC2,

TB100, V105) et vers le bassin de rejet (VTMS). Ces dispositifs de mesure ont été dimensionnés et installés avec Damien Regnier (SDR-IE, <u>https://sdr-ie.fr/</u>).



Figure 4.7 : Seuil triangulaire et sonde de pression au point (a) DESC1 et (b) V105.

Deux autres points ont été instrumentés dans le ruisseau des Magnelles, à l'aval du site (Pont et MagAval). Deux solutions ont donc été mises en place pour s'adapter au terrain sans devoir modifier le lit du ruisseau.

Pour le point Pont situé sur le cours d'eau des Magnelles (Figure 4.5), une sonde de pression et de conductivité électrique (similaire à celles utilisées dans les déversoirs) a été placée contre le mur du pont, pour mesurer la hauteur d'eau (Figure 4.8a). Lors de chaque mission de terrain (environ 1 fois tous les 3 mois), une mesure de débit a été réalisée avec un courantomètre à induction magnétique (OTT MF Pro, ± 2 % de la valeur mesurée de 0 à 3 m/s) ou avec un micromoulinet. Le couplage de ces enregistrements/mesures de hauteur d'eau et de débit ponctuel a permis d'établir une courbe de tarage pour ce point (Figure 4.8b).



(*a*)



Figure 4.8 : (a) Sonde de pression installée pour mesurer la hauteur d'eau sous le pont et (b) la courbe de tarage établie pour le point Pont situé dans le ruisseau des Magnelles à 10 m du point de rejet.

Au point MagAval juste avant la confluence avec la Gartempe (environ 15 m), le ruisseau des Magnelles s'écoule dans son lit naturel. Pour mesurer la hauteur d'eau, deux échelles limnimétriques ont été installées dans le fond du lit (Figure 4.9a et b). Pour obtenir une chronique de hauteur d'eau, un appareil photo est positionné en face des échelles pour prendre des photos des échelles et du cours d'eau à intervalle régulier (6 photos pendant la journée, Figure 4.9c). La chronique de hauteur d'eau est réalisée en utilisant la hauteur de la photo de midi. Seule l'échelle de gauche est finalement utilisée car le suivi photo présente des lacunes sur celle de droite. Lors de chaque mission de terrain (environ 1 fois tous les 3 mois), une mesure de débit a été réalisée avec le même courantomètre à induction magnétique ou le micromoulinet. Là encore, nous avons pu établir une courbe de tarage en ce point (Figure 4.9d).



(a)





(c)



(d)

Figure 4.9 : (a) Les deux échelles limnimétriques dans le ruisseau des Magnelles en hautes eaux et (b) basses eaux, (c) l'appareil photo installé et (d) la courbe de tarage établie pour le point MagAval.



Figure 4.10 : Débit historique hebdomadaire mesuré entre janvier 2010 et mars 2021 et débit journalier mesuré depuis avril 2021 avec les précipitations journalières.

La Figure 4.10 montre le débit mesuré depuis janvier 2010 avec une mesure ponctuelle par semaine et les débits journaliers depuis 2021. Chaque sonde mesure la hauteur d'eau toutes les 6 heures et une moyenne de ces 4 valeurs est réalisée puis convertie pour obtenir une valeur de débit journalière. Le pôle majoritaire est le pôle DESC, suivi du pôle TB100, du pôle VTMS et le pôle minoritaire est le pôle V105.

Les débits observés historiquement sur les pôles TB100, V105 et VTMS ont les mêmes dynamiques saisonnières. Deux pics de débits sont observés en avril 2012 et février 2014 mais ne semblent pas corrélés avec de fortes précipitations. Cela peut venir d'évènements pluvieux locaux qui ne sont pas observés à Limoges. Le pic de débit observé en juillet 2021 correspond à un orage de 77 mm en une journée. Le pic de débit a été mesuré à 244 m³/h à l'exutoire du pôle DESC. Pour les pôles V105 et VTMS, l'augmentation du débit n'est pas marquée. Le suivi ne fonctionnait pas pour le pôle TB100.

A l'aval du bassin versant, les deux dispositifs installés en mars 2021 (Pont) et juillet 2021 (MagAval) permettent de mesurer des débits journaliers en ces deux points (Figure 4.11). MagAval est utilisé comme exutoire du modèle de ce bassin versant même s'il se situe à 15 m de l'exutoire réel du bassin versant. Le suivi montre le pic de débit pour le point Pont en juillet 2021. Il s'en suit une longue période de récession. Un pic de débit est observé pour le point MagAval (2177 m³/h) en décembre 2021 correspondant à 3 jours pluvieux consécutifs pour un total de 50 mm. Cette valeur est à prendre avec du recul car elle est calculée pour une hauteur d'eau de 93,5 cm, avec le ruisseau des Magnelles qui sort de son lit. La courbe de tarage n'est pas fiable pour ces hauteurs d'eau. Au point Pont, le pic est moins marqué (97 m³/h). Cette

différence peut s'expliquer par les bassins liés au traitement des eaux qui tamponnent les débits dans le site, à l'amont du pont.



Figure 4.11 : Débit journalier du ruisseau des Magnelles mesuré en deux points (Pont et MagAval) entre avril 2021 et juillet 2023 avec les précipitations journalières.

4.3.1.3. Suivi physico-chimique (EC, pH, [SO₄], [U], [²²⁶Ra])

Le site est suivi chimiquement en différents points pour le pH, les ions sulfate, l'uranium et le radium au pas de temps mensuel depuis 2010 (Figure 4.12). Le point BZN2, à la sortie du site, et le point BZNB à l'aval sont aussi suivis pour l'aluminium et le baryum (Figure 4.12). Deux missions de prélèvements géochimiques ont été réalisées en mars et septembre 2021 sur 11 points. La mesure des concentrations en cations, anions, éléments traces et radium ainsi que les paramètres physico-chimiques ont été effectuées. Sur ces mêmes points, un suivi mensuel a été réalisé de janvier à juillet 2023 pour mesurer les concentrations en ions majeurs. Les analyses ont été réalisées au laboratoire de Sorbonne Université par Jamel Benmamar.



Figure 4.12 : Schéma des eaux du site de Bellezane et les points de mesure de chimie avec la disponibilité des données.

4.3.1.3.1. Conductivité électrique

Avant 2021, la conductivité électrique n'était pas suivie sur le site. La Figure 4.13 montre la conductivité électrique mesurée ponctuellement lors des différentes missions entre mars 2021 et juillet 2023. MMT et V105 sont les pôles les plus minéralisés (moyenne janvier à juillet 2023, MMT = $1560 \,\mu$ S/cm et V105 = $1150 \,\mu$ S/cm). En juillet 2021, les mesures ont été réalisées après un orage (77 mm en une journée), illustrant une dilution lors des très fortes pluies sur tous les points (MMT = $1040 \,\mu$ S/cm et V105 = $800 \,\mu$ S/cm). La conductivité électrique aux points MagAmont et MagAval diminue de février à juin 2023 (MagAmont = 367 à 190 μ S/cm et MagAval = 460 à 263 μ S/cm) lorsque les précipitations sont élevées puis remonte en juillet 2023 avec cumul mensuel précipitations inférieur à 50 mm/mois un des (MagAmont = 365μ S/cm et MagAval = 475μ S/cm). Au point Pont, considéré comme la confluence entre le rejet BZN2 et MagAmont, la conductivité électrique est plus élevée qu'au point MagAval montrant une contribution naturelle du bassin versant (diminution moyenne de 22 % entre MagAmont et MagAval entre juillet 2021 et juillet 2023).





4.3.1.3.2. рН

Sur le site de Bellezane, les eaux ne sont pas acides (Figure 4.14) sauf celles issues de V105 présentant une légère acidité (pH ~ 4,5). Cette acidité provient des stériles miniers stockés dans cette verse soumise à l'altération météorique en contexte granitique, au contraire des stériles stockés dans VTMS (pH ~ 7). Dès le mélange dans le bassin de réception avant traitement (BZN1), les eaux présentent des pH déjà conformes aux limites de rejet (5,5 < pH < 8,5). Un pH de 5,5 correspond au pH de l'eau de pluie et de l'eau ayant circulé dans un milieu granitique.



Figure 4.14 : pH mensuel mesuré entre janvier 2010 et juillet 2023 avec le cumul mensuel des précipitations. BZN2 (rouge) est le point de rejet.

4.3.1.3.3. Concentration en sulfate

La Figure 4.15a montre l'évolution de la concentration en sulfate depuis janvier 2010 au pas de temps mensuel. Les deux pôles majoritaires sont, comme pour la conductivité électrique, MMT et V105. La concentration minimale observée est de 260 mg/L pour MMT et 436 mg/L pour V105 et celle maximale est de 920 mg/L pour MMT et 707 mg/L pour V105. Au niveau du rejet (BZN2), les concentrations sont en moyenne de 270 mg/L entre janvier 2010 et juillet 2023 et diminuent vers l'aval avec la dilution du rejet par les eaux arrivant du bassin versant naturel ([SO4] ~ 150 mg/L à MagAval). Depuis janvier 2010, la concentration en sulfate diminue significativement pour les points BZN1, BZN2 et BZNB. La Figure 4.15b montre les concentrations en sulfate avec le suivi mensuel depuis janvier 2023 sur tous les points. Pour les échantillons de juin 2023, la concentration en sulfate est significativement plus faible que pour les échantillons précédents. Le prélèvement a été réalisé ce jour-là sous de fortes précipitations (15 mm en 3 heures), ce qui a probablement dilué les écoulements de surface.



Figure 4.15 : Concentration mensuelle en sulfate mesurée entre (a) janvier 2010 et juillet 2023 et (b) janvier et juillet 2023 avec le cumul mensuel des précipitations. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet.

4.3.1.3.4. Uranium

La Figure 4.16 montre l'évolution des concentrations en uranium dans les eaux de différents pôles depuis janvier 2010 au pas de temps mensuel. Entre 2012 et 2014, la concentration en uranium avant traitement est ponctuellement au-dessus de la limite de rejet (0,8 mg/L) et très largement en novembre 2012 (3,3 mg/L) au point TB100. Après le traitement, la concentration en uranium à la sortie du site est toujours inférieure à la limite de rejet. Des prélèvements ont été réalisés entre janvier et juillet 2023 sur les autres points de suivi et les analyses sont en cours pour connaître la concentration en uranium sur tous les pôles.



Figure 4.16 : Concentration mensuelle de l'uranium mesurée entre janvier 2010 et décembre 2022 avec le cumul mensuel des précipitations. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet.

4.3.1.3.5. Radium

La Figure 4.17 montre l'évolution des concentrations en radium dans les eaux de différents pôles depuis janvier 2010 au pas de temps mensuel. La concentration avant traitement (BZN1) est supérieure à la limite de rejet (0,25 Bq/L). Sur ce site, la limite de rejet en radium est plus faible que sur les autres sites ([226 Ra] = 0,27 Bq/L). Les pôles MMT et TB100 présentent des concentrations très variables au cours du temps. Pour MMT, elle varie d'un minimum de 0,04 Bq/L à un maximum de 1,5 Bq/L. Pour TB100, la concentration varie d'un minimum de 0,21 Bq/L à un maximum de 1 Bq/L. Le traitement effectué dans la station diminue la concentration à des valeurs inférieures à 0,1 Bq/L. En janvier 2018, la concentration en radium dépasse ponctuellement la limite de rejet probablement due à la concentration élevée en radium au point MMT. Des prélèvements ont été réalisés entre janvier et juillet 2023 sur les autres points de suivi et les analyses sont en cours pour connaître la concentration en radium sur tous les pôles.



Figure 4.17 : Concentration mensuelle du radium mesurée entre janvier 2010 et décembre 2022 avec le cumul mensuel des précipitations.

4.3.1.4. Changement climatique

Pour analyser les changements de température et de précipitation à la fin du siècle, nous avons utilisé les données journalières de 6 modèles pour 3 scénarios RCP soit 18 simulations (Tableau 2.1). Ces données sont récupérées sur la maille de $8x8 \text{ km}^2$ qui englobe le site de Bellezane (centre de la maille situé à ~ 3,5 km du site, latitude : 46,084999°; longitude : 1,354560°). Le Tableau 4.2 résume d'une part les variations moyennes de température et de précipitations entre deux périodes de 30 ans, l'une au début du siècle 2006-2036 et l'autre en fin de siècle 2070-2100 et d'autre part le nombre de tendances significatives estimées avec le test de Mann-Kendall parmi les 18 simulations. La variation des températures est inférieure à celle estimée au niveau de la France mais montre quand même un réchauffement jusqu'à 3°C pour le scénario RCP8.5. Concernant les précipitations, la variation est minime au niveau du site (± 1 %) et 4 simulations seulement sur 18 montrent une tendance significative. Le site de Bellezane se situant à la limite nord/sud de la France, ils confirment les estimations à l'échelle de la France qui montrent une augmentation des précipitations dans la moitié nord de la France pour tous les scénarios RCP et diminution dans la moitié sud pour les scénarios RCP4.5 et 8.5 (Soubeyroux et al., 2020).

	Tempé	rature	Précipitations		
Scénario	Variation (°C)	Tendance significative	Variation (%)	Tendance significative	
RCP2.6	+ 0,3	5/6	-0,8	1/6	
RCP4.5	+ 1,3	6/6	+ 0,6	1/6	
RCP8.5	+ 3,0	6/6	+ 0,3	2/6	

Tableau 4.2 : Variation globale moyenne entre 2006-2036 et 2070-2100 simulée par 6 modèles pour chaque scénario RCP et les tendances significatives estimées par le test de Mann-Kendall pour la température et les précipitations du site de Bellezane.

4.3.2. Méthodes relatives à l'analyse de données

4.3.2.1. Corrélation croisée

Les corrélations croisées sont utilisées pour décrire le comportement hydrologique et géochimique des différents points d'intérêt du site. La relation entre la pluie et le débit est calculée au pas de temps journalier entre avril 2021 et juillet 2023 et mensuelle entre janvier 2010 et juillet 2023 pour VMTS, V105, TB100 et MMT. Les corrélations croisées entre les précipitations et les concentrations chimiques des eaux sont calculées au pas de temps mensuel. Pour les ions sulfate et le pH, le calcul est effectué entre janvier 2010 et juillet 2023 et entre janvier 2010 et décembre 2022 pour le radium et l'uranium.

4.3.2.2. Bilan hydrologique

Le bilan hydrologique est calculé au pas de temps mensuel et agrégé à l'échelle annuelle entre octobre 2010 et septembre 2022. Pour les points DESC et MagAval, le bilan est calculé à l'échelle mensuelle entre octobre 2021 et septembre 2022. Dans notre cas, le bilan hydrologique a été utilisé à la fois pour calculer les lames d'eau écoulées là où elles ne sont pas mesurées (MagAmont et MagAval) et pour déterminer la surface drainée par chaque pôle (DESC, V105, VTMS et TB100, équation 4.1).

$$Q\left(\frac{m^3}{an}\right) = P_{eff}\left(\frac{m}{an}\right) \times S(m^2)$$

$$4.1$$

En effet, sur un site minier avec des TMS, les surfaces topographiques ne correspondent pas toujours aux surfaces drainées souterraines. La surface est ajustée pour que la différence entre la pluie efficace et le débit présente le moins de différence possible, tout en respectant l'emprise historique connue des aménagements (Figure 4.1a).

4.3.3. Méthodes relatives à la modélisation

4.3.3.1. Modèle global GoldSim

L'analyse des données permet de caractériser individuellement les différents pôles d'arrivées d'eau sur le site. Le modèle GoldSim® est utilisé pour intégrer le fonctionnement hydrologique du site minier (partie violette sur la Figure 4.18) et celui de la partie naturelle (partie verte sur la Figure 4.18) dans une chaîne de modélisation à l'échelle du bassin versant. Le logiciel GoldSim® est la principale solution de simulation Monte Carlo pour l'analyse des incertitudes (GoldSim Technology Group, 2023). Il permet aussi de représenter des systèmes complexes et de réaliser des modélisations dynamiques.



Figure 4.18 : Schéma conceptuel du modèle hydrologique.

La modélisation à l'échelle du bassin versant est réalisée en deux temps. Tout d'abord, la simulation des débits en utilisant un modèle hydrologique (GR4J) pour chaque pôle en se basant sur les débits observés historiques et journaliers pour obtenir des données journalières sur l'ensemble du site minier. Malgré le peu d'information disponible, des modèles hydrologiques ont été développés à l'aval du bassin versant pour modéliser l'apport naturel du bassin versant. Enfin, une fois le modèle hydrologique du bassin versant validé, les sulfates sont utilisés comme traceur conservateur parfait en réalisant des mélanges entre les différentes arrivées d'eau Des points de contrôles hydrologiques (rond orange sur la Figure 4.18) et géochimiques (rond violet sur la Figure 4.18) sont utilisés pour vérifier la qualité des simulations.

Le modèle global à l'échelle du bassin versant est composé de :

- quatre modèles GR4J pour simuler les débits de quatre pôles d'arrivée d'eau au bassin de réception (BZN1) : DESC qui représente le cumul de DESC1 et DESC2, TB100, V105 et VTMS.
- un apport ponctuel par semaine de volume d'eau provenant du site de MontMassacrot (MMT).
- trois autres modèles GR4J servent à simuler les débits du ruisseau des Magnelles provenant du bassin versant naturel : MagAmont et ApportNaturel. Ces deux pôles sont calés en utilisant le débit mesuré à MagAval en fonction de leur proportion à ce point.
 - MagAmont représente les apports du ruisseau des Magnelles à la confluence avec le rejet du site (Pont).
 - ApportNaturel correspond aux arrivées d'eau naturelles entre la confluence (Pont) et l'exutoire du bassin versant. Le modèle GR4J ApportNaturel est séparé en deux sous modèles GR4J ayant les mêmes paramètres. Cette séparation du modèle est seulement faite d'un point de vue modélisation :
 - ApportNaturel (partie amont) correspondant aux apports entre Pont et BZNB.
 - ApportNaturel (partie aval) correspondant aux apports entre BZNB et MagAval.
- pour les autres points d'intérêt, le débit est une somme de plusieurs débits simulés (BZN2 = DESC + TB100 + V105 + VTMS+MMT, Pont = MagAmont + BZN2, MagAval = Pont + ApportNaturel). Les points Pont et MagAval sont utilisés comme points de contrôle pour les débits.

Dans le modèle global, la station de traitement, les bassins de réception, de décantation et de rejet (rectangle orange sur la Figure 4.18) sont caractérisés par leur volume fourni par ORANO (station de traitement = 1 m^3 , bassin de réception = 530 m^3 , bassin de décantation $1 = 3300 \text{ m}^3$, bassin de décantation $2 = 1200 \text{ m}^3$ et bassin de rejet = 2800 m^3). Dès qu'ils sont pleins, la surverse est transférée au bassin suivant. Le modèle intègre aussi la contribution des précipitations sur chaque bassin. La station de traitement est définie comme un bassin avec un volume de 1 m^3 car l'eau n'est pas stockée et passe par un circuit permettant de mélanger l'eau et les réactifs de traitement (sulfate d'alumine, chlorure de baryum et soude). L'ajout du sulfate d'aluminium n'est pas intégré dans le modèle. Le volume d'eau reste inchangé au cours du traitement.

Les débits et les mélanges sont simulés entre le 1^{er} janvier 2010 et le 19 juillet 2023 après une période d'initialisation d'un an (1^{er} janvier 2009 au 31 décembre 2009) au pas de temps journalier en utilisant les précipitations et la température mesurées à Limoges puis à Bessinessur-Gartempe à partir de juin 2020.

4.3.3.2. Le modèle hydrologique GR4J

Le modèle « pluie-débit » GR4J au pas de temps journalier (Génie Rural à 4 paramètres Journalier, Perrin et al., 2003) est une référence parmi les modèles « pluie-débit ». Ce modèle a été utilisé dans de nombreuses études opérationnelles et de gestion de l'eau particulièrement

en France. La Figure 4.19 représente la structure du modèle GR4J composé de 4 paramètres libres :

- X_1 : la capacité maximale du réservoir de production comprise entre 0 et 2500 mm,
- X_2 : le coefficient d'échange souterrain entre les bassins compris entre 5 et 5 mm/jour,
- X_3 : la capacité maximale du réservoir de routage comprise entre 0 et 1000 mm,
- X_4 : le temps de base de l'hydrogramme unitaire compris entre 0 et 10 jours.

La fonction de production détermine la part des précipitations qui se transforme en débit à partir de la différence entre les précipitations (*P*) et l'évapotranspiration potentielle (*PE*) calculée avec la formule d'Oudin et al. (2005), et du niveau du réservoir de production ($S < X_1$). La percolation du réservoir de production est aussi fonction de *S* et de X_1 . Le paramètre X_2 indique si le bassin gagne ($X_2 > 0$) ou perd de l'eau ($X_2 < 0$) par échange souterrain. Les précipitations efficaces sont réparties dans le temps par deux hydrogrammes unitaires dont le temps de base est X_4 (UH1 et UH2). La majeure partie des pluies (90 %) est routée par l'hydrogramme unitaire (UH1) puis par le réservoir de routage dont la valeur maximum est X_3 . Les 10 % restants sont routés par un unique hydrogramme unitaire (UH2) qui représente les écoulements plus rapides. UH1 et UH2 dépendent du même paramètre X_4 . Le débit total généré est la somme des débits provenant du réservoir de routage et de l'hydrogramme unitaire UH2 après échange avec le souterrain.



Figure 4.19 : Schéma du modèle hydrologique GR4J (P : précipitations, E : évaporation potentielle, Q : débit, Xi : paramètre i et les annotations supplémentaires correspondent aux variables internes, source : <u>https://webgr.inrae.fr/modeles/journalier-gr4j-2/</u>).

Pour représenter au mieux les débits observés, les quatre paramètres doivent être calés. En général, le calage s'effectue en séparant la période d'observation en deux (Figure 4.20). Une des deux parties est utilisée pour caler les paramètres du modèle (calage) et l'autre partie sert à tester la robustesse du modèle (validation), c'est-à-dire la transférabilité d'un jeu de paramètres d'une période à une autre. Les paramètres du modèle sont optimisés de façon à obtenir le meilleur résultat pour une fonction objectif donnée (FO). Chaque FO optimise différemment les paramètres du modèle. Deux FO (NSE, Nash et Sutcliffe, 1970) et le KGE (Gupta et al., 2009), voir section 4.3.3.4) sont utilisées dans cette étude pour tester l'impact du choix de la FO sur la simulation des débits.



Figure 4.20 : Illustration de la méthode de calage/validation pour optimiser les paramètres des modèles hydrogéologiques GR4J (cas de VTMS).

De plus, le calage se basant sur des données observées, le choix de la période de calage utilisée peut avoir des conséquences sur le modèle. Quatre périodes de calage ont été testées pour chaque FO (pour les pôles V105, VTMS et TB100, Tableau 4.3). La validation a été effectuée sur la période complémentaire ou sur toute la période de données disponibles :

- calage 1 sur la période journalière : 14/04/2021 17/07/2023,
- calage 2 sur la période hebdomadaire : 01/01/2010 31/03/2021,
- calage 3 sur la période composée de la moitié des débits hebdomadaires et de la moitié des débits journaliers : 01/01/2017 – 16/05/2022,
- calage 4 sur toute la chronique : 01/01/2010 17/07/2023.

Pour les pôles sur lesquels le calage se fait uniquement avec des données journalières (DESC, MagAmont et ApportNaturel). Pour MagAmont et ApportNaturel, les débits sont calés sur le débit observé à MagAval en fonction de la proportion de chacun des pôles à ce point. 3 périodes de calage ont été testées pour les deux FO (Tableau 4.3). La validation a été effectuée sur la période complémentaire :

- calage 5 sur la première moitié de la période journalière (P1),
- calage 6 sur la deuxième moitié de la période journalière (P2),
- calage 7 sur toute la période journalière.

Le Tableau 4.3 récapitule les différents tests de calage effectués pour chaque modèle GR4J. Ces tests ont été réalisés pour chaque pôle indépendamment de GoldSim® avec le package R

« airGR » (Coron et al., 2020, 2017) dans lequel est implémenté un calage automatique des paramètres.

	V105	TB100	VTMS	DESC	MagAmont	ApportNaturel
Calage 1	Oui	Oui	Oui	-	-	—
Calage 2	Oui	Oui	Oui	—	-	—
Calage 3	Oui	Oui	Oui	—	-	—
Calage 4	Oui	Oui	Oui	—	—	—
Calage 5	—	—	—	Oui	Oui	Oui
Calage 6	—	—	—	Oui	Oui	Oui
Calage 7	_	_	—	Oui	Oui	Oui

Tableau	43	· Réca	nitulatif	des	tests	de	calage	effectués	pour	chaqu	ie modèle	GR4I
1 abicau	т.у	. Ruca	pitulatil	ucs	icois	uc	carage	cificulues	pour	unaqu	ic moucie	UINTJ.

4.3.3.3. Mélange

Le modèle global GoldSim réalise un mélange en se basant sur les débits simulés de chaque pôle et leur concentration en sulfate (équation 4.2). Ces derniers sont considérés comme traceur conservateur parfait. Les concentrations en chlorure auraient pu être utilisées comme traceur parfait mais les concentrations dans les eaux de Bellezane sont très faibles ([Cl] = 5 à 35 mg/L pour tous les pôles) et il y a très peu de données disponibles (janvier à juillet 2023).

$$C_{M\acute{e}lange}[SO_4^{2-}] = \frac{C_A[SO_4^{2-}] \times Q_A + C_B[SO_4^{2-}] \times Q_B}{Q_A + Q_B}$$

$$4.2$$

Le débit de chaque pôle est simulé par les modèles hydrologiques. La concentration en sulfate de chaque pôle est définie à partir des données disponibles à partir de 2010 (DESC, V105, TB100, VTMS, MMT, MagAmont, ApportNaturel). Le suivi mensuel de la concentration en sulfate n'existe que pour MMT entre 2009 et 2023. Deux campagnes de prélèvement en hautes et basses eaux (avril et septembre 2008) ont été réalisées par Ledoux et Schmitt (2010) permettant d'avoir une idée de la concentration initiale en sulfate pour chaque pôle. La concentration initiale est définie en utilisant la moyenne des deux concentrations (avril et septembre 2008). Après 2009, aucune donnée n'est disponible pour tous les points sauf MMT. Les mesures suivantes sont en mars et septembre 2021 puis entre janvier et juillet 2023. Entre deux valeurs mesurées, la concentration manquante est interpolée de façon linéaire entre la valeur précédente et la valeur suivante. La variabilité d'un mois à un autre peut être importante (chronique MMT) et l'utilisation des données mensuelles à la suite de données interpolées peut avoir quelques incohérences selon le mois où la mesure a été réalisée.

La Figure 4.21 montre l'évolution des concentrations en sulfate entre 2009 et 2023 telle qu'elle est imposée dans le modèle. Les concentrations en sulfate mesurées et simulées par le modèle de mélange sont comparées à différents points de contrôle (BZN1, BZN2, BZNB) avec de longues chroniques (2010-2023) et aux points Pont et MagAval entre janvier et juillet 2023. Les concentrations en sulfate imposées dans le modèle sont limitées et ne permettent pas

d'apprécier les variations saisonnières des différents pôles pourtant observées à MMT. Une analyse de sensibilité devrait être effectuée pour déterminer l'impact de ce manque de données.



Figure 4.21 : Reconstitution de l'évolution des concentrations en sulfate pour les pôles DESC, V105, TB100, VTMS, MagAmont et concentration en sulfate observée pour MMT. Ces concentrations en sulfate sont imposées pour réaliser le mélange.

4.3.3.4. Evaluation des modèles

Les performances des modèles hydrologiques et du modèle de mélange sont évaluées en utilisant les critères de performance de Nash-Sutcliffe (*NSE*, Nash et Sutcliffe, 1970) et de Kling-Gupta (*KGE*, Gupta et al., 2009). Le *NSE* et le *KGE* sont aussi utilisés comme fonction objectif pour caler les modèles.

$$NSE = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n} (O_i - S_i)^2}{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \overline{O})^2},$$
4.3

$$KGE = 1 - \sqrt{(r-1)^2 + (\alpha - 1)^2 + (\beta - 1)^2},$$
4.4

$$r = \frac{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \bar{O})(S_i - \bar{S})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \bar{O})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^{n} (S_i - \bar{S})^2}},$$
4.5

où *S* est le débit simulé, \overline{S} le débit moyen simulé, *O* le débit observé, \overline{O} le débit moyen observé et *n* la longueur de la série temporelle pour les équations 4.3 et 4.5. Pour l'équation 4.4, *r* est le coefficient de corrélation de Pearson défini à l'équation 4.5, α le rapport entre l'écart-type des

données observées et l'écart-type des données simulées, et β le rapport entre la moyenne des données observées et la moyenne des données simulées. Les critères sont calculés sur toutes les données mais aussi séparément sur la série de données hebdomadaires et la série de données journalières. Ces critères de performance doivent être égaux à 1 pour des modèles parfaits. *NSE* et *KGE* sont des critères reconnus pour évaluer les performances des modèles hydrologiques. Ces deux critères donnent plus d'importance aux forts débits.

Chaque modèle GR4J est évalué individuellement. Lorsque tous les modèles GR4J sont assemblés dans le modèle global GoldSim, les débits simulés sont comparés aux débits observés aux points Pont et MagAval.

La concentration en sulfate simulée est évaluée au point BZN1, BZN2 et BZNB grâce au suivi historique (janvier 2010 à juillet 2023) et ponctuellement au niveau de Pont et de MagAval (mars et septembre 2021 et janvier à juillet 2023). Les performances des mélanges sont évaluées avec l'erreur quadratique moyenne normalisée par la gamme des valeurs observées (maximumminimum, SRMSE) définie par l'équation 4.6.

$$SRMSE = \frac{\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} (S_i - O_i)^2}{n}}}{\max(0) - \min(0)}$$
 4.6

où S est la concentration en sulfate simulée, O la concentration en sulfate observée et n la longueur de la série temporelle. Lorsque les modèles sont parfaits, le coefficient de corrélation est égal à 1 et la SRMSE est égale à 0.

4.4. Analyse de données

Cette quatrième partie traite de l'analyse et de la critique des données, des résultats apportés par le suivi des débits, notamment au sujet de la dynamique des pôles ou de la surface drainée par chacun d'entre eux.

4.4.1. Proportion des débits à la station de traitement

La Figure 4.22 montre la contribution volumique mensuelle des différents pôles à la station de traitement entre octobre 2021 et septembre 2022 en utilisant les données observées journalièrement. Le point TB100 présentant de nombreuses lacunes entre août 2021 et mars 2022 et entre août 2022 et novembre 2022, celles-ci ont été comblées par les simulations. Les eaux proviennent majoritairement de la descenderie DESC (74 %), puis du drain TB100 (14,7 %) et enfin de trois pôles minoritaires (MMT (8,7 %), V105 (2,3 %) et LIXI (0,3 %)). LIXI représente les écoulements venant des nouveaux stockages déposés dans la MCO68-105 et ne sont pas pris en compte dans cette étude car les débits sont très faibles par rapport aux autres pôles. La contribution de DESC varie entre 68 % en janvier et 84 % en juillet et août, celle de TB100 entre 5 % en juillet et 20 % en janvier et celle de V105 entre 1 % pendant la période hivernale et 6% en octobre.



 $\begin{array}{ll} Figure \ 4.22: Contribution \ movenne \ mensuelle \ des \ pôles \ à \ la \ station \ de \ traitement \ entre \ octobre \ 2021 \ et \ septembre \ 2022 \ (DESC = 12855 \ m^3/mois, \ TB100 = 2525 \ m^3/mois, \ MMT = 1523 \ m^3/mois, \ V105 = 338 \ m^3/mois \ et \ LIXI = 55 \ m^3/mois). \end{array}$

4.4.2. Critique du volume BZN2

La Figure 4.23 compare la somme des débits observés sortant du site (DESC, V105, TB100, MMT et VTMS) avec le volume estimé à la surverse au point BZN2, mois par mois entre mai 2021 et décembre 2022. La mesure au point BZN2 devrait être égale à la somme des débits. Ici, la somme des débits observés est toujours très inférieure à la mesure faite à BZN2. En moyenne, la valeur observée en BZN2 est 72 % plus élevée que la somme des débits (Somme $Q = 20432 \text{ m}^3$ et Obs BZN2 = 35190 m³). Le volume estimé au point BZN2 apparaît donc très surestimé.



Figure 4.23 : Comparaison du volume mensuel moyen à BZN2 calculé avec le cumul des débits mesurés aux pôles DESC, V105, VTMS, TB100 et MMT et l'observation réalisée à BZN2.

La Figure 4.24 montre les volumes annuels sortant du site à BZN2 et les précipitations annuelles pour les mêmes années. Les volumes sortants du site devraient être corrélés avec les précipitations, or des incohérences sont détectées entre les années 2016 et 2017, 2018 et 2019 et les années sèches (2011, 2017 et 2022). Le cumul annuel des précipitations est presque similaire pour les années 2016 (959 mm) et 2017 (943 mm) cependant les volumes annuels à BZN2 présentent une différence de -43% entre l'année 2016 (571823 m³) et 2017 (324479 m³). Pour des années plus humides présentant une différence entre les précipitations annuelles de 100 mm (2018 (1030 mm) et 2019 (1131 mm)), il est attendu des volumes sortants plus élevés en 2019 qu'en 2018. Or le volume observé à BZN2 pour l'année 2018 (845210 m³) est 65 % supérieur à celui observé pour l'année 2019 (511544 m³). Enfin, l'année 2022 est la plus sèche de toute la chronique (677 mm) alors que le volume à la sortie du site n'est pas le plus faible. Il est 32 % plus élevé que le volume le plus bas (267160 m³pour l'année 2011 avec 130 mm de précipitations de plus par rapport à 2022). Avec ces incohérences entre les précipitations et les volumes observés ainsi que la surestimation observée entre mai 2021 et décembre 2022, il apparait que les données de volume à BZN2 ont de fortes incertitudes, par conséquent, cette donnée ne sera pas utilisée dans le reste du chapitre. Ces différences peuvent s'expliquer par une mauvaise qualité des données à BZN2.



Figure 4.24 : Volume annuel observé à BZN2 et cumul des précipitations annuelles sur le site (points bleus) entre 2010 et 2022.

4.4.3. Dynamique des pôles

Le suivi des débits au pas de temps journalier permet d'avoir une estimation précise du temps de réaction de chaque pôle aux précipitations. La Figure 4.25a montre que l'ensemble des sousbassins souterrains et de surface réagissent rapidement aux précipitations. Au point VTMS, le débit est peu décalé dans le temps (0-1 jour). Les pôles DESC, TB100, Pont et MagAval réagissent une journée après les précipitations alors que l'augmentation du débit en V105 se produit 3 jours après les pluies.

La corrélation entre le cumul des précipitations mensuelles et les concentrations en sulfate (Figure 4.25b) montre que pour les points BZN2 et BZNB, la concentration en sulfate diminue avec l'augmentation des précipitations avec un mois de décalage alors que pour MMT et BZN1, il n'y a pas de corrélation significative entre la pluie et la concentration en sulfate.



(a)



Figure 4.25 : Corrélation croisée entre (a) la pluie et le débit entre avril 2021 et juillet 2023 au pas de temps journalier avec un décalage maximum de 30 jours et (b) la pluie et la concentration en sulfate entre janvier 2010 et juillet 2023 au pas de temps mensuel avec un décalage maximum de 12 mois. La ligne pointillée correspond à l'intervalle de confiance à 95 %.

4.4.4. .Bilan hydrologique

Le bilan hydrologique est utilisé pour déterminer la surface drainée par chaque pôle d'intérêt (DESC, V105, VTMS, TB100). Notons que l'année 2021-2022 a été marquée par une sécheresse importante en France avec un cumul sur l'année hydrologique de 718 mm soit 25 % de précipitations en moins que la moyenne pluriannuelle calculée entre 2010 et 2022. La majeure partie des précipitations a été évapotranspirée durant cette période sèche (564 mm/an).

La Figure 4.26a montre les lames d'eau (*Peff*) qui ont été calculées avec le bilan hydrologique. Les lames d'eau mesurées ne sont pas égales chaque année. En 2010-2011 et 2011-2012, les lames d'eau mesurées pour VTMS et TB100 sont plus élevées que celle de V105. L'inverse est aussi observé en 2012-2013 et 2019-2020 lors d'années pluvieuses. Les années sèches (2016-2017, 2018-2019 et 2021-2022) montrent une plus faible différence entre les lames d'eau.

Le bilan hydrologique a aussi été calculé pour le point MagAval entre octobre 2021 et septembre 2022 avec une réserve utile de 100 mm (Figure 4.26b). La lame d'eau moyenne calculée par le bilan hydrologique (15 mm/mois) présente une différence de 3 mm/mois avec le débit QMagAval (18 mm/mois). Le bilan est considéré comme correct même s'il n'a été calculé que sur une année hydrologique.



(a)



(b)

Figure 4.26 : Bilan hydrologique calculé pour (a) les pôles TB100, V105 et VTMS et (b) pour le pôle DESC avec une surface de 78 ha et le point MagAval avec une surface de 263,5 ha.

Les surfaces drainées par les pôles DESC, TB100, V105 et VTMS et estimées par le bilan hydrologique pluriannuel sont représentées sur la Figure 4.27 en se basant sur les contours BURGEAP et les tracés des TMS et MCO (Figure 4.1a).

- Pour TB100 (Figure 4.26a), la surface estimée est de 19,5 ha dont 1,5 ha à l'extérieur du bassin versant topographique. La pluie efficace moyenne (415 mm/an) calculée présente une différence de 0,5 % avec le débit mesuré QTB100 (418 mm/an). La surface calculée pour TB100 correspond à celle estimée par BURGEAP (2006), qui est de 17 ha.
- Pour V105, la surface estimée par le bilan hydrologique est de 5 ha, proche de celle estimée par (5,7 ha, BURGEAP (2006)). La différence entre QV105 (423 mm/an) et la pluie efficace moyenne est de 2 % (Figure 4.26a).
- La surface drainée par le drain VTMS est de 10 ha avec une différence de 0.5 % entre la pluie efficace moyenne et QVTMS (417 mm/an, Figure 4.26a).
- La surface estimée via le bilan hydrologique (octobre 2021 à septembre 2022) pour le bassin hydrogéologique de DESC est de 78 ha (Figure 4.27). La pluie efficace moyenne et le débit QDESC sont similaires (16,5 mm/mois, Figure 4.26b). Ce bassin versant recoupe les anciens TMS (traits orange sur la Figure 4.1a) et capte des eaux extérieures au bassin versant topographique au niveau de la MCO201 (trait rouge sur la Figure 4.27) sur une surface de 22 ha. L'estimation de BURGEAP (2006) de 103 ha était bien supérieure à la nôtre à partir des débits observés entre 2003 et 2006 et d'une estimation de l'infiltration de 230 mm/an.



Figure 4.27 : Représentation des surfaces des sous-bassins versants et le bassin versant topographique du ruisseau des Magnelles (fond de carte IGN25®).

	DESC	TB100	V105	VTMS	MagAmont	ApportNaturel	MagAval
Surface (ha)	78	19,5	5	10	25	119	263,5

Tableau 4.4 : Récapitulatif des surfaces des sous-bassins versants estimées par le bilan hydrologique et par QGIS.

La surface du sous-bassin versant MagAmont (ligne grise Figure 4.27) est de 25 ha et celle d'ApportNaturel est de 119 ha (ligne jaune Figure 4.27). Ces surfaces sont estimées en utilisant le logiciel QGIS (QGIS Development Team, (2023), version 3.4.12-Madeira).

En additionnant toutes les surfaces des sous-bassins versants, le total est de 256,5 ha (Tableau 4.4) dont 28,5 ha étant à l'extérieur du site. Par comparaison, le bassin versant topographique est estimée à 235 ha, 7 ha ne sont donc pas pris en compte dans ces bilans correspondant à des surfaces qui ne sont a priori drainées par aucun pôle (hachure noire sur la Figure 4.27). Cette surface n'est pas inclue dans le modèle mais contribue à l'exutoire du bassin versant car le bilan hydrologique calculé avec une surface de 263,5 ha est correct. Pour la suite de l'étude, on considère que l'eau ruisselle et rejoint le point bas de la vallée (BZN2).

4.4.5. Proportion de chaque pôle à Pont et MagAval

La proportion d'eau de chaque pôle après le rejet du site a été estimée à partir des surfaces drainées. Une comparaison est effectuée entre les concentrations en sulfate calculées à partir des proportions de surface et celles mesurées entre janvier 2023 et juillet 2023. Au point Pont, les eaux sont un mélange entre la sortie du site BZN2 (82,7 %) et MagAmont (17,3 %, Figure 4.27). Au point MagAval, le débit est composé à 54,8 % de Pont et 45,2 % d'ApportNaturel (Figure 4.27).

Pour savoir si les proportions déterminées par les surfaces et donc par les débits (bilan hydrologique) sont correctes, la concentration en sulfate mesurée mensuellement en 2023 est utilisée comme un paramètre conservatif de façon à réaliser un calcul de mélange au point Pont (équation 4.7). La concentration en sulfate du point ApportNaturel n'a jamais été mesurée et n'est donc pas connue La concentration en sulfate du point ApportNaturel n'est pas connue et est déterminée mois par mois de façon à minimiser l'erreur entre la concentration en sulfate observée et calculée au point MagAmont.

$$[SO_4^{2-}]_{Pont\ cal} = 82.7 \times [SO_4^{2-}]_{BZN2} + 17.3 \times [SO_4^{2-}]_{MagAmont}$$

$$4.7$$

$$[SO_4^{2-}]_{MagAval\,cal} = 54.8 \times [SO_4^{2-}]_{Pont\,obs} + 45.2 \times [SO_4^{2-}]_{ApportNaturel}$$
 4.8

Au point Pont, les proportions estimées à partir des mesures de débit au sein du site et de la surface drainée de MagAmont sont correctes (Tableau 4.5). L'erreur calculée pour les 7 mois est inférieure à 10 % sauf pour le mois de juin (50 %, Tableau 4.6). Cette différence s'explique par l'échantillonnage réalisé sous la pluie, lors d'un orage de 15 mm en 3 heures générant du ruissellement pour MagAmont et ApportNaturel.

Au point MagAval, nous partons du principe que la proportion estimée avec la surface mesurée sur QGIS (ApportNaturel) et le total au niveau du point Pont est correcte (Tableau 4.5). Le Tableau 4.7 résume les concentrations en sulfate estimées pour les 7 mois. Pour le mois de juin, la concentration estimée est de 16 mg/L ce qui confirme le ruissellement généré par la pluie lors de l'orage. La concentration moyenne en sulfate d'ApportNaturel pour les 6 mois (tous sauf juin) est de 62 mg/L et est utilisée comme concentration constante dans le modèle sur toute la période simulée.

Les concentrations en sulfate mesurées sont cohérentes avec les contributions relatives moyennes des différents pôles de mélange à l'aval du rejet minier. Ces proportions permettent de savoir la part du pôle MagAmont (9,5 % = $0,173 \times 0,548$) et celle de ApportNaturel (45,2 %) au point MagAval. Cela servira à caler les modèles hydrologiques.

	BZN2	MagAmont	Pont	ApportNaturel	MagAval
Surface (ha)	119,5	25	144,5	119	263,5
Proportion (%)	82,7 % Pont	17,3 % Pont	54,8 % MagAval	45,2 % MagAval	-

Tableau 4.5 : Récapitulatif des surfaces drainées par chaque pôle et la proportion des pôles aux points Pont et MagAval.

Tableau 4.6 : Concentrations en sulfate de janvier à juillet 2023 observées pour les points BZN2, MagAmont et Pont obs et calculée par rapport à la surface pour Pont cal. La dernière colonne indique l'erreur entre la concentration en sulfate observée et calculée au point Pont.

[SO ₄] (mg/L)	BZN2	MagAmont	Pont obs	Pont cal	Erreur (%)
Janvier	182	118	173	171	-1
Février	245	136	223	226	1
Mars	243	70	211	213	1
Avril	220	61	197	192	-2
Mai	215	73	208	190	-8
Juin	234	51	135	202	50
Juillet	226	117	224	207	-7

Tableau 4.7: Concentrations en sulfate de janvier à juillet 2023 observées pour les points Pont et MagAval obs, et calculée par rapport à la surface pour MagAval cal. La concentration en sulfate pour ApportNaturel est estimée manuellement de façon à minimiser l'erreur. La dernière colonne indique l'erreur entre la concentration en sulfate observée et calculée au point MagAval.

[SO ₄] (mg/L)	Pont	ApportNaturel	MagAval obs	MagAval cal	Erreur (%)
Janvier	173	80	129	131	2
Février	223	75	54	156	2
Mars	211	42	132	135	2
Avril	197	35	121	124	3
Mai	208	40	130	132	2
Juin	135	16	72	81	13
Juillet	224	97	165	166	1

4.5. Modélisation

4.5.1. Résultats de la modélisation hydrologique

4.5.1.1. Choix du calage pour chaque modèle GR4J

Le calage des modèles GR4J se fait pôle par pôle à partir des surfaces estimées précédemment et des données disponibles. Pour 3 des pôles (V105, VTMS et TB100), les chroniques de débit sont composées de débit ponctuel hebdomadaire et de débit journalier. Le Tableau 4.8 récapitule les performances des critères pour les 8 tests de calage/validation réalisés pour le point VTMS.

Tableau 4.8 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point VTMS pour les deux fonctions objectif et les quatre périodes de calage. Le « h » correspond au critère calculé sur la période avec les données hebdomadaires (01/2010-03/2021), le « j » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (04/2021-07/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, il n'y a pas de validation.

Critère	NSEh	KGEh	NSEj	KGEj	NSEg	KGEg				
Fonction objectif : NSE										
Calage 1	0,35	0,36	0,67	0,70	0,45	0,42				
Calage 2	0,49	0,62	0,01	-0,02	0,50	0,53				
Calaga 2	0,55	0,71	0,56	0,43	0.50	0.50				
Calage 3	0,41	0,38	0,15	0,24	0,50	0,30				
Calage 4	0,48	0,59	0,43	0,34	0,54	0,58				
	Fonction	objectif : l	KGE							
Calage 1	0,30	0,40	0,55	0,72	0,41	0,47				
Calage 2	0,32	0,65	-0,42	-0,11	0,37	0,57				
Calage 3	0,24	0,64	0,61	0,62	0.48	0.62				
	0,47	0,52	-0,14	0,13	0,48	0,62				
Calage 4	0,31	0,65	0,10	0,29	0,41	0,67				

Lorsque les modèles sont calés sur la période journalière (calage 1), les débits journaliers sont correctement reproduits (NSE et KGE > 0,6) mais les débits hebdomadaires ne le sont pas. Avec le calage sur la période hebdomadaire (calage 2), les débits journaliers sont très mal simulés pour les deux FO (NSE et KGE < 0,2). Pour le calage sur la période du milieu (calage 3), le résultat est correct en calage mais faible en validation. Enfin pour le calage sur toute la chronique (calage 4), les débits hebdomadaires et journaliers sont simulés de manière

satisfaisante avec un NSE global de 0,41 et un KGE global de 0,67 pour la FO KGE. Mais avec cette méthode de calage, il est impossible de vérifier les modèles en validation.

Pour VTMS, nous avons choisi d'utiliser le calage 3 présentant des meilleurs résultats en calage avec la FO KGE. Des résultats similaires sont obtenus pour le point V105 avec de meilleurs résultats pour la FO KGE (Annexe A4.1). Notre choix s'est porté sur le calage 3 et la FO KGE pour les mêmes raisons que VTMS. Pour le point TB100, la chronique de débits présente de nombreuses lacunes. Les résultats du calage 3 ne sont pas pris en compte car le paramètre X_2 est hors des limites de validité (Annexe A4.2). Les résultats des calages 1 et 2 n'étant pas satisfaisants, notre choix s'est porté sur le calage 4 avec la FO KGE. Le Tableau 4.9 résume le choix pour chaque modèle GR4J.

Pour les pôles n'ayant que des données journalières (DESC, MagAmont et ApportNaturel), 3 méthodes de calage ont été testées (partie 4.3.3.2) et les choix pour chaque modèle sont indiqués dans le Tableau 4.9. Pour le point DESC, les 3 méthodes de calage présentent de très bons résultats même si le calage 6 est moins bon que les deux autres pour les deux FO. Le choix s'est porté sur le calage 5 avec la FO KGE présentant des résultats légèrement meilleurs qu'avec la FO NSE.

Enfin les résultats pour les pôles MagAmont et ApportNaturel sont les mêmes car ils sont calés à partir du même débit (MagAval). En utilisant la méthode de calage 6, le NSE et le KGE sur la période de calage ne dépassent pas 0. La méthode de calage 5 avec la FO KGE permettant de tester les modèles en validation même montrent des résultats très mauvais pour la période de validation à cause du manque de données. Le choix a été fait de conserver la plus longue chronique de données pour caler les modèles sans validation (calage 7).

Tableau 4.9 : Récapitulatif des choix de la fonction objectif et de la méthode de calage pour chaque modèle GR4J.

Pôle	VTMS	V105	TB100	DESC	MagAmont	ApportNaturel
FO	KGE	KGE	KGE	KGE	KGE	KGE
Calage	3	3	4	5	7	7

4.5.1.2. Paramètres des modèles GR4J

Le Tableau 4.10 résume les valeurs obtenues pour les quatre paramètres de chaque modèle GR4J pour la FO KGE et le calage choisis. Pour tous les modèles, le paramètre X_2 est toujours négatif (sauf TB100) ce qui correspond dans les modélisations à une perte d'eau de chaque sous-bassin versant par des échanges souterrains. Le paramètre X_4 , correspondant au temps de décalage entre les précipitations et le débit, est cohérent pour chaque modèle aux valeurs obtenues avec les corrélations croisées au pas de temps journalier.
Pôle	X ₁ (mm)	X ₂ (mm/jour)	X3 (mm)	X4 (jour)
VTMS	338	-0,15	97	0,9
V105	337	-0,02	248	4,0
TB100	227	0,30	86	1,2
DESC	350	-0,71	129	1,6
MagAmont	89	-0,70	29	1,6
ApportNaturel	88	-0,84	30	1,6

Tableau 4.10 : Paramètres du modèle GR4J obtenus pour chaque pôle étudié.

Pour les modèles VTMS, V105 et TB100, les performances sont correctes (entre 0,4 et 0,6) que ce soit pour la période avec les débits hebdomadaires ou journaliers. Pour le pôle DESC, les performances du modèle sont très bonnes pour simuler les débits journaliers (> 0,8). Pour les modèles MagAmont et ApportNaturel, les performances sont moyennes sur le critère NSE (0,33) mais très bonnes pour le critère KGE (0,67).

4.5.1.3. Résultats au niveau des points de contrôle

Les paramètres de chaque modèle GR4J ont été définis dans la partie 4.5.1.2. Tous les modèles GR4J et les bassins liés à la collecte et au traitement des eaux du site sont ensuite intégrés dans un modèle hydrologique complet du bassin versant via le logiciel GoldSim selon le modèle conceptuel présenté en Figure 4.18. La Figure 4.28 montre les résultats obtenus pour les débits simulés aux deux points de contrôle à l'aval du site : Pont et MagAval.

Au Pont, le NSE est moyen (0,31) mais le KGE montre que la simulation reste correcte (0,63). Cette différence s'explique par le calage du modèle MagAmont avec la FO KGE. Le pic de débit simulé par le modèle global en juillet 2021 montre que la dynamique du modèle est bonne lors d'un évènement intense (pic simulé le bon jour) mais le débit est sous-estimé par le modèle de 33 % (Obs = 0,21 m³/s et Sim = 0,14 m³/s). De plus, le modèle sous-évalue les débits observés pendant la période sèche (avril à novembre 2022) mais semble bonne pour celle de 2021. A partir de janvier 2023, le débit à Pont est mieux simulé par le modèle.

Le modèle simule de manière satisfaisante le débit à l'aval du bassin (MagAval, NSE = 0,35 et KGE = 0,5). Les pics de débits sont observés au bon moment mais sont sous-estimés par le modèle (décembre 2021 : 68 % (Obs = 0,6 m³/s et Sim = 0,19 m³/s) et avril 2022 : 27 % (Obs = 0,15 m³/s et Sim = 0,09 m³/s)). Nous n'avons pas d'observations en ce point pour le pic de débit de juillet 2021. La période sèche en 2022 est aussi sous-estimée et la fin de la période d'observation est mieux simulée comme observé au Pont. Les pics de débit sont alors correctement reproduits par le modèle (mars/avril 2023) mais peuvent être surestimés (janvier 2023).

Le modèle global simule moyennement les débits aux points Pont et MagAval. Ces problèmes peuvent s'expliquer par un défaut du système de mesure et/ou par la mauvaise estimation des

débits provenant d'ApportNaturel et de MagAmont en utilisant des modèles GJ4R calés en proportion du point MagAval. Le modèle reste dans l'ensemble satisfaisant.



Figure 4.28 : Débit observé et simulé pour les points Pont et MagAval et les précipitations journalières pour la même période. Pour le point MagAval, les données observées ne sont disponibles que du 17 juillet 2021 au 23 mai 2023.

4.5.2. Modèle de mélange

4.5.2.1. Résultats

Les concentrations en sulfate de chaque pôle (définies dans la partie 4.3.3.1 et Figure 4.21) ont été introduites dans le modèle hydrologique défini précédemment. Le modèle permet donc à présent de simuler à la fois les débits mais aussi les concentrations en sulfate en chaque point de contrôle. La Figure 4.29 montre les concentrations observées et simulées aux points BZN1, BZN2 et BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023. Au point BZNB, la série des observations s'arrête en décembre 2022. Les concentrations en sulfate sont simulées au pas de temps journalier et moyennées sur le mois.



Figure 4.29 : Concentrations mensuelles en sulfate observées et simulées au point BZN1, BZN2 et BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 et le cumul mensuel des précipitations.

Pour ces trois points, le modèle simule correctement la tendance à la baisse des concentrations en sulfate observées (Figure 4.29). Pour le point BZN1, les variations saisonnières sont peu marquées entre 2010 et 2015. Le pic observé fin 2014 n'est ni reproduit (concentrations simulées), ni lié à un pic de débit mais peut provenir d'une erreur de mesure. A partir de 2017, le modèle reproduit mieux les concentrations élevées. Dans l'ensemble la simulation est bonne avec une SRMSE de 8 %.

Pour le point BZN2, le modèle ne reproduit pas parfaitement les variations saisonnières (Figure 4.29). A partir de 2017, le modèle a tendance à sous-estimer les concentrations. A partir de 2021, date des campagnes de prélèvements géochimiques (mars et septembre), les concentrations en sulfate semblent mieux simulées. La SRMSE calculée en ce point est audessus de 10 % (SRMSE = 13 %).

Les concentrations simulées au point BZNB présentent la plus grande SRMSE (16 %, Figure 4.29). Les amplitudes saisonnières sont bien reproduites en intensité mais elles sont parfois décalées temporellement. La concentration en sulfate pour l'année 2022 n'est pas bien reproduite. Ces différences peuvent s'expliquer par la concentration en sulfate du pôle ApportNaturel qui est fixée à 62 mg/L de 2009 à 2023 sans variations saisonnières. Cette valeur est estimée par le mélange entre Pont et ApportNaturel entre janvier et juillet 2023 (partie 4.4.5).

La concentration en sulfate simulée au point Pont est correctement reproduite pour le mois de mars et septembre 2021 (Figure 4.30). Cependant, la simulation ne reproduit pas les dynamiques observées pour l'année 2023 et sous-estime les concentrations. Pour le point MagAval, le modèle surestime les données de mars et septembre 2021 mais reproduit mieux qu'au point Pont les données observées en 2023, à l'exception du point de juin 2023 (Figure 4.30). Cette différence s'explique par une simulation imparfaite des débits et une valeur constante de la concentration en sulfate.

Les mélanges simulés à partir du modèle hydrologique présentent donc des résultats satisfaisants malgré les performances moyennes de certains des modèles hydrologiques, les incertitudes associées à des prélèvements ponctuels, au manque de données sur les concentrations en sulfate entre 2010 et 2021 ou encore malgré la caractérisation chimique et hydrologique de certains pôles à partir de mélanges estimés uniquement par les surfaces. La simulation des concentrations en sulfate s'avère cependant correcte pour des valeurs moyennes aux points de contrôle BZN1, BZN2 et BZNB. Le modèle pourra être utilisé pour simuler l'impact du changement climatique sur le fonctionnement hydrologique du bassin versant.



Figure 4.30 : Concentrations en sulfate observées en mars et septembre 2021 et de janvier à juillet 2023 et simulées entre janvier 2021 et juillet 2023 aux points Pont et MagAval et le cumul mensuel des précipitations.

4.5.2.2. Sensibilité

4.5.2.2.1. Sensibilité de la concentration en sulfate au débit DESC

La sensibilité du modèle de mélange est testée en augmentant et en diminuant le débit du pôle DESC, pôle majoritaire en matière de volume, de 30 % par un facteur K (0,7 < K < 1,3). Ce test permet de vérifier si le débit simulé au pôle DESC est sous-estimé ou surestimé avant 2021.

La Figure 4.31 montre les concentrations en sulfate simulées à BZN1, BZN2 et BZBNB. Le Tableau 4.11 résume les valeurs de la SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée aux points BZN1, BZN2 et BZNB. Pour le point BZN1, la simulation présentant une SRMSE la petite faible (8,2 %) est la simulation avec K = 1. A ce point, l'erreur maximale est de 12,9 % pour une augmentation des débits de 30 % (K = 1,3). Pour le point BZN2, la simulation initiale (K = 1) présente une SRMSE de 13,3 %. Une augmentation des débits de 10 % (K = 1,1), diminue l'erreur de 0,3 % améliorant légèrement la simulation. Pour les autres valeurs de K, SRMSE est supérieure à 14 %. Pour BZNB, on observe le même schéma que pour BZN1 avec une SRMSE minimale pour K égal à 1.



Figure 4.31 : Concentration en sulfate observée et simulée à BZN1, BZN2, BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 en faisant varier le débit DESC par un facteur K allant de 0,7 à 1,3 et le cumul mensuel des précipitations.

K	SRMSE à BZN1 (%)	SRMSE à BZN2 (%)	SRMSE à BZNB (%)
0,7	12,4	25,5	18,0
0,8	10,2	20,4	16,8
0,9	8,7	16,1	16,0
1	8,2	13,3	15,7
1,1	8,9	13,0	15,9
1,2	10,6	15,4	16,7
1,3	12,9	19,5	17,9

Tableau 4.11 : SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée aux points BZN1, BZN2 et BZNB en faisant varier le débit au pôle DESC par le coefficient K.

4.5.2.2.2. Sensibilité de la concentration en sulfate aux débits MagAmont et

ApportNaturel (partie amont)

Un test similaire est réalisé en faisant varier le débit des pôles MagAmont et ApportNaturel en même temps de plus ou moins 30 % (0,7 < K < 1,3, Annexe A4.1). Ce test est effectué pour voir l'impact de la variation des débits sur les concentrations en sulfate simulées au point BZNB car ces deux pôles n'ont aucune mesure de débit. Le Tableau 4.12 résume les valeurs de SRMSE au point BZNB. Les meilleures simulations sont celles avec des valeurs de K faible (0,7 et 0,8). Mais la SRMSE pour les 7 tests varie très peu (< 1 %). Ce test montre que les débits des pôles MagAmont et ApportNaturel ont peu d'impact sur la concentration en sulfate au point BZNB ne nous permettant pas de conclure sur le calage effectué en se basant sur les surface et que les flux de sulfate proviennent majoritairement du site.

K	SRMSE à BZNB (%)
0,7	15,4
0,8	15,4
0,9	15,5
1	15,7
1,1	15,9
1,2	16,2
1,3	16,5

Tableau 4.12 : SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée au point BZNB en faisant varier le débit au pôle MagAmont et ApportNaturel par le coefficient K.

4.5.2.2.3. Sensibilité de la concentration en sulfate à BZNB

Pour rappel, le pôle ApportNaturel n'a jamais été échantillonné pour réaliser d'analyse chimique. Pour cette étude, une concentration en sulfate de 62 mg/L lui a été attribuée sur la base du calcul de mélange entre janvier et juillet 2023 (partie 4.4.5). La sensibilité du modèle est donc testée au point BZNB :

- en faisant varier la concentration en sulfate du pôle ApportNaturel entre 42 et 82 mg/L par pas de 10 mg/L,
- en utilisant une chronique mensuelle de sulfate créée manuellement pour le pôle ApportNaturel (variation de 35 à 100 mg/L, Annexe Tableau A4.6).

Le Tableau 4.13 résume les valeurs de SRMSE pour ces deux tests. Le modèle global est peu sensible aux variations de la concentration en sulfate (Tableau 4.13). Pour le test avec une chronique variable, la SRMSE est légèrement plus faible (14,8 %), ce qui montre qu'en faisant varier la concentration en sulfate chaque mois cela améliore un peu le modèle qui reste peu sensible.

[SO4] (mg/L)	SRMSE à BZNB (%)
42	16,5
52	16,1
62	15,7
72	15,3
82	15,1
Variable	14,8

Tableau 4.13 : SRMSE calculée entre la concentration en sulfate simulée et observée au point BZNB en faisant varier la concentration en sulfate au pôle ApportNaturel.

Le test de sensibilité sur les débits au pôle DESC montre que la simulation initiale (K = 1) est la meilleure pour les trois points de contrôle et que les débits simulés de ce pôle sont corrects. Le modèle est peu sensible à la concentration en sulfate des points aval (MagAmont et ApportNaturel), ce qui montre que les flux de sulfate sont majoritairement issus du site. L'analyse de sensibilité confirme la bonne qualité du modèle qui sera utilisé pour simuler les débits et l'évapotranspiration réelle dans un contexte de changement climatique.

4.5.2.3. Temps de transfert

Le modèle global calé a été utilisé pour estimer le temps de transfert entre l'amont du site et l'aval en présence ou absence de précipitations. Pour cela, la chronique des concentrations en sulfate du pôle DESC (principal pôle en matière de volume) a été modifiée artificiellement en introduisant dans la série un apport d'ions sulfate ponctuel très important (10 000 mg/L) à une date fixée (le 01/01/2023). Deux scénarios de précipitations ont été testés : dans le premier scénario, il n'y a pas de précipitations entre le 01/01/2023 au 31/01/2023 et dans le second, les précipitations correspondent à celles observées sur le site.

La Figure 4.32 montre les chroniques de sulfate simulées à différents points du bassin versant pour le premier scénario. Le pic de sulfate est observé le 1^{er} janvier à BZN1, le 4 janvier à la sortie du bassin de décantation 1 et le 8 janvier à la sortie du deuxième bassin de décantation. Il faut attendre 16 jours après l'injection avant d'observer la concentration maximale lissée à BZN2 mettant en évidence le rôle des bassins. Le pic de concentration est observé 4 jours après à BZNB puis 1 journée après à MagAval. Entre la sortie à BZN2 et l'arrivée à MagAval, il y a 5 jours de décalage entre les concentrations en sulfate maximales observées. Les différents bassins post-traitement jouent leur rôle d'homogénéisation et de mélange, et permettent au flux d'être dilué avant le rejet dans l'environnement (taux de dilution $= \frac{C_{Max}BZN1}{C_{Max}BZN2} = 8,1$). On constate aussi que malgré un apport ponctuel de 10 000 mg/L au pôle majoritaire DESC, la concentration en sulfate après les 3 bassins post-traitement est toujours inférieure à la limite de rejet pour les ions sulfate (1000 mg/L) et cela seulement par dilution. Cet apport ponctuel n'est pas représentatif de ce qui pourrait se passer sur le site car la concentration en sulfate (ou un autre élément) d'un pôle ne va peut en principe pas augmenter si rapidement sauf s'il s'agit d'un apport extérieur. A partir de BZN2, la concentration est lissée et reste élevée sur plusieurs jours (14 jours). Entre l'amont et l'aval du bassin versant, il y a donc un décalage total de 21 jours entre le pic observé à BZN1 et celui observé à MagAval.



Figure 4.32 : Evolution de la concentration en sulfate de l'amont à l'aval du site pour le scénario sans pluie. Les traits pointillés correspondent aux jours où la concentration de chaque point est maximale. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet.

La Figure 4.33 montre l'évolution des concentrations en sulfate pour le scénario avec précipitations. Le pic de sulfate est simulé le même jour que pour le scénario sans précipitations pour le point BZN1 et un jour avant pour le point Décantation 1. Au niveau du bassin de décantation 2, la concentration maximale est observée une journée avant. Avec la pluie observée entre le 7 et le 9 janvier (6, 22 et 5 mm par jour), le pic de concentration à la sortie du site (BZN2) est avancé de 6 jours (10 au lieu du 16 janvier). Pour les points à l'extérieur du site (BZNB et MagAval), un premier pic de concentration est simulé le 9 janvier dû aux précipitations du 7 au 9, puis il y a une diminution durant 2 jours. Un second pic est observé

autour du 15/16 janvier ce qui correspond à l'apport ponctuel du scénario. Le temps de transfert à travers tout le bassin versant est plus rapide de 4 à 5 jours et la concentration diminue plus rapidement à BZN2 et à l'aval. Entre le 18 et le 31 janvier, les concentrations sont deux fois plus élevées au point MagAval en comparaison avec le scénario sans pluie.

Ces scénarios montrent que le temps de séjour varie de 10 jours pour le scénario avec pluie à 16 jours pour le scénario sans pluie. Cette différence s'explique par la dynamique de remplissage des bassins où l'eau est transmise d'un bassin à un autre par surverse. La différence de concentration observée entre BZN1 et Décantation 1 provient de la taille du bassin de réception (530 m³) et du bassin de décantation 1 (3300 m³). Les concentrations sont donc plus diluées dans le bassin de décantation 1 dues à la présence d'un plus grand volume d'eau. Nos résultats montrent que sans apport d'eau par la pluie, les teneurs en sulfate sont plus concentrées ce qui met en évidence l'effet de dilution par les précipitations. Ces concentrations élevées perdurent sur 14 jours pour le scénario sans pluie.



Figure 4.33 : Evolution de la concentration en sulfate de l'amont à l'aval du site et les précipitations journalières. Les traits pointillés correspondent aux jours où la concentration de chaque point est maximale. Le point BZN2 (rouge) est le point de rejet.

4.6. Changement climatique

L'impact du changement climatique sur le site de Bellezane a été étudié par deux approches complémentaires :

- une approche de modélisation avec la simulation de l'évapotranspiration réelle et des débits de 2006 à 2100 à partir des données journalières de précipitations et de température issues des 18 simulations choisies (Tableau 2.1) et du modèle GoldSim calé,
- une approche statistique : évaluation de la modification de la fréquence et de l'intensité des évènements extrêmes ainsi que de la variabilité saisonnière des précipitations, température, de l'évapotranspiration réelle simulée et du débit simulé.

L'étude du changement climatique à l'échelle journalière et annuelle permet d'estimer les volumes d'eau qui vont arriver sur le site sous changement climatique d'une part via les différents pôles et d'autre part à la station de traitement. Cette approche a pour objectif d'évaluer le besoin d'éventuelles adaptations dans les aménagements existants sur le site (bassins de réception et de décantation).

Lors de la simulation au pas de temps journalier, les volumes à MMT ont été considérés comme constants dans le temps. Le volume moyen mensuel a été calculé et une chronique de 12 mois a été créée se répétant chaque année jusqu'en 2100. Dans cette partie, le débit et l'évapotranspiration réelle (*AET*) sont simulés à la sortie du site (BZN2).

4.6.1. Evolution des débits

La Figure 4.34 représente l'évolution du débit moyen annuel et de l'évapotranspiration réelle moyenne annuelle entre 2006 et 2098 pour les trois scénarios RCP.

Pour les trois scénarios RCP, l'évapotranspiration réelle médiane devrait augmenter entre le début et la fin du siècle en lien avec l'augmentation de température. Les variations restent cependant très faibles et comme pour les débits, la variabilité interannuelle est importante avec 190 mm/an de différence en moyenne pour tous les scénarios et toutes les périodes soit environ 1/3 de l'*AET* moyenne. Cette variabilité est d'autant plus importante pour le scénario RCP8.5 en milieu et surtout en fin de siècle. L'augmentation d'*AET* est de l'ordre de 1 % pour le RCP4.5, de 2 % pour RCP2.6 et 5 % pour RCP8.5 entre le début et la fin du siècle. Les *AET* médianes simulées pour les scenarios RCP2.6 et RCP4.5 sont proches (605 mm/an à la fin du siècle). L'évolution est aussi similaire pour ces scénarios avec une augmentation de l'*AET* entre les périodes 2006-2036 et 2037-2067, puis une diminution entre 2037-2067 et 2068-2098. Pour RCP8.5, l'*AET* augmente tout au long du siècle avec une augmentation plus marquée entre 2006-2036 et 2037-2067 (+3 %) qu'entre 2037-2067 et 2068-2098 (+2 %).

Concernant les débits simulés, pour tous les scénarios et pour toutes les périodes, la variabilité interannuelle du débit à BZN2 est élevée allant d'un débit minimum annuel de 95 mm/an à un maximum de 1042 mm/an. La variabilité interannuelle diminue pour les scénarios RCP2.6 et RCP4.5 entre le début et la fin du siècle alors qu'elle augmente pour le scénario RCP8.5. Pour

RCP2.6, les simulations montrent une diminution de 6 % des débits médians entre le début (551 mm/an) et la fin du siècle (519 mm/an). Pour RCP4.5, la variation des débits médians entre le début et la fin du siècle est presque nulle (+0,6 %, 505 à 508 mm/an) mais la période 2037-2067 devrait être un peu plus humide de 5 % que la période 2006-2036 (530 mm/an). Pour RCP8.5, il n'y a pas de différence sur la médiane entre le début et la fin du siècle (497 mm/an) mais la période 2037-2067 devrait être plus sèche de 2 % que la période 2006-2036. Malgré ces faibles variations de débit entre le début et la fin du siècle, le scénario RCP2.6 est le plus humide et RCP8.5 le plus sec avec 20 mm/an de différence pour la période 2068-2098 (RCP2.6 = 519 mm/an et RCP8.5 = 498 mm/an). Les 18 simulations montrent que la variation des débits à l'échelle annuelle est faible (entre 0 % et +6 %) et que les volumes à traiter ne devraient pas varier.



Figure 4.34 : Boites à moustaches représentant les quantiles 5/25/50/75 et 95 pour (a) le débit moyen annuel au point BZN2 et (b) l'évapotranspiration réelle moyenne annuelle pour le pôle BZN2 pour les trois périodes de 31 ans pour les six simulations pour chaque scénario RCP. Chaque boîte à moustaches comprend 186 données.

4.6.2. Variabilité saisonnière

La Figure 4.35 montre la variabilité saisonnière de la température, des précipitations, de l'évapotranspiration réelle à DESC et du débit à BZN2. L'augmentation de la température est peu marquée pour RCP2.6. Pour RCP4.5 et 8.5, la température augmente pour tous les mois avec une augmentation plus importante en juillet et août pour le RCP8.5. Il est difficile de dégager une tendance de changement saisonnier dans les précipitations pour RCP2.6 et RCP4.5. Pour RCP8.5, une augmentation des précipitations est constatée lors de la période de novembre à février et une baisse des précipitations de juin à août. *AET* et Q ne présentent pas de schéma particulier pour le RCP2.6. Les simulations montrent des résultats homogènes pour *AET* et hétérogènes pour Q pour les six modèles. Pour le scénario RCP8.5, le débit diminue de mars à novembre et augmente légèrement de décembre à février alors qu'*AET* diminue lors de la période estivale et augmente en hiver. Les modifications de la période estivale (JJA) et l'augmentation d'*AET* en avril, mai et novembre. Les mêmes tendances sont observées pour le scénario RCP4.5 que pour RCP8.5 mais elles sont moins marquées.



Figure 4.35 : Variation mensuelle des températures issues des simulations DRIAS (ligne 1), des précipitations issues des simulations DRIAS (ligne 2), de l'évapotranspiration réelle simulée à DESC (ligne 3) et des débits simulés à BZN2 par le modèle global (ligne 4) entre les périodes 2006-2036 et 2068-2098 pour les trois scénarios RCP. Pour chaque mois, la différence entre les périodes 2006-2036 et 2068-2098 est estimée pour chaque simulation.

4.6.3. Fréquence et intensité des évènements pluvieux extrêmes

La fréquence des évènements extrêmes (EE) devrait augmenter tout au long du siècle (Figure 4.37). Le nombre d'évènements au-dessus de la période de retour de 10 ans (cumul sur trois jours = 97 mm) est analysé en comptant le nombre d'évènements par période de 31 ans. Entre la période historique et le début du siècle (2006-2036), le nombre d'EE devrait doubler passant de 2 à 4 en moyenne pour les trois scénarios RCP. Les EE devraient continuer à augmenter avec une moyenne pour les trois scénarios RCP de 5 pour la période 2037-2067 et de 5,6 pour la période 2068-2098. Bien que la variabilité soit importante, l'augmentation du nombre des EE est confirmée. A noter qu'entre janvier 2010 et juillet 2023, le seul évènement pluvieux supérieur au seuil de 97 mm sur 3 jours s'est produit du 12 au 14 juillet 2021 (109 mm sur 3 jours). Sur le terrain, cet évènement a généré de forts débits observés à DESC (Figure 4.10) et au Pont (Figure 4.11) et a quasiment entraîné un débordement du bassin de réception BZN1 (Figure 4.36).



Figure 4.36 : Photographie du bassin de réception BZN1 le 13 juillet 2021 lors de l'orage de 77 mm en une journée.



Figure 4.37 : Nombre moyen d'évènements au-dessus du seuil (97 mm, période de retour décennale) pour les six simulations de la période historique et pour les six simulations de chaque scénario RCP. Le maximum, le minimum et la médiane sont indiqués pour évaluer la disparité des modèles pour les périodes étudiées.

La Figure 4.38 montre la variation du cumul des précipitations sur trois jours en fonction de la période de retour, du scénario RCP et de la période temporelle considérée. Pour les trois scénarios RCP, le cumul de pluie médian sur trois jours pour la période 2006-2036 devrait augmenter de 2 % pour RCP4.5 et de 7 % pour RCP2.6 et RCP8.5 par rapport à la période historique (1975-2005). L'intensité des EE devraient augmenter entre la période 2006-2036 et la période 2068-2098. Cette augmentation est estimée à 6 % en moyenne pour le RCP2.6 et 8 % pour RCP4.5 et RCP8.5. Pour les trois scénarios RCP, l'intensité des EE devraient augmenter de 11 à 16 % à la fin du siècle par rapport à la période historique. Les EE devraient donc être plus fréquents et plus intenses entre le début et la fin du siècle.



Figure 4.38 : Cumul de pluie estimé pour les périodes de retour de 2, 5, 10, 20 et 30 ans pour les trois scénarios RCP pour les périodes 2006-2036 et 2068-2098 et pour la période historique (1975-2005).

4.7. Discussion

4.7.1. Fonctionnement du site et du bassin versant

L'implémentation du suivi des débits au pas de temps journalier et les différentes missions de prélèvements des eaux ont permis de mieux comprendre le fonctionnement du site et du bassin versant. Le suivi journalier a montré que tous les pôles d'arrivée d'eau sont réactifs aux précipitations avec un décalage d'une journée pour DESC, VTMS et TB100 et de 3 jours à la V105. Le suivi des points hors du site permet aussi de voir la réaction rapide du bassin versant à l'aval du rejet minier lors des précipitations. Le suivi du point DESC, qui est le pôle majoritaire à la station de traitement (73 %), a permis d'estimer la surface souterraine drainée par ce point (73 ha). Pour tous les points sauf pour DESC, les surfaces drainées semblent correctement estimées par le bilan hydrologique et sont en accord avec les surfaces estimées lors d'une étude précédente (BURGEAP, 2006) et avec les emprises historiques des TMS et MCO (Figure 4.1a).

La mesure des concentrations en sulfate en mars et septembre 2021 et mensuellement de janvier à juillet 2023 contribue à la compréhension de la contribution géochimique de chaque pôle du mélange. Bien que les chroniques des concentrations en sulfate soient courtes, elles donnent des informations géochimiques sur l'apport de chaque pôle y compris sur les pôles non suivis depuis la fermeture du site (DESC, VTMS, V105), comme V105 qui se révèle être un pôle très minéralisé.

Le modèle de mélange réalisé à partir des débits simulés et des concentrations en sulfate de chacun des pôles simule de manière satisfaisante les concentrations en sulfate à BZN1, BZN2 et BZNB, que ce soit la diminution à long terme ou la saisonnalité. Ce n'est pas le cas pour les points Pont et MagAval avec une SRMSE supérieure à 30 %. Cette approche géochimique montre que les débits sur lesquels sont basés les mélanges de l'amont vers l'aval sont bien simulés. Il serait possible d'améliorer les mélanges en créant des chroniques avec des

concentrations variables tout au long de l'année comme observé pour le point MagAval (partie 4.5.2.2.3).

En se basant sur un scénario artificiel sans pluie, le temps de transfert est estimé à 21 jours au total entre l'eau arrivant au bassin de réception (BZN1) et l'aval du bassin versant étudié (MagAval). S'il pleut, le temps de transfert est accéléré, il faut seulement 16 jours entre BZN1 et MagAval. Le modèle simule par ailleurs l'effet de stockage et de dilution des bassins avec un décalage dans le temps de la concentration maximale en sulfate. Les résultats du modèle montrent que, pour le test réalisé avec une concentration en sulfate élevée à DESC ([SO₄] ~ 10 g/L), la pic de concentration en sulfate n'est que de 4 g/L à BZN1 et passe sous la limite de rejet à BZN2, même pour une période prolongée de sécheresse. Le taux de dilution entre les points BZN1 et BZN2 est de 8,1 pour le scénario sans pluie et de 8,4 pour le scénario avec pluie. Après le site, l'effet de dilution des précipitations est plus marqué avec un taux de dilution entre BZN2 et MagAval de 1,7 pour le scénario sec et 2,8 pour l'autre. Dans ce cas d'étude, la récession est créée artificiellement mais elle pourrait aussi se produire lors de sécheresses prolongées ce qui pourrait impacter la qualité de l'eau. Dans tous les cas, l'hypothèse d'un apport ponctuel très concentré reste peu probable dans le cas du site de Bellezane mais est bien utile pour évaluer les temps de transfert et l'effet des dilutions dues aux aménagements.

4.7.2. Disponibilité des données et modélisation

Les données hydrologiques et géochimiques jouent un rôle majeur dans cette étude, en particulier pour la modélisation que ce soit pour le calage des modèles GR4J ou pour la simulation des concentrations en sulfate.

Les méthodes de calage ne sont pas universelles notamment par le choix de la fonction objectif et dépendent de ce que l'on veut représenter au mieux (Hernandez-Suarez et al., 2018 ; Oudin et al., 2006). Par exemple, Garcia et al. (2017) ont développé une fonction objectif pour mieux simuler les bas débits avec la moyenne du KGE calculée sur les débits et sur l'inverse des débits. La FO NSE utilisée dans notre étude est couramment utilisée en hydrologie et donne plus d'importance aux forts débits (Mizukami et al., 2019). Dans notre cas, les deux FO ont été utilisées pour simuler les débits.

Le modèle est très sensible aux débits observés. Dans notre cas, les mesures ponctuelles de débit (une fois par semaine) sont réalisées avec un seau et un chronomètre. Les incertitudes liées à ces mesures manuelles peuvent entraîner des erreurs dans l'estimation des débits en particulier des hauts débits et détériorer la simulation de ces derniers (McMillan et al., 2010). Par ailleurs, le fait de ne mesurer qu'une seule valeur par semaine ne permet pas de représenter la variabilité réelle du fonctionnement hydrologique du système (Adla et al., 2019). Mais Lerat et al. (2020) ont conclu que les performances d'un modèle calé avec des données journalières ou mensuelles pour simuler des débits journaliers étaient similaires quel que soit la fréquence des données. Les auteurs conseillent donc d'utiliser des données mensuelles si les données journalières ne sont pas disponibles. Les données journalières sont de ce point de vue plus fiables car la mesure réalisée par la sonde est plus régulière, les conditions de la mesure ne

changent pas entre deux mesures et les sondes de pression sont recalibrées lors de chaque mission de récupération des données (sauf cas de débordement des déversoirs non observé dans notre cas). Ces enregistrements journaliers permettent toute la variabilité à court terme et représentent donc mieux les volumes qui sortent du site. Le suivi sur les 2,5 ans ne montre pas d'incohérence dans les données journalières acquises sur les différents drains sauf au Pont.

Toutes ces incertitudes sur les données hebdomadaires sont une source d'erreur pour les modèles développés sur ce site. Les performances des différents modèles GR4J sont correctes (0,4 < KGE < 0,9 et 0,3 < NSE < 0,9 pour tous les modèles) même si les pics de débit sont sousestimés aux points Pont et MagAval. La disponibilité des données et leur qualité est donc un enjeu important. Nous avons montré que selon les données utilisées pour le calage (journalières ou hebdomadaires), les performances des modèles pour reproduire les débits ne sont pas toujours bonnes. En effet, l'utilisation des seules données journalières pour le calage dégrade les performances du modèle en validation sur les données hebdomadaires (0,2 < NSE et KGE < 0,4) et l'inverse est aussi observé avec le calage sur les données hebdomadaires pour reproduire les données journalières (NSE et KGE < 0,2). Le calage sur l'une des deux périodes n'est donc pas robuste. Le calage utilisant à la fois des débits hebdomadaires et journalieres est finalement un bon compromis pour simuler correctement les deux périodes. En général, plus les chroniques de calage sont longues, plus le modèle sera robuste et Shen et al. (2022) recommandent même de caler les modèles sur toute la chronique de données.

Concernant les points de mesure de débit hors du site (Pont et MagAval), les simulations au Pont sont correctes lors du pic de débit en juillet 2021 puis à partir de janvier 2023, mais les mesures ne semblent pas optimales sur le reste de la période d'observation. Sur ce point, le problème lors de la période de basses eaux vient probablement de l'installation car la sonde se trouve au bord du ruisseau. Le lit du ruisseau a une forme de V évasé et le fond du lit n'est pas lisse laissant par moment de l'eau stagnante non représentative de l'écoulement dans laquelle la sonde mesure une hauteur d'eau présentant de faibles variations. Pour la période de hautes eaux, la sonde n'a pas fonctionné correctement. Ce dispositif semble mieux fonctionner en 2023 peut-être dû à des missions plus régulières sur le site. La Figure 4.39 montre la différence entre les débits observés à Pont et à MagAval. D'août à novembre 2021, le débit à Pont est supérieur au débit à MagAval, ce dernier étant le point le plus à l'aval du bassin versant. La présence d'une zone humide entre les deux points pourrait aussi expliquer cette différence par rétention d'eau.



Figure 4.39 : Différence entre les débits journaliers observés à Pont et à MagAval. Lorsque la différence est positive QMagAval est plus petit que QPont.

Pour le point MagAval, les critères de performance ne sont pas satisfaisants (NSE = 0,35 et KGE = 0,5). Ces scores peuvent s'expliquer par la sous-estimation des pics de débit car NSE(Q) et KGE(Q) mettent plus de poids sur les forts débits. En calculant les critères de performance sur la racine des débits, ce qui ne favorise ni les hauts débits ni les bas débits, le KGE est meilleur (KGE($Q^{0,5}$) = 0,65) alors que le NSE diminue (NSE($Q^{0,5}$) = 0,25). Ce point se situant à la sortie de la chaine de modélisation, il accumule toutes les erreurs simulées dans le modèle. Une meilleure simulation des débits à Pont à partir de janvier 2023 améliore aussi la simulation des débits à MagAval.

4.7.3. Changement climatique et limites du modèle pour simuler les débits

L'impact du changement climatique est étudié à partir des projections de précipitations et de température disponibles sur le portail DRIAS2020. Aucune variation n'est constatée entre le début et la fin du siècle pour les précipitations (± 1 % pour les trois scénarios RCP). Les températures devraient augmenter pour tous les scénarios avec une variation de $+0,3^{\circ}$ C à $+3^{\circ}$ C. Le site de Bellezane se situe à la limite nord/sud de la France, zone de transition où il est encore difficile de prédire ce qu'il va se passer dans le futur pour les précipitations. Comme montré par Terray et Boé (2013), l'analyse de la variabilité saisonnière confirme cependant une baisse des précipitations en été et une augmentation en hiver principalement marquées pour le scénario RCP8.5.

L'évapotranspiration réelle pourrait augmenter faiblement entre le début et la fin du siècle avec une variation de 1 % à 5 %. Cette augmentation serait plus marquée lors de la période hivernale alors que l'*AET* pourrait diminuer en été au niveau du site. Ces diminutions de l'*AET* et des débits s'expliquent par la baisse des précipitations estivales pour le scénario RCP8.5. Les débits pourraient fortement diminuer durant l'été (de –30 à –40 %). La variation des débits annuels entre le début et la fin du siècle est nulle pour les scénarios RCP4.5 et RCP8.5, mais les modèles montrent une diminution de 6 % des débits annuels pour le scénario RCP2.6.

Les débits sont simulés à partir des modèles GR4J calés sur les données de 2010 à 2023 en considérant un climat stationnaire. De nombreux auteurs questionnent l'utilisation de modèles « pluie-débit » dans un contexte de changement climatique car la relation entre la pluie et le débit peut changer alors que les paramètres des modèles ne changent pas. Les techniques de calage doivent alors être adaptées (Bérubé et al., 2022 ; Thirel et al., 2015 ; Watson et al., 2022). Vaze et al. (2010) ont conclu que les modèles calés avec 20 ans de données journalières présentaient néanmoins de bons résultats pour simuler l'impact du changement climatique si les précipitations annuelles futures ne présentaient pas une différence supérieure à +15 % ou inférieure à -20 % par rapport aux précipitations annuelles utilisées pour caler le modèle. Dans notre cas, les précipitations annuelles projetées sous climat futur ne varient quasiment pas entre la période 2006-2036 et 2068-2098. Les résultats restent donc cohérents et montrent une faible variation des débits simulés et de l'*AET* entre le début et la fin du siècle.

Les évènements extrêmes, définis par un cumul sur 3 jours supérieur à 97 mm devraient en revanche augmenter en France à cause du changement climatique (Ouzeau et al., 2016) et cela se confirme sur le site de Bellezane. Le nombre d'EE devrait doubler entre la période historique (1975-2005) et le début du siècle avec 6 évènements supérieurs à la période de retour décennale entre 2006 et 2036. Ce nombre d'EE devrait continuer d'augmenter jusqu'à la fin du siècle ($\sim +40$ %) par rapport à la période 2006-2036. A Bellezane, tous les scénarios RCP montrent une augmentation de l'intensité des EE allant de +6 % à +8 % entre le début et la fin du siècle. Cette augmentation est encore plus marquée si on compare la période historique (1975-2005) et la fin du siècle (+11 à +16 :%). Les EE devraient donc être plus intenses et plus fréquents sur le site de Bellezane, ce qui pourrait générer des volumes ponctuellement plus importants d'eau à traiter et à gérer. Cependant, cela ne devrait pas être problématique compte tenu de la dilution générée par les précipitations sur les concentrations en sulfate. Il y a par contre un risque de débordement du bassin de réception en cas d'évènement intense. En revanche, les périodes sèches peuvent générer des volumes à la sortie du site sans que cela ne pose de problème au niveau des volumes à traiter.

4.8. Conclusion

L'étude du site de Bellezane et de son bassin versant repose sur une approche intéressante couplant l'analyse des données observées, la modélisation hydrologique et de mélange chimique et l'étude de l'impact du changement climatique sur le fonctionnement du site de façon statistique et avec le modèle.

Les analyses ont été réalisées sur les données historiques et les nouvelles données acquises depuis 2021 au pas journalier qui offrent la possibilité de préciser la dynamique de chaque pôle (1-3 jours).

Le modèle hydrologique développé pour ce site est original car composé d'un emboîtement de 7 modèles à réservoirs de type GR4J, représentant chacun un pôle contributif du système, agencés et interconnectés via un modèle Goldsim qui gère les mélanges entre ces pôles.

Un modèle « pluie-débit » a donc été dans un premier temps développé avec GR4J pour chaque pôle d'arrivée d'eau. Chacun de ces modèles a été calé sur les données de débit observées (hebdomadaire et journalier). L'utilisation de ces données à des pas de temps différents impactent le calage et donne plus de poids aux données journalières. Cela répond à la volonté de développer un modèle du bassin versant au pas de temps journalier. Dans un second temps, le modèle global développé sur GoldSim® intègre chaque modèle GR4J ainsi que les dispositifs de traitement des eaux du site (bassins de décantation et de rejet). La chaîne de modélisation hydrologique fonctionne de manière satisfaisante et les mesures de débit réalisées à l'extérieur du site permettent de valider les débits simulés en dehors du site minier à l'aval du bassin versant. L'analyse de sensibilité montre que les débits sont correctement simulés. Les faibles connaissances de la partie aval engendrent une augmentation de l'incertitude de l'amont vers l'aval. Le modèle du bassin versant accumule les incertitudes mais montre des résultats satisfaisant permettant la simulation des débits dans un contexte de changement climatique.

L'approche géochimique, fondée sur le suivi des concentrations en sulfate aux points de mélange des eaux issues des différents pôles, conforte ces résultats. Une évolution des concentrations en sulfate spécifique a été attribuée à chaque pôle du mélange à partir des quelques campagnes réalisées sur le terrain depuis 2008. Le débit de chaque pôle est couplé avec cette concentration en sulfate et le modèle GoldSim permet de calculer la concentration des mélanges aux points de contrôle du système entre 2010 et 2023. La concentration en sulfate simulée est correcte à l'intérieur et à l'aval du site minier avec une SRMSE de 8 % à BZN1 et 13 % à BZN2. Pour le point BZNB, la simulation est moins bonne (SRMSE = 16 %) mais la concentration simulée, la tendance et les variations saisonnières sont en accord avec les données observées. Nos résultats montrent que la concentration en sulfate simulée à BZNB pourrait être améliorée si la chronique de concentration en sulfate à ApportNaturel variait saisonnièrement alors que nous avons fait l'hypothèse qu'elle était constante par manque d'observations. L'approche géochimique confirme la contribution de chaque pôle et montre que le temps de transfert entre l'arrivée à BZN1 et MagAval est estimé au maximum à 21 jours lors d'une période de récession. Il peut être plus rapide (16 jours) durant des épisodes pluvieux même peu intenses et dans ce cas, les eaux sont plus diluées.

L'impact du changement climatique sur le site de Bellezane est analysé de manière statistique et par l'approche de modélisation pour simuler les débits et l'évapotranspiration réelle de 2006 à 2100, bien que le modèle a été calé avec des données historiques dans un contexte de climat changeant. Comme attendu, les températures vont augmenter jusqu'en 2100 pouvant aller jusqu'à +3°C pour le scénario RCP8.5. Cette hausse des températures devrait entraîner une augmentation de l'*AET* hivernale mais elle restera assez faible (+5 % pour le RCP8.5). Les précipitations devraient être stables annuellement tout au long du siècle, mais avec une

diminution observée en été et une augmentation en hiver. Cette modification devrait impacter les débits avec une forte diminution pendant l'été (-30 à -40 %) même si à l'échelle annuelle, les débits devraient rester stables (RCP4.5 et RCP8.5) ou légèrement diminuer (-6 % pour RCP2.6). Le changement climatique va également impacter les évènements extrêmes puisque leur nombre devrait passer de 2 sur la période historique à 6 en moyenne sur la période 2068-2098 pour les trois scénarios RCP à la fin du siècle. Ces évènements seront plus intenses de +11 % à +16 % entre la période 1975-2005 et la période 2068-2098. A l'échelle annuelle, le changement climatique ne devrait pas avoir d'incidence par rapport au fonctionnement actuel. Cependant lors de périodes sèches, les eaux du site devraient être plus concentrées, au moins en ions sulfate. Nous l'avons démontré avec les ions sulfate qui sont un traceur conservatif, il est probable que ce sera le cas pour tous les éléments. Les concentrations restent malgré tout toujours inférieures à la limite de rejet pour les ions sulfate (1 g/L), nous n'avons pas étudié les autres éléments. A l'échelle journalière, les volumes générés par les EE seront potentiellement plus importants qu'actuellement et devront être traités rapidement pour que le bassin de réception (BZN1) ne déborde pas. En juillet 2021, le bassin de réception était proche du débordement lors de l'orage de 77 mm en une journée (Figure 4.36) car le pompage vers la station de traitement est limité à 340 m³/h. Le pompage se déclenche lors que le niveau dans le bassin atteint le seuil haut et s'arrête lorsqu'il atteint le seuil bas. Si les arrivées d'eau sont importantes, le pompage peut être continu.

Le développement de ce modèle hydrologique et de mélange est une approche originale et adaptée à la configuration complexe de ce site et aux données disponibles. Il permet de comprendre le fonctionnement de chaque pôle et de quantifier les contributions de chacun d'eux, en particulier DESC (74% du volume à la station de traitement), pôle majeur qui n'était pas suivi jusqu'à présent. Le modèle est facile à utiliser car il est relié directement à des fichiers Excel (pour toutes les données d'entrée et de sortie) ce qui permettra à ORANO de l'utiliser pour envisager de nouveaux scénarios de gestion des eaux afin d'optimiser le traitement. En poursuivant la collecte de données journalières, il pourra aussi être complété et amélioré avec de nouvelles données. Il est aussi possible de coupler un modèle réactif comme PhreeQC à Goldsim® pour simuler le transport réactif de l'uranium et du radium (Roemer et al., 2012; Usher et al., 2010). Ces deux éléments étant réactifs, ils ne peuvent pas être utilisés comme des traceurs parfaits, d'où la nécessité de développer des modèles hydrogéochimiques.

Annexes

Tableau A4.14 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point V105 pour les deux fonctions objectif et les quatre périodes de calage. Le « h » correspond au critère calculé sur la période avec les données hebdomadaires (01/2010-03/2021), le « j » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (04/2021-07/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, la période de calage et de validation est la même.

Critère	NSEh	KGEh	NSEj	KGEj	NSEg	KGEg
		Fonce	tion objectif :	: NSE		
Calage 1	0,33	0,32	0,59	0,59	0,43	0,35
Calage 2	0,59	0,66	-0,66	-0,13	0,48	0,49
Calaga 2	0,80	0,83	0,39	0,38	0.56	0.56
Calage 5	0,40	0,42	-0,79	0,15	0,30	0,50
Calage 4	0,40	0,42	0,20	0,32	0,57	0,57
		Fonct	ion objectif :	KGE		
Calage 1	0,28	0,41	0,37	0,64	0,38	0,45
Calage 2	0,44	0,68	-0,81	-0,11	0,4	0,53
Calage 2	0,52	0,76	0,37	0,46	0.46	0.62
Calage 5	0,31	0,51	-3,08	-0,49	0,40	0,03
Calage 4	0,39	0,68	-0,07	0,31	0,44	0,63

Tableau A4.15 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point TB100 pour les deux fonctions objectif et les quatre périodes de calage. Le « h » correspond au critère calculé sur la période avec les données hebdomadaires (01/2010-03/2021), le « j » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (04/2021-07/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, la période de calage et de validation est la même.

Critère	NSEh	KGEh	NSEj	KGEj	NSEg	KGEg
		Fonc	tion objectif	: NSE		
Calage 1	0,30	0,30	0,71	0,80	0,33	0,32
Calage 2	0,36	0,53	-1,16	-0,11	0,37	0,51
Calage 2	—	—	—	—		
Calage 5	_	_	_	_	_	_
Calage 4	0,37	0,50	0,11	0,37	0,41	0,5
Fonction objectif : KGE						
Calage 1	0,30	0,31	0,71	0,80	0,34	0,34
Calage 2	0,18	0,56	-4,22	-0,90	0,12	0,51
Coloro 3	-	-	-	-		
Calage 5	_	_	_	_	_	_
Calage 4	0,28	0,58	-1,74	-0,34	0,28	0,59

Tableau A4.16 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point DESC pour les deux fonctions objectif et les trois périodes de calage. Le « P1 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (14/04/2021-31/05/2022), le « P2 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (01/06/2022-19/07/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, la période de calage et de validation est la même.

Critère	NSE P1	KGE P1	NSE P2	KGE P2	NSEg	KGEg	
	Fonction objectif : NSE						
Calage 5	0,90	0,94	0,80	0,80	0,86	0,88	
Calage 6	0,61	0,61	0,84	0,92	0,71	0,74	
Calage 7					0,87	0,89	
Fonction objectif : KGE							
Calage 5	0,90	0,95	0,82	0,82	0,87	0,90	
Calage 6	0,57	0,58	0,84	0,92	0,68	0,72	
Calage 7	- 0,85 0,93					0,93	

Tableau A4.17 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point MagAmont pour les deux fonctions objectif et les trois périodes de calage. Le « P1 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (17/07/2021-19/06/2022), le « P2 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (20/06/2022-23/05/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, la période de calage et de validation est la même.

Critère	NSE P1	KGE P1	NSE P2	KGE P2	NSEg	KGEg	
	Fonction objectif : NSE						
Calage 5	0,67	0,64	-0,88	0,08	0,21	0,63	
Calage 6	-0,07	-0,15	0,30	0,18	0,33	0,31	
Calage 7			0,42	0,48			
Fonction objectif : KGE							
Calage 5	0,59	0,78	-1,40	-0,04	-0,21	0,39	
Calage 6	0,33	0,21	-0,10	-0,11	0,35	0,36	
Calage 7		-	0,33	0,67			

Tableau A4.18 : Récapitulatif des critères de performance calculés sur toutes les données du point ApportNaturel pour les deux fonctions objectif et les trois périodes de calage. Le « P1 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (17/07/2021-19/06/2022), le « P2 » correspond au critère calculé sur la période avec les données journalières (20/06/2022-23/05/2023) et le « g » correspond au critère calculé sur toute la chronique. Lorsque les critères sont calculés sur la période de calage, le fond de la cellule est violet et lorsque les critères sont calculés sur la période de validation, le fond de la cellule est bleu. Lorsque le fond est blanc, la période de calage et de validation est la même.

Critère	NSE P1	KGE P1	NSE P2	KGE P2	NSEg	KGEg	
	Fonction objectif : NSE						
Calage 5	0,67	0,65	-0,88	0,08	0,21	0,63	
Calage 6	0,3	0,18	-0,07	-0,15	0,33	0,31	
Calage 7					0,42	0,48	
Fonction objectif : KGE							
Calage 5	0,59	0,78	-1,40	-0,04	-0,22	0,39	
Calage 6	0,33	0,21	-0,10	-0,11	0,35	0,36	
Calage 7	- 0,33 0,67					0,67	



Figure A4.40 : Concentration en sulfate observée et simulée à BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 en faisant varier le débit MagAmont et ApportNaturel par un facteur K allant de 0,7 à 1,3.

Mois	[SO4] (mg/L)
Janvier	80
Février	75
Mars	42
Avril	35
Mai	40
Juin	60
Juillet	97
Août	100
Septembre	90
Octobre	80
Novembre	70
Décembre	60

Tableau A4.19 : Concentrations en sulfate par mois utilisées au pôle ApportNarurel.



Figure A4.41 : Concentration en sulfate observée et simulée à BZNB entre janvier 2010 et juillet 2023 en faisant varier la concentration en sulfate au pôle ApportNaturel et en testant une chronique période définie dans le Tableau A4.6.

Chapitre 5 Bertholène (Aveyron)

Préambule

Ce chapitre s'intéresse à la compréhension du fonctionnement hydrodynamique du bassin versant du ruisseau des Balaures (240 ha) dans lequel le site minier de Bertholène s'inscrit. Il est composé d'un stockage de résidus miniers (7 ha) qui comble la vallée naturelle du ruisseau des Balaures. L'interaction entre la pyrite résiduelle présente dans les stériles miniers, les précipitations et l'oxygène génère du drainage minier acide (DMA) dans le stockage. Cette réaction chimique produit des effluents concentrés en métaux et acide (pH ~ 3,5) qui nécessitent un traitement à la chaux et/ou à la soude avant d'être rejetés dans l'environnement. En 1995, le choix a été fait de laisser le stockage sans couverture et de traiter les effluents pendant une période évaluée à 50 ans par l'étude hydrogéochimique de Ledoux et al. (1993). La diminution des concentrations en uranium et autres métaux qui était prédite a bien été vérifiée mais cellesci demeurent pour autant significatives (Al = 10^{-4} mol/L; Fe, Mn = 10^{-5} mol/L; U = 10^{-5} ⁶mol/L) et nécessitent ainsi un traitement des eaux avant rejet dans l'environnement. Près de 30 ans plus tard, une nouvelle modélisation géochimique (Beaucaire, 2021) a montré que le DMA devrait encore durer plusieurs dizaines d'années. Les autorités nationales questionnent de ce fait la solution choisie à l'époque et demandent de clarifier le fonctionnement hydrologique du stockage de résidus en procédant à l'acquisition de nouvelles données. Il s'agit plus précisément de réaliser un suivi piézométrique journalier, l'analyse de données et la modélisation hydrogéologique à l'échelle du bassin versant grâce notamment à la mise en place de deux nouveaux piézomètres. Les nouveaux piézomètres montrent que les écoulements dans le stockage de résidus se produisent en conditions non saturées et que la génération du DMA est seulement issue de la circulation des eaux météoriques à travers ces résidus. Un modèle simplifié des écoulements de la nappe des gneiss localisée au-dessous du stockage a été développé avec MODFLOW en régime permanent. Ce modèle reproduit correctement le fonctionnement actuel du bassin versant. Il permet d'identifier les lignes d'écoulement dans le sous bassin versant du stockage et de tester un scénario de couverture sur le stockage. L'impact du changement climatique sur ce site a été étudié de manière statistique. Les résultats montrent qu'à l'échelle annuelle les précipitations efficaces ne devraient pas être modifiées. La fréquence et l'intensité des évènements extrêmes pluvieux devraient varier faiblement entre le début et la fin du XXI^e siècle. L'étude du changement climatique montre que la gestion actuelle du site reste valable pour les prochaines décennies.

L'annexe donne plus d'informations sur l'acquisition complémentaire du site (p.159).

Ce chapitre est rédigé en anglais. Il est publié dans Journal of Hydrology: Regional Studies, L'Hermite et al. (2022) <u>https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2022.101221</u>

5.1. Abstract

Study region: Bertholène is a former uranium mine in Aveyron, where tailings and waste rocks are stored in a natural valley. This results in acid mine drainage (AMD) at the outlet of the tailings storage facility (TSF), where there is a dedicated water treatment plant.

Study focus: A detailed data analysis was conducted using data from 13 piezometers and from long-term monitoring of the local climate. A 3D model was developed using MODFLOW to understand groundwater flows at the catchment scale and identify flow paths from the contamination sources within the TSF. Previous geochemical modeling of TSFs had indicated that AMD was expected to occur for 50 to 100 years, therefore the site must be managed with a long-term view. As climate change may affect not only the recharge but also the frequency and intensity of extreme events, its impact on water balance and water levels at the site has to be studied for the next 100 years.

New Hydrological Insights for the Region: Data analysis provides information about the unsaturated conditions within the tailings. Then water balance calculations at the TSF outlet validate the contribution of two different water zones. Modeling using the recharge estimation supports the current functioning of the catchment. The impact study of extreme events shows that the water table should not permanently reach the tailings over the next century.



Figure 5.1 : Abstract graphique.

5.2. Introduction

From 1948 to 2001, France mined uranium within its borders. The total production obtained of 76,000 tU over this period represents just a year and half of worldwide production today (WMA, 2020). This activity generated nearly 200 Mt of waste rock and 52 Mt of mill tailings (<u>CartOmines</u> and Orano Mining, 2021). French uranium sites were generally small and exploited either by open-pit mines and/or by underground mine workings.

The ore process usually starts by crushing and grinding the ore. Then, depending on the carbonate concentration in the ore, leaching is undertaken with acidic or alkaline substances. Two types of leaching are used depending on the ore concentration: dynamic for high concentrations and static for low concentrations. This process results in a yellow cake from which the uranium is extracted, and also the waste, known as mill tailings. Tailings can be stored at ground level, or underground, or submerged. These facilities contain several million tons of dynamic, static and combined process tailings (BRGM, 1997). Tailings are frequently studied to assist in the prevention of the environmental dispersion of contaminants of concern, and to understand the geochemical mechanisms of the mobility of residual uranium or radium-226, in France and abroad (Déjeant et al., 2014, 2016; Chautard et al., 2017; Lestini et al., 2019; Ballini et al., 2020; Besançon et al., 2020; Chautard et al., 2020; Lahrouch et al., 2021; Seigneur et al., 2021). The tailings stored at ground level are usually deposited in piles from 10 m to 150 m high and cover a surface area between one and a dozen hectares. These stockpiles have an environmental impact depending on the type of ore mined, the chemical treatment and the mineral composition (Akcil and Koldas, 2006; Khoeurn et al., 2019). In France, uranium mill tailings must be stored satisfactorily for the long-term. To achieve this, tailings storage facilities (TSF) are made of several layers acting as a mechanical and radiological barrier. The catchment water is collected and if necessary sent to a treatment plant, with a dedicated environmental monitoring of the water/soil/air/food chain.

When geomaterials enriched in sulfide minerals—mainly pyrite—are in contact with rainfall and oxygen, they react with their environment and can lead to acid mine drainage (AMD, Blowes et al., 2014). AMD is generally characterized by low pH and high concentrations of sulfate, heavy metals (copper (Cu), lead (Pb), zinc (Zn) and cadmium (Cd)) and toxic metalloids (arsenic (As) and selenium (Se)) (Descostes et al., 2004; Tabelin et al., 2018). This is one of the main causes of water contamination worldwide (Bell et al., 2001). In the mining context, this reaction occurs when waste rocks are enriched in sulfide minerals but can be also exacerbated when tailings subjected to acidic treatment have not been neutralized. The long term management of tailings must therefore take AMD into account in order to minimize any damage they may be caused to the environment.

For this purpose, accurate monitoring of the hydrogeochemical variables (water level, discharges, pH, electrical conductivity and environmental tracers) is required to trace and identify potential water contamination (Wolkersdorfer et al., 2020). Data analysis is then used to improve the understanding of the groundwater flows and is essential before any attempt at numerical modeling (Mengistu et al., 2019). 3D-modeling based on the monitoring and analysis of climatic and hydrogeological data also enables the functioning of groundwater flows at the
catchment scale, and in particular of the TSF, to be better understood. Numerical models reproducing groundwater and/or surface flows on former mining sites have been used under controlled or real conditions (e.g. Aubertin et al., 2002; Mengistu et al., 2015). Many studies have used modeling to simulate either the water rebound after mine closure (Rapantova et al., 2007), the dewatering problem (González-Quirós and Fernández-Álvarez, 2019), the groundwater flow system in an abandoned mine (Tomiyama et al., 2020) or to estimate groundwater inflow (Surinaidu et al., 2014). More specifically, one may cite Galván et al. (2016) who modeled the Iberian pyrite belt affected by AMD to optimize remediation efforts in the catchment, and work done by Herr et al. (2003) who developed a catchment-scale AMD model combining hydrological and geochemical data to simulate the mine impact on pH and metal concentration. Different reclamation scenarios, in particular the use of a cover over the tailings, can indeed be tested using a model. Water-cover and/or engineered cover are the main systems used to control AMD generation and reduce radon emanation (IAEA and OECD, 2002). The choice depends on local conditions such as the water budget, climate, tailings properties and storage types (Aubertin et al., 2016; Bussière, 2010; Ethier et al., 2018).

Engineered cover systems are used to limit the contact between rainfall water and tailings. In cases where the contamination is assumed to be only short-term, an engineering cover system is not mandatory as long as mining effluents are treated before their release in the environment. The re-vegetation of the surface is in all cases important to control erosion processes (Lersow, 2010) as well as to increase evapotranspiration and thus limit the infiltration of rainwater.

AMD is a long-term process that can occur for more than 100 years and requires sustainable reclamation (Akcil and Koldas, 2006). Yet climate change is likely to alter rainfalls and temperatures over the next 50 to 100 years. These changes could impact the water table and the surface water discharge at the catchment scale and therefore the geochemical functioning of the TSFs and mining sites (Didovets et al., 2020; Henriksen et al., 2021). Taking into account the impact of climate change on the hydrogeological functioning of these former mining sites will therefore ensure the sustainable management of water and the environment. On the one hand, current studies focus on climate change impacts regarding dam stabilities in mining operations. Tailings dam failures are often caused by intense rainfall events as well as inadequate surface water management (Hatje et al., 2017; Niekerk and Viljoen, 2005). On the other hand, some authors have worked on site reclamation with respect to the performance of tailings cover under climate change, studying its impact on a moisture-retaining layer (Hotton et al., 2020) or showing that a well-designed monolayer cover with an elevated water table should remain effective (Lieber et al., 2022). But few studies have yet analyzed climate change impacts on water balance and hydrogeological responses in mining areas, even though changes in the frequency and intensity of extreme events due to climate change (Labonté-Raymond et al., 2020) could increase AMD during these events.

In this context, the Bertholène mine represents a model case study in France, which has been studied for a long time (e.g., Ledoux et al., 1993; Schmitt et al., 2002; Triganon, 2013) and is still under long-term environmental monitoring. The Bertholène site is a former uranium mine where mine tailings and waste rocks are stored in a natural valley, incised in the metamorphic basement of the Massif Central. The TSF is located in the middle of the mainly forested

Balaures catchment and covers 7 ha out of the 240 ha of the catchment. The stored materials (waste rocks with significant pyrite contents, non-neutralized tailings) in contact with water and oxygen cause AMD, where water with low pH (pH 3.5) and significant concentrations of sulfate concentrations of sulfate $(10^{-2} \text{ mol } \text{L}^{-1})$ and metals (Al = $10^{-4} \text{ mol } \text{L}^{-1}$; Fe, Mn = $10^{-5} \text{ mol } \text{L}^{-1}$; U = $10^{-6} \text{ mol } \text{L}^{-1}$) are generated and redirected to a water treatment plant before release into the environment.

At the end of the exploitation in 1995, the site was reclaimed. The hydrogeochemical study concluded that the quality of the effluents from leaching of source terms in the TSF should meet environmental standards without treatment after 50 years (Ledoux et al., 1993). The choice was therefore made not to cover the TSF and to treat the effluents for this short-term period. Almost 30 years later, even if a significant improvement of the water quality was observed, effluent remains an issue due to AMD generation within the TSF and with acidic water at the TSF outlet. Recent geochemical modeling of the storage facility (Beaucaire, 2021) indicates that AMD is expected to occur for another 50 to 100 years. This questioned the no cover solution and led the authorities to request additional analyses and the study of alternative solutions from the ORANO Group in charge of the site reclamation. In particular, they called for clarification of the origin of the water at the TSF outlet and better knowledge of saturation conditions in the TSF, as a first step for geochemical modeling. The purpose of this paper is to answer these hydrological questions in order to clarify the current and future hydrogeological functioning of the site, through data analysis and modeling.

This article first presents the analysis of data acquired in the site to better understand the dynamics of the hydrosystem after rainfall events and to clarify the interactions between the waste rocks, the TSF and the water table. Cross-correlations of groundwater level and observed discharges with daily rainfall recorded at the nearby weather station of Rodez were performed. A water balance was calculated using Thornthwaite's approach and based on site observations (rainfall, discharges). A 3D numerical model of the aquifer system of the Balaures catchment was developed based on the recharge calculated from the water balance and the first conclusions of the data analysis. It runs in steady sate and saturated conditions representing the average state of the hydrogeological system. The popular and common MODFLOW modeling software (Harbaugh, 2005) has been used in its basic configuration, coupled with GMS visual interface. MODFLOW appears as an international standard to simulate or manage groundwater flows, validated by the authorities, which justifies the choice of this software for the present study. The model helps identify the sub-catchments and test reclamation scenario with a cover over the TSF. The model also allows using particle tracking to identify the preferential flow paths from the potential contamination sources within the catchment. Since the AMD should occur at least during 50 years, the site must also be managed with a long-term view. It is located at the limit between the North and the South of France where the climate change predictions are uncertain regarding the rainfall variation and the modification of extreme events. The impact of climate change on the future hydrological functioning of the catchment was then investigated using daily rainfall and temperature data sourced from the Coupled Model Intercomparison Project (CMIP5) for three climatic scenarios (RCP2.6, RCP4.5 and RCP8.5). The evolution of the water balance as well as the frequency and intensity of extreme events over the next 100 years are evaluated with the CMIP5 simulated data. The study of extreme events observed at the study site complete the analysis to understand the site response to rain events.

5.3. Site description

5.3.1. Location, geology, hydrogeology and climate

The Bertholène mining site is located in the south-west of the Massif Central near Rodez (Figure 5.2); it is located in the heart of a 240 ha catchment. The site is surrounded by the Palanges Forest, ranging in elevation from 600 m to 900 m above sea level (m.a.s.l.) with some steep slopes. The catchment is crossed by the Balaures River from south to north. A continuous aquifer is present in the fractured gneiss basement, separated from the Stephanian coal sandstones by the presence of a major ESE-WNW fault (Figure 5.3). Further north, the Palanges Fault marks the separation from the Jurassic limestone (Schmitt and Tardy, 1986) and it delimits the hydrogeological catchment. The underground flows are mainly oriented towards the north and are drained by the Balaures River. Successive mine reclamations have significantly modified the downstream part of the catchment where an alluvial water table is found at the bottom of the valley.

The local climate is temperate with a mountain climate influence. A large contrast is observed between winter and summer temperatures. The mean daily temperature varies from around 0°C in winter to more than 20°C in summer. The mean rainfall in Bertholène between November 2006 and October 2021 was 1082 mm per year. Two periods can be distinguished. From December to May (winter and spring), some large winter rain events may occur but there are few days with snow. From June to November, the period is drier, with possible stormy events.



Figure 5.2 : Location map of the study area (base map from the IGN SCAN25[®]).

- jm Jurassic: limestone
- r1a Permian: marlstone
- h5 Stephanian: coal sandstone
- ζγ Crystalline basement: Palanges orthogneiss



Figure 5.3 : Geological map and location of the mining site (base map from BRGM, 2020).

5.3.2. The Bertholène mining site

The mining site covers only 42 ha of the 240 ha of the Balaures catchment south of the Palanges fault (Figure 5.3). The site is supervised and monitored by the ORANO Group for its remediation, reclamation and water management.

The Bertholène site was modified by the former mining activities. The southern part is a TSF located in the Balaures valley (drawn in orange in Figure 5.2). To avoid contact between the river and the tailings, the Balaures River was diverted to the west of the TSF in a concrete canal. Below the storage facility, the ancient river bed was replaced by a pebble drain which is laid over a geotextile membrane. This drain should collect all water infiltrated through the TSF; it also leads this water to a control basin (BC) where it is collected for treatment.

The northern part of the mining site was extensively reworked during operations and reclamation. Originally the mining facilities were built in this area to process the uranium. Today, a treatment station and several collection basins are located in the same area to control and treat water before discharge into the environment; the area is mainly composed of alluvial deposits. In the alluvial plain, the Balaures River was also slightly diverted to a higher elevation to the east of the site in order to facilitate the development of the mining facilities (leaching stalls, treatment basin and release basin) in the valley (see Figure 5.2). A non-estimated part of the discharge of the deviated river infiltrates into the reworked area and goes back to its original bed.

Water arriving at the treatment plant is collected from three zones: the tailings mining storage, the open-pit mine and the underground mine working (see Figure 5.4). The water treatment consists of clarification and lime neutralization through successive basins. After the treatment, water goes to post-treatment basins before a final pH check. Its environmental release into the Balaures River takes place 50 m before the discharge station (Q Venturi), itself located 150 m upstream of the outlet of the catchment.

5.3.3. Ore mining and tailings storage

Uranium extraction at Bertholène started in 1977 and continued until November 1994 with a total production of 750 tU. The ore was extracted by static leaching with sulfuric acid. The uranium deposit extended over a height of about 300 m, from 490 m to 810 m.a.s.l. This deposit was mined with both an open-pit mine and an underground mine working. The underground mine was stopped in 1991 because the vein was exhausted. Then the drift (horizontal opening) was partially backfilled (85%), the pumping was stopped and the water level rose back to its natural level. The open-pit mine extraction was stopped in 1994. 1,100,000 m³ of materials had been excavated to create the operating facilities and build the TSF dykes. The TSF has a length of 700 m, a width around 100 m and it covers 7 ha (Figure 5.2). The TSF follows the slope of the natural valley (7%) with a depth varying from 10 to 50 m from upstream to downstream (Figure A5.17).

The stored materials are varied and piled up in alternating layers. The TSF is composed of 476,000 tons of 0 to 8 mm particle size. Combined with waste rocks, this mixture is used as protection from the leaching precipitates. Approximately 33,000 tons of precipitates from the neutralization with lime of the acid effluents, which contain gypsum and metal hydroxides, were added to the TSF and intercalated between tailings layers. A pebble drain laid over a geotextile membrane is located at the bottom of the valley in order to collect the water infiltrating through the storage facility. On top of these layers, 30 cm-thick blocks of waste rock separate the tailings from the surface (Figure 5.8). At the surface of the storage facility, water sludge resulting from the water treatment since the site closure is stored in storage tanks.

The TSF is now covered with a natural and sparse coniferous vegetation such as pines and small bushes. It is exposed to rainfall and water percolates through it. Water reacts with the remaining pyrite in the waste rocks and generates AMD. Water with low pH (3.5), high concentrations of sulfate ($SO_4^{2-} = 10^{-2} \text{ mol } \text{L}^{-1}$) and metals (Al = $10^{-4} \text{ mol } \text{L}^{-1}$; Fe, Mn = $10^{-5} \text{ mol } \text{L}^{-1}$; U = $10^{-6} \text{ mol } \text{L}^{-1}$) drains into the BC at the outlet of the TSF.

5.3.4. Environmental issues

AMD is an issue common to many former mine sites in the world, whose adequate management and long-term remediation initially require a detailed understanding of their hydrological functioning. The methodology developed hereafter to address this issue could therefore be usefully transferred to other former mine sites. In the Bertholène site, the main environmental problem comes from the tailings and waste rocks storage facility with AMD mainly generated by the waste rocks at the storage outlet. It is therefore important in a first stage to quantify the flow conditions within the storage facility for a better understanding of the reaction of the TSF to rainfall. Likewise, the origin of the water arriving at the BC, i.e. at the outlet of the storage sub-catchment, must be explained. These issues must also be viewed through the prism of climate change, which could alter the current water balance. In a second stage geochemical modelling can be coupled to predict the duration of AMD.

5.4. Materials and methods

5.4.1. Instrumentation and field measurements

The rainfall data from January 2006 to November 2021 was provided by an in-situ station. These data were originally measured daily and then weekly or monthly since January 2016. To complete the analysis of daily events and catchment reactivity, meteorological data provided by the Météo France station at Rodez have been used to perform daily cross-correlations and extreme-events analysis. It provides daily rainfall and minimum and maximum temperatures for the period 2006 to 2021. This station is located 25 km away from the Bertholène site at an altitude of 579 m.a.s.l while the mining site is at 700 m.a.s.l. For the period November 2006 to October 2021, the rainfall recorded by Météo France in Rodez (837 mm/year) was 23% lower than that recorded in Bertholène (1082 mm/year). This difference can be explained by the

difference in elevation and topography, the Rodez station being located on a plain while the mining site is in a hilly area.

Records from four discharge stations installed on the catchment are available from January 2006 to November 2021 on a daily then weekly basis (Figure 5.4). Three of them measure the water discharge coming from each contaminant zone before it reaches the treatment plant: the open-pit mine (Q MCO-TMS), the TSF at BC (Q BC) and the water originating from the west hillside downstream of the catchment (Q DSC). The last discharge point (Q Venturi) measures the sum of the Balaures River discharges downstream of the catchment and the total discharge from the treatment plant.

Groundwater levels have been monitored on a monthly basis for 23 years (1999-2021), using 13 piezometers, nine of them located inside or around the TSF (Figure 5.4). Two new piezometers were drilled in October 2018 in the center of the storage facility (V1 and V2). Most of the piezometers are screened in the most permeable section of the bedrock aquifer (gneiss), however five of them are screened at the interface between the storage facility and the gneiss (BE10, BE11, BE12, V1 and V2). Since June 2018, nine piezometers including the two new piezometers (starting in October) were equipped with SOLINST Levelogger (three) or OTT (six) sensors for a daily monitoring of groundwater level (accuracy for all sensors: $\pm 0.05\%$ FS 0-10 m for all the piezometers except for P4 0-20 m).

The electrical conductivity of groundwater has been monitored daily in two piezometers since 2018, V1 in the middle of the TSF and P3 at its eastern edge. This continuous monitoring was supplemented by two sampling missions for all piezometers and outlets. These sampling missions were an opportunity to measure the electrical conductivity at the BC. The high flow sampling mission was in March 2019, at the end of the winter. The groundwater level and the discharges were at their highest, as was rainfall. The low flow sampling mission took place in early October 2019 following a low rainfall summer. Groundwater levels and discharges were low at this time.



Figure 5.4 : Location of piezometers and discharge stations in the study area (base map from the IGN SCAN25[®]).

5.4.2. Cross-correlations

Correlation analysis is used in various fields of geoscience, in particular to understand the hydrological functioning of karst systems (Fiorillo and Doglioni, 2010; Larocque et al., 1998). The use of correlation with temporal data can provide information on the response mechanisms of hydrogeological systems (Sahu et al., 2009; Tirogo et al., 2016). Cross-correlation is a comparison between two time series to see if a link exists between the input series x_t and the output series y_t (equation 5.1); the cross-correlation function r_{xy} is defined by equation 5.2:

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t+k} - \bar{y})$$
 5.1

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y}$$
 5.2

where $C_{xy}(k)$ is the cross-correlogram, *n* is the time series length, *k* is the time lag, \bar{x} and \bar{y} are the means of input and output time series, and σ_x and σ_y are the standard deviations of the input and output time series. The time lag corresponding to the maximum value for $r_{xy}(k)$ is the response time of the system to the input signal. The correlation is significant at a 95% confidence level when $r_{xy}(k)$ is greater than $2/\sqrt{N}$, with *N* the number of observations.

Cross-correlations were calculated on a daily basis for the period January 2006 to November 2021 with a maximum lag of 40 days, with rainfall as the input signal and discharges at the four

stations (Q BC, Q MCO-TMS, Q DSC and Q Venturi) as the output signal; and for the period June 2018 to November 2021 between rainfall and groundwater level recorded daily by nine piezometers (AI16, BE10, P3, P4, P5, P6, P8, V1 and V2). The daily rainfall comes from the Météo France weather station. Using this analysis, the catchment's responses to rainfall events have been studied to understand its reactivity, particularly in the area of the TSF where AMD is generated.

5.4.3. Water balance

The annual water balance at the site scale is described by equation 5.3 expressed in mm/year:

$$P = AET + R + I = AET + P_{eff}$$
 5.3

$$P_{eff} = Q = R + I \tag{5.4}$$

where *P* is the rainfall, *AET* the actual evapotranspiration, *R* the runoff and *I* the infiltration. For a well-defined hydrological unit, the effective rainfall (P_{eff}) in equation 5.3 should be equal to the discharge *Q* measured at the catchment outlet (equation 5.4). *AET* was estimated using the Thornthwaite method (1948) based on the difference between potential evapotranspiration (*PET*) and rainfall (*P*). Two cases are observed (equation 5.5):

$$if PET \leq P \rightarrow AET = PET$$

$$if not \begin{cases} if P + RU \leq PET \rightarrow AET = P + RU \\ if P + RU > PET \rightarrow AET = ETP \end{cases}$$
5.5

RU is the soil water capacity fixed at a maximum of 50 mm in this study. *RU* represents the quantity of water that the soil can absorb and return to plants when *PET* is higher than rainfall. Equation 5.6 describes the *PET* formula from Oudin et al. (2005) used in this study:

$$if \ T + 5 > 0^{\circ}C \rightarrow PET = \frac{Re}{\gamma\rho} \times \left(\frac{T+5}{100}\right)$$

$$if \ not \rightarrow PET = 0$$

$$5.6$$

where *Re* is the extraterrestrial radiation (MJ m⁻² d⁻¹) given by the Julian day and the latitude, γ is the latent heat of water vaporization (kJ kg⁻¹), ρ is the density of water (kg m⁻³) and *T* is the mean daily temperature (°C).

In the Bertholène case, two different hydrological units were considered: the storage facility sub-catchment upstream of the BC (34 ha) and the sub-catchment with Q Venturi as the outlet (230 ha). The discharges for each sub-catchment were respectively measured at Q BC and Q Venturi. The water balances were estimated from monthly data recorded on-site and cumulated by hydrological year for each sub-catchment (November 2006 to October 2021).

5.4.4. Numerical modeling

A three-dimensional (3D) steady-state groundwater flow model of the catchment aquifer system has been developed using the finite difference code MODFLOW-2005 via the GMS software interface (version 10.4, Aquaveo, 2017). MODFLOW was used with the native packages (recharge (RCH1), well (WEL1)), the solver Preconditioned Conjugate Gradient Solver (PCGS) and the flow package Layer-Property Flow (LPF). Those packages can work with few information about materials properties (horizontal hydraulic conductivity and anisotropy). The saturated flow equation is solved in steady-state conditions with the Preconditioned Conjugate Gradient (PCG) solver with the convergence criteria on head change (HCLOSE) and residual change (RCLOSE) of 0.0001 m and 0.0001 $m^3.s^{-1}$.

The model is a simplified version of the catchment with only two layers: a 60 m thick unconfined layer corresponding to the weathered bedrock and alluvial deposits, over a 150 m thick confined layer which represents the less permeable deeper bedrock (Figure 5.5). The TSF, that overlies gneiss formations over only 3% of the total model surface, has been removed from the topography and from the model domain due its unsaturated functioning (see section 5.5.1). The spatial discretization uses a rectangular grid with 206 385 square meshes with a side length of 5 m that allows for good representation of catchment surface details such as the TSF and the reworked area. The catchment topography is derived from a combination of the French IGN 5 meter topographic map (BD ORTHO® 5 m) and a recent 1 meter topographic map for the ORANO site specifically created by a land surveyor. The latter represents less than 20% of the catchment surface. For simplicity and numerical stability, the model of the main local aquifer does not represent the overlying storage facility, and the Balaures River only follows its original course in the natural valley within the TSF section. The topography has been modified to restore the valley to its original appearance prior to the installation of the storage facility, based on the elevation of the old riverbed at the bottom of the valley and by smoothing the sides of the valley.

Layers Geological horizons		<i>A priori</i> horizontal hydraulic conductivity (m/s)	Calibrated horizontal hydraulic conductivity (m/s)	
Layer 1: surface	Weathered gneiss	3.25.10-7	$1.5 \cdot 10^{-7} - 6.5 \cdot 10^{-7}$	
	Clayey sandstone	1.10-7	$1.5 \cdot 10^{-7}$	
	Alluvial deposits	5.10-5	1.10-5	
Layer 2: base	Gneiss	3.10-9	$7 \cdot 10^{-9}$	
	Mixture of gneiss and sandstone	5.10-9	1.10-8	

Tableau 5.1 : A priori horizontal hydraulic conductivities from Géostock (1993) and calibrated horizontal hydraulic conductivities from the model.



Figure 5.5 : 3D representation of the simulation domain.

No-flow boundary conditions were assigned to the lateral boundaries of the domain, which are assumed to align with the catchment divides (Figure 5.6). A fixed-head boundary was set for the Balaures River at 0.5 m below the surface in the gneiss, 1 m below the alluvial plain in the northern part, and at 629 m.a.s.l. at the river outlet, a value which corresponds to the mean groundwater level measured close to the catchment output (piezometers P8 and P9). All the small and intermittent creeks were also represented by a constant-head boundary, with a hydraulic head 0.25 m lower than the surface elevation. The main water input of the model is the recharge. The recharge represents the net infiltration estimated with the water balance calculation (506 mm/year = $0.0369 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, see section 5.5.3). This recharge is applied to the whole top layer of the model. A second input has been defined because of a small loss (0.00016 m³.s⁻¹) due to the degradation of the concrete canal, representing 1% of the canal total flow and less than 0.5% of the total recharge.

Initial values of hydraulic conductivities (Tableau 5.1) were estimated from slug tests from a previous hydrogeological survey of the site (Géostock, 1993) and are assumed homogeneous within each unit except the weathered gneiss. The studied aquifer can be consider a hard-rock aquifer, known to have an anisotropy of hydraulic conductivities (Dewandel et al., 2006). In such aquifers, the horizontal hydraulic conductivity can reach 2 to 30 times the vertical hydraulic conductivity (Maréchal et al., 2004). A vertical anisotropy of 1/3 is used in the model, which is at the lower end of the range. The model was calibrated starting from these *a priori* values (Tableau 5.1) and using the average water level of all piezometers during the period 2006-2021 and the average of the measured discharge at the storage (Q BC) and at the catchment (Q Venturi) outlets, for the period 2006-2021. All the water levels are measured within the first layer of the model.



Figure 5.6 : Boundary conditions of the model and material distribution in the first layer.

Simulations were evaluated in steady-state using the coefficient of determination (R^2) and the following statistical estimators; the mean error (*ME*), the absolute mean error (*AME*) and the root mean square error (*RMSE*), as described by equations 5.7, 5.8 and 5.9:

$$ME = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} (h_{o,i} - h_{s,i})$$
 5.7

$$AME = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} |(h_{o,i} - h_{s,i})|$$
 5.8

$$RMSE = \left[\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(h_{o,i} - h_{s,i})^2\right]^{0.5}$$
5.9

where h_o is the observed water level, h_s is the simulated water level and n is the number of observation piezometers. The estimator values must be as low as possible and close to zero.

Once the model had been calibrated, particle tracking (the MODPATH package available for MODFLOW) was used to visualize the pathlines according to different starting zones and to delineate the hydrogeological sub-catchments. Only forward tracking was used in this study. The use of this package allows us to validate groundwater sources and to visualize groundwater flow pathlines in each sub-catchment as well as within the alluvial area.

5.4.5. Climate change

5.4.5.1. Climate data

To analyze changes in temperature and rainfall until the end of the century, six climate projections from the Coupled Model Intercomparison Project (CMIP5) for three climatic scenarios, computed by several European institutes involved in climate modeling, were used (<u>http://www.drias-climat.fr/</u>). In total, 18 simulations were analyzed for the period 2006 to 2098 from the six regional models (Tableau 5.2) with three RCP (Representative Concentration Pathway) scenarios as well as 6 simulations for the historical period 1975 to 2005. Those 6 simulations are considered as reference simulations but not as real observations.

Models	General Circulation Model (GCM)	Regional Climate Models (RCM)	
CNRM-CERFACS-CNRM-	CNRM-CM5-LR	ALADIN63	
CM5_CNRM-ALADIN63			
CM5_KNMI-RACMO22E	CNRM-CM5-LR	RACMO22E	
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-	EC-EARTH	RACMO22E	
RACMO22E		DCL	
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	EC-EARTH	RCA4	
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-	MPI-ESM-LR	CCLM4-8-17	
CCLM4-8-17			
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-	MPI_FSM_I R	REMO2009	
REMO2009			

Tableau 5.2 : Models used for climate change analysis.

The daily climate data come from regional climate models around Europe. The data were projected onto an 8 km resolution grid and corrected for skew using the ADAMONT method extended to France and implemented by Météo France (Déqué, 2007; Verfaillie et al., 2017), based on the analysis of observation data. The projections from the closest grid point to the site (~3 km) were analyzed (latitude: 44.36120°; longitude: 2.78843°).

The three following RCPs were selected for the study: the RCP2.6 in line with the Paris Agreement, the RCP4.5 considered a more probable scenario and the RCP8.5, the worst-case scenario, for which CO₂ emissions are the highest (IPCC, 2014). The new pathways from CMIP6, the Shared Socioeconomic Pathways (SSPs) have now integrated socio-economic evolution (gross domestic product, demography, governance, education and technology) and are coupled with climate forcing (RCP). A match can be made between the SSPs (CMIP6) and the RCPs (CMIP5) scenarios: SSP1-2.6 and RCP2.6, SSP2 and RCP4.5 and SSP5-8.5 and RCP8.5. In France, the temperature is expected to rise between 2°C and 5°C and the rainfall is also expected to rise by 2% to 6% according to the RCP scenarios (Soubeyroux et al., 2020).

The projected changes in France are different in the northwestern part of France and the southeastern part. The south region of France could be drier with longer droughts and a pattern modification of rainfall, with more rainfall in winter. The location of the site, in the south of France and close to the Massif Central, may have an additional local impact. Tableau 5.3 presents the mean overall variation of the 6 models in the study site. For RCP2.6, the temperature variation is lower than that of France and for RCP4.5 and RCP8.5, the variation is the same. For the rainfall, the overall variation shows a decrease in rainfall for RCP4.5 and RCP8.5 that contrasts with the expected variation at the national scale.

Tableau 5.3 : Mean overall variation for the 6 models for each RCP scenario for the temperature and the rainfall in the studied site.

	Temperature	Rainfall
Scenario	Overall variation (°C)	Overall variation (%)
RCP2.6	+ 0.5	3
RCP4.5	+ 2	-1.9
RCP8.5	+ 5	-4

5.4.5.2. Trends analysis: Mann-Kendall and Sen's slope

The non-parametric Mann-Kendall test is commonly used to detect trends in time series of environmental data. As trends can be affected by the presence of negative or positive autocorrelations (Hamed and Ramachandra Rao, 1998), autocorrelation is first performed to check the randomness and the periodicity of the time series data. If randomness is found or the periodicity is statistically insignificant, the Mann-Kendall test can be performed without altering the data (Kendall, 1975; Mann, 1945). The non-parametric test developed by Sen (1968) is used to estimate the slope of the Mann-Kendall's trend analysis. It calculates the magnitude of any significant trend detected in the Mann-Kendall test.

The Mann-Kendall test and Sen's slope test were performed on the mean annual rainfall and mean annual temperature data. As water balance will be affected by any change in rainfall and temperature, tests were also performed on annual actual evapotranspiration (*AET*) and annual effective rainfall estimated from a monthly water balance calculation (see section 5.4.3). The water balance calculation was performed with the Thornthwaite method to estimate trends on water balance components between 2006 and 2098, independently of the previous results obtained with this method for the historical period. The average variation of rainfall, temperature and effective rainfall for the six models between the periods 2006-2036 and 2068-2098 has been estimated to assess the impact of climate change on the latter.

5.4.5.3. Extreme events: frequency and intensity

To go beyond the seasonal and annual scales, the analysis also focuses on extreme events that are likely to become more intense and more frequent with climate change (IPCC, 2021). Extreme events can impact the groundwater level below the TSF and create more AMD.

Groundwater level monitoring shows that the peaks of water level are reached during the winter period and on consecutive rainy days. To quantify rainfall intensity, our approach consists of analyzing the increase of the amount of rain which falls over three days using return periods. The return periods are estimated using the generalized extreme values (GEV) distribution function which combines three asymptotic forms of extreme value distributions, Gumbel, Weibull and Fréchet, in a unique form (Fisher and Tippett, 1928). This law is mainly used in hydrology to model extreme events and to estimate their return period from daily rainfalls (Collet et al., 2017; Gaur et al., 2018; Santos et al., 2016) on the basis of one maximum occurrence per year. The intensity of each return period has been estimated by taking the highest 3-day rainfall event per year for the historical period between 1975 and 2005, and using it as a reference for comparison with climate projections. Return levels have also been calculated using rainfall from the 18 climate simulations over the period 2006-2036 and at the end of the century period 2068-2098. Analysis of the frequency of exceeding a rainfall threshold allows us to see if the events concerned will be more frequent at the end of the century. The threshold chosen corresponds to the 10-year return period for the historical period, in this case 87 mm. The number of occurrences above the threshold is analyzed for different 30-year periods (1975-2005, 2006-2036, 2037-2067 and 2068-2098).

5.5. Results

5.5.1. Spatio-temporal variation of electrical conductivity and hydraulic head in the TSF

Tableau 5.4 shows the groundwater electrical conductivity measured in piezometers V1 and P3 and at the BC during the low flow (October 2019) and high flow (March 2019) sampling campaigns and the mean daily electrical conductivity monitored between June 2018 and November 2021. The electrical conductivity measured at BC in October 2019 is 164 μ S/cm for a very low flow at the sampling point (Q°BC = 0.0016 m³/s). In March, the flow was higher (Q°BC = 0.0032 m³/s) and the electrical conductivity was also higher (684 μ S/cm). The highest electrical conductivity is measured in V1 with values above 2000 μ S/cm. It reflects the influence of water infiltrated through the TSF where part of the AMD is generated. The electrical conductivity measured in P3 is very low with an average value of 30 μ S/cm, representative of the low mineralization of water in gneiss aquifer. It demonstrates that the water in P3 is not influenced by the storage facility. The variation in electrical conductivity in BC is due to the difference in rainfall between the two campaigns. In winter, the vertical infiltration through the storage facility is more important, bringing more water in BC with a high mineralization.

Electrical conductivity (µS/cm)	Measured in V1 (below the tailings)	Measured in P3 (gneiss aquifer)	Measured at BC	
Sampling mission during the low	2310	53	164	
flow period (7 – 14 October 2019)	2310	55		
Sampling mission during the high				
flow period (25 March – 2 April	2150	60	684	
2019)				
Daily mean (June	2076	20		
2108 – November 2021)	2070	50	-	

Tableau 5.4 : Electrical conductivity for piezometers V1 and P3 and at BC during the low flow and the high flow sampling missions and the mean daily electrical conductivity for V1 and P3.

Figure 5.7 shows the changes in daily hydraulic heads measured in piezometers inside and around the TSF (locations shown in Figure 5.4) from June 2018 to November 2021. Two types of variation are observed. The hydraulic head in the piezometers V1 and V2 located within the storage area (as well as BE11, BE12 and P6, not shown here) shows annual variations with less than 1 m of amplitude, whereas outside the storage facility, annual variations are greater than 3 m with a strong seasonal pattern (BE10, P3, P4 and P5). Peak levels occur during the winter period (December to May) and the highest peaks are observed after intense rainfall (more than 50 mm for several days). The lowest levels are observed at the end of the dry period (June to November).



Figure 5.7 : Observed daily hydraulic heads monitored in the tailings storage facility and daily rainfall at the Rodez meteorological station. The dashed lines correspond to the two sampling missions in March and October 2019.

Figure 5.8 exhibits a transversal cross-section of the TSF with the maximum, mean and minimum hydraulic heads observed from daily measurements between June 2018 and November 2021. It shows that the maximum water level remains below the TSF (red dashes), except at the drain level. The drain located at the base of the storage facility can be fed by water coming both from the vertical infiltration through the unsaturated tailings and by lateral groundwater flows from the gneiss aquifer.



Figure 5.8 : Piezometric profile across the Balaures valley in the TSF with the mean observed water level in blue. The location of the cross-section is indicated in the insert. P3 and P4 are a projection of these two piezometers because they are not aligned in the same cross section than V1 and V2.

5.5.2. Catchment reactivity

The recent daily monitoring data allow for a more accurate estimation of response times of the water level to rainfall. Cross-correlations between rainfall and water levels in the nine piezometers, as illustrated in Figure 5.9a, show a fast reaction and a pronounced response to rainfall with a time lag of about 5 days for the water level in piezometers BE10, V1 and V2. For the other piezometers, the reaction is less pronounced with a time lag that varies from 5 to 16 days. Maximum cross-correlation coefficients are reached within a 5 to 8 days delay between the rainfall and the discharge at each discharge station, including at the outlet of the storage catchment (Q BC), where the discharge peak appears 8 days after the rainfall (Figure 5.9b).



Figure 5.9 : Cross-correlations at a daily time lag and a truncation at 40 days between (a) rainfall and water levels for the period June 2018 to November 2021, and (b) rainfall and discharges, for the period January 2006 to November 2021. The dashed lines represent the 95% confidence level.

5.5.3. Recharge estimation

At the mean annual scale, 81.5% of the discharge at the Q Venturi comes from the Balaures River (Tableau 5.5). Of the remaining 18.5%, which comes from the treatment station, 65% is from the storage sub-catchment (Q BC), 21% from the open pit mine drainage area (Q MCO-TMS) and 14% from the western hill (Q DSC). Q Venturi is the outlet from a hydrological sub-catchment of 230 ha. The zone between the open-pit mine and the western part of the historical facilities is drained to this point by a system of canal and drains. The average annual discharge at Q Venturi is 0.0437 m³/s. Upstream, the storage sub-catchment drains a surface catchment of 34 ha based on the topography of the area. It corresponds to the 7 ha of the tailings storage and an additional surface of 27 ha of forest on the hillsides around the storage facility. The

control basin (Q BC) that is supposed to drain this sub-catchment exhibits an average annual discharge of $0.0053 \text{ m}^3/\text{s}$.

Tableau 5.5 : Summary of average annual observed discharges in the site and hydrological surface area for the two catchments of interest. The observed discharges minus the direct runoff are specified as is the simulated discharge by the model. Summary of mean interannual value of water balance variables between November 2006 and October 2021.

Discharge stations	Q BC	Q Venturi	Q MCO-TM	S Q	DSC	
Average annual observed	0.0053 / 400	0.0437 /	0.0017	0	0.0011	
discharge (in m ³ /s / mm/year)	0.00337490	599	0.0017	0.	0011	
Hydrological surface area (ha)	34	230	-		-	
Observed discharge minus	0.0044	0.0363			-	
estimated direct runoff (m ³ /s)	0.0044		-			
Simulated discharge minus	0.0065	0.0282	_		_	
estimated direct runoff (m ³ /s)	0.0005	0.0202		_		
Water balance variables	Р	AET	Peff	R	Ι	
2006-2021 mean interannual	1082.6	584.2	610.6	104	506	
value (mm/year)	1002.0	504.2	010.0	104	500	

Figure 5.10 shows the water balance between November 2006 and October 2021 and the interannual average estimated with monthly data aggregated to an annual frequency. The average rainfall is 1083 mm/year. The actual evapotranspiration calculated using the Thornthwaite method is 584 mm/year, which represents 54% of rainfall. It results in an effective rainfall (P_{eff}) of 611 mm/year, with a small difference (2%) compared with the mean discharge at the site outlet Q Venturi but 20% higher than that measured at Q BC, even when considering that the collected water drained by Q BC is a mixture of water coming from the vertical infiltration through the storage (7 ha) and lateral flows coming from the gneiss aquifer (27 ha).



Figure 5.10 : Water balance for the sub-catchments drained by Q Venturi and Q BC, calculated between November 2006 and October 2021, showing annual average with error bars representing the standard deviation.

For this catchment which is mainly covered by forest with slopes between 0% and 7%, the runoff coefficient can be estimated at a value of 0.17, using the table from the American Society of Civil Engineers (1969). The estimated mean annual runoff is then 104 mm/year and the net infiltration of 506 mm/year is then applied as recharge in the model.

5.5.4. Groundwater modeling

The calibration of the model at a steady-state condition was performed by varying the hydraulic conductivity of the formations in order to properly reproduce the mean annual piezometric levels in the 13 piezometers of the study area, as well as the discharges observed at the control basin (Q BC) and at the site output (Q Venturi). The calibrated hydraulic conductivities are presented in Tableau 5.1.

Figure 5.11 shows a good agreement between the observed and the simulated hydraulic heads ($R^2 = 0.993$), to a lesser extent for AI16 which is outside the catchment and BE19 which is in the reworked area. All simulated levels lie within the 95% confident interval. The *ME*, *AME* and *RMSE* for the calibrated model are -0.65 m, 3.21 m and 3.78 m respectively. The maximum acceptable value of the calibration criterion depends on the water level magnitude over the domain. The scaled root mean square error (*SRMSE*), which is *RMSE* divided by the range of observed water levels, is 3.3%. It must be less than 10% to be considered as an acceptable value (Barnett et al., 2012; Mamo et al., 2021). The calibration of the model was thus considered of

good quality. The simulated hydraulic heads satisfactorily reproduce the groundwater flow in the gneiss aquifer below the storage area.

The groundwater flow in the southern part of the catchment is drained by the Balaures River and by small creeks on the steepest hills. In the gneiss aquifer (P3, P4 and P5), the flow is oriented directly towards the bottom of the valley. Here the vertical flow across the multiple layers of the TSF corresponds to the prescribed recharge on top of the model. At the storage facility itself, the water table is drained by the ancient bed of the Balaures River (BE11, B12, V1, V2 and P6). Downstream, the groundwater flow is also oriented towards the ancient river bed whereas in the western part of the catchment, where the slopes are steeper, the flow goes straight to the outlet.



Figure 5.11 : Scatter plot of simulated vs observed hydraulic heads with minimum and maximum observed values and 95% confidence interval in dotted lines.

If the model gives satisfactory results for hydraulic heads, it does not appear to accurately simulate the observed discharge of the two main sub-catchments of the study area. As shown in Tableau 5.5, the simulated discharge at the control basin (Q BC = $0.0065 \text{ m}^3/\text{s}$) is overestimated by 48% while the simulated discharge at the outlet of the site (Q Venturi = $0.0282 \text{ m}^3/\text{s}$) is underestimated by 22% compared to observations.

Forward particle tracking was used to identify the pathlines of the groundwater flow inside and in the vicinity of the TSF sub-catchment as well as in the alluvial zone downstream of the catchment. For the sub-catchment (Figure 5.12), forward particle tracking (particles represented by a red circle) was used to delineate the subsurface catchment limits upstream of the control basin. The particle pathlines confirm that the control basin is fed laterally by groundwater flows coming from the hillsides and that the original bed of the Balaures River drains groundwater from the hillsides to the control basin. This subsurface catchment covers a surface area of 40 ha, 6 ha more than the surface catchment previously defined from the topography, whereas a subsurface catchment of smaller size than the surface catchment had been expected to meet the measured flow.



Figure 5.12 : Particle tracking in the tailings storage area.

Figure 5.13 shows the particle tracking simulation downstream in the alluvial zone. The starting particles are located in layer 1 close to the Balaures surface catchment limits, in order to compare the surface and subsurface catchments and clarify the origin of the difference between the observed and simulated discharges at Q Venturi. It shows that groundwater from the western slopes is not immediately collected by the river but instead flows parallel to the river in the alluvial deposits due to their high hydraulic conductivity and the gentle slopes of the hills. Today, the western part is actually drained by channels and drains and the water flows directly into the Balaures River. If the exchanges between these two areas (+0.0078 m³/s) are added to the previously simulated flow at Q Venturi (0.0282 m³/s), a total simulated discharge of 0.036 m^3 /s is obtained, equal to the observed one with a slight difference of 0.7%.



Figure 5.13 : Particle tracking in the lower part of the catchment.

5.5.5. Climate change



In Tableau 5.6, according to all scenarios, the mean annual temperature over the next 100 years could statistically increase by 0.5° C to 5° C at the Bertholène site (mean Sen's slope: + 0.005 to + 0.052 °C/year). For annual rainfall, no trend is observed for the RCP2.6 scenario. For RCP4.5, only one out of six climate models gives a significant decreasing trend. For the worst-case scenario (RCP8.5), two trends are both significant and decreasing (Tableau 5.6).

Tableau 5.6 : Summary of the Mann-Kendall tests on temperature and rainfall for the next 100 years with the number of models exhibiting significant trends and the direction of those trends.

	Temp	oerature	Rainfall		
Scenario	Significant trend	Trend	Significant trend	Trend	
RCP2.6	3/6	3/3 Increasing	0/6	-	
RCP4.5	6/6	6/6 Increasing	1/6	1/1 Decreasing	
RCP8.5	6/6	6/6 Increasing	2/6	2/2 Decreasing	

Concerning the water balance terms at the catchment scale (Tableau 5.7), there is no overall trend for *AET* from the Mann-Kendall test. For the RCP2.6 and RCP4.5 scenarios, annual trends are divergent and mostly not significant, with only three simulations showing a significant

trend. For the RCP8.5 scenario, four out of six trends are significant, half of them showing an increase of *AET*. Effective rainfall is influenced both by rainfall and *AET* changes. Only two models out of 18 display a significant trend. Overall the effective rainfall is decreasing for RCP4.5 and RCP8.5 by 2.4% and 4%.

Tableau 5.7 : Summary of the Mann-Kendall tests on AET and effective rainfall with the number of models exhibiting significant trends and the direction of those trends.

	AET			Effective rainfall		
Scenario	Overall	Overall Significant Tren		Overall	Significant	Trend
	variation	trend		variation	trend	
	(%)			(%)		
PCD26	35	2/6	2/2	2.2	1/6	1/1
KCI 2.0	5.5	2/0	Increasing	2.2	1/0	Decreasing
	-0.5	1/6	1/1	-2.4	1/6	1/1
KCI 4.3	0.5	1/0	Decreasing	2.4	1/0	Decreasing
PCP8 5	_1 2	1/6	2/4	-1	0/6	0/0
KCF 0.J	1.2	4/0	Increasing	4	0/0	Decreasing

5.5.5.2. Extreme events and their influence on the observed hydraulic head

The impact of extreme events on groundwater level was studied from acquired data on piezometers BE10 and V1 which are the only two piezometers located in the center of the valley. BE10 is located upstream of the storage and V1 is located in the middle of the facility downstream the storage and it is screened at the base of 40 m of precipitates and tailings. The studied events correspond to the maximum water level recorded during the period June 2018 - November 2021. They result from a succession of rainy days between the 19th of January and the 9th of February 2021 for the two piezometers during the wet period.

Figure 5.14a shows the water level change in BE10. The peak is reached with a lag of 4 days after 7 rainy days, with a total of 50 mm during the last 3 days. This cumulative rainfall over 3 days corresponds to a 2-year return period event. The water level increased by 2 m in 4 days after a first peak (27 January). The decrease was also rapid right after the rainfall stopped, -3.5 m in 5 days. This part of the storage facility also exhibits high seasonal piezometric variations (3 to 4 m) as shown previously in Figure 5.7. Figure 5.14b shows the water level in piezometer V1 for the same rain event recorded during winter 2021. The highest water level rise is due to consecutive rainy days and the peak is reached after 3 rainy days with a rise of 40 cm. It slowly decreases as the rainfall ceases. During this largest event ever observed during the three years of daily monitoring, the maximum water level observed remained at about 1.5 m below the tailings. The groundwater level also never reached the tailings at the observation piezometers BE11 and BE12 during the 20-year monthly monitoring.



Figure 5.14 : (a) Observed groundwater level recorded in BE10 piezometer and (b) the highest observed groundwater level recorded in V1 piezometer following the same two-year return period event.

The threshold of the 3-day cumulative event corresponding to the decennial return period is 87 mm over the period 1975-2005. The number of events over this threshold per 30-year period in the 21st century is represented in Figure 5.15. For the three periods considered, the number of events should increase from four events between 1975 and 2005 to nearly 8 events, on average, over 30 years. Extreme events should therefore become more frequent during the next century compared with the historical period, while remaining more or less equally frequent over the next 100 years for scenarios RCP2.6 and RCP8.5. For the scenario RCP4.5, there should be an increase from 5.8 in 2006-2036 to 8.3 events at the end of the century.



Figure 5.15 : Mean number of events over the threshold (87 mm, decennial return period) over the six simulated historical period and for the six simulations for each RCP scenario and three successive 30-year periods over the next century with the maximum, minimum and the median.

Figure 5.16 shows the estimated intensity of extreme events for several given return periods for the simulated historical rainfall between 1975 and 2005, and for the three RCP scenarios over the period 2006-2036 and the period 2068-2098. For a given return period, the variability of return level is represented according to the six models. The return level is expected to increase by 9% to 21% on average at the end of the century for all three scenarios, compared to the historical period. For RCP2.6, events should be more intense for the period 2068-2098 than during the period 2006-2036 by an average of 4.1%. The same result is observed for RCP4.5 with an average intensity increase of 4.4% while for RCP8.5, the return levels decrease. For that same scenario, events should be less intense during the period 2068-2098 than during the period 2006-2036 by an average of 4%.



Figure 5.16 : Estimated return levels for the three RCP scenarios in 2006-2036 and 2068-2098 and the historical period (1975-2005). Return levels are estimated for 2, 5, 10, 20 and 30 years.

5.6. Discussion

5.6.1. Hydrogeological functioning of the storage area

Thanks to the high frequency monitoring and the presence of two new piezometers within the TSF, the analysis of groundwater level variations demonstrated that the storage facility is in an unsaturated condition with the groundwater level below the TSF. Even for extreme rainfall events with a 2-year return period, the water level still should not reach the tailings base. For the moment, this is the most important rainfall event recorded.

The water collected by the control basin at the storage outlet originates from two sources, as illustrated by electrical conductivities (EC) measured during high and low flow at the drain level in piezometer V1, in the gneiss aquifer in piezometer P3 and at the basin control (Tableau 5.4). At the surface, the sub-catchment drained by Q BC is supplied at 80% from the forest where water feeds the gneiss aquifer, and at 20% by the TSF through which water infiltrates vertically. During high flow period, the combination of 70% of groundwater from the gneiss aquifer and 30% from the tailings zone gives the measured EC value of 684 μ S/cm at the control basin. During low flow period, the repartition corresponding to the measured EC value (164 μ S/cm) is very different, with only 5% from the tailings zone and 95% from the hillsides. Water percolation through the tailings is limited during summer by less rainfall and high evapotranspiration, while the bedrock aquifer acts as a reservoir, storing water in winter and releasing it in summer. It is assumed that the drain is continuously fed by vertical infiltration as the electrical conductivity measured in V1 always remains high (Figure A5.18, see supplementary material) indicating the presence of high mineralized water in this piezometer all year long. Vertical infiltration occurs through two mechanisms: continuous Darcy-type flow and non-continuous rapid preferential flow (see section 5.5.1). The second mechanism could be of real importance with climate change and extreme events. Kalisman et al. (2022) showed that pulsed pressure wave flow, which can be likened to sudden water injections or extreme events, generated 75% more solute mass compared to continuous Darcy-type flow. The AMD generation could then be increased. It is also assumed that the old river bed still acts as a drain for the gneiss aquifer, as illustrated in the numerical model by the convergence of groundwater flows towards the former river bed (here defined as a constant head boundary condition).

5.6.2. Catchment scale groundwater flow

The annual water balance estimated using the Thornthwaite method, a *PET* calculation based on the Oudin formula and a RU of 50 mm maximum is well balanced at Q Venturi. With the estimated recharge (506 mm/year), the measured discharge (minus runoff) at Q Venturi is well reproduced by the model, taking into account the flow drained by the alluvial part on the left bank. There is agreement between the surface and subsurface watersheds at the scale of the Balaures catchment.

With the same calculation, the water balance at Q BC is overestimated by 20% for a hydrological surface of 34 ha. A sub-catchment area of only 27 ha would be required to balance

the water budget at Q BC. However, the model does not confirm this hypothesis, with a subsurface catchment determined using particle tracking reaching as high as 40 ha. The increase in hydraulic conductivity of the deep layer within a reasonable range did not allow the creation of deeper circulations bypassing the drain under the tailings. The hypothesis of lower effective localized rainfall is also not supported by the presence on the TSF of a sparse vegetation cover and coarse materials on the surface that facilitate infiltration. The model was unsuccessful in providing constraints on the value of the recharge, as the simulated heads in the storage area were not sensitive to the imposed recharge value, which we varied between -5% and +20% of the initial value. Only the ME criterion decreases as recharge increases. Therefore, it is possible that the presence of the geotextile membrane at the base of the drain, which is not represented in the model, partially limits drainage from the catchment area to the control basin. In any case, however, it facilitates the recovery of any water that has seeped into the TSF and is then stored in the control basin. Finally, we cannot exclude the possibility that the quality of the flow measurement at the control basin is part of the explanation for the water balance discrepancy.In addition, the potential evapotranspiration calculated for the catchment is 662 mm/year, which represents 61% of the rainfall. The PET/P ratio for the Bertholène site is the same as for other small catchments in the area when using the same Oudin evapotranspiration formula (French Hydro database, Brigode et al., 2020). In the equivalent catchments (1.2 km² to 24 km²) located around the Bertholène site (O5010535, O5000510, O5445510 and O5055310), this ratio is less than 65%. We can therefore assume that the Thornthwaite water balance calculation does work at Q Venturi between November 2006 and October 2021 and can be used to estimate the water balance in the context of climate change, considering all other parameters equal, including vegetation.

5.6.3. Use and limitations of the hydrogeological model

In its native version, MODFLOW cannot simulate unsaturated flow. The UZF package has been developed to meet this need but it is mainly designed to compute the evapotranspiration and the recharge in unsaturated areas. Despite that, MODFLOW has been chosen in this study. First, the knowledge of the particle size and the parameters to describe the unsaturated medium within the TSF was very imperfect and not sufficient to run adequately the UZF package. Second, the goal was to simulate the average groundwater flow at the catchment scale. The TSF that overlies gneiss formations over only 3% of the total model surface, was therefore removed from the aquifer system model domain due its unsaturated functioning inferred from the available data (see section 5.5.1). In reality, from a hydrogeological point of view, the TSF delays the impact of effective rainfall by 5 to 16 days into the drain located below the TSF due to the infiltration through the tailings storage (see section 5.5.2). As the model runs in steady state conditions and represents an average hydrogeological functioning, this delay is not taken into account at the annual scale.

The use of a variable saturation flow model would certainly have been more appropriate but also much more expensive to implement in 3D and at the catchment scale. A transient model would also have been useful to simulate seasonal variations and determine how groundwater levels and discharges would change during future wet and dry periods (Ethier et al., 2018; An

et al., 2022). Simulation of flows taking into account the delay due to the TSF would provide information on flow velocity in summer and winter and on possible preferential flows in the TSF. In addition, the development of a transient model would allow the simulation of the site's fate for the next 100 years. In particular, it would allow for the simulation at the site scale of the groundwater level during extreme events today but also in the future. These events would not have the same impact on groundwater level in dry periods as in wet periods regarding the initial groundwater level conditions (Petpongpan et al., 2021). The observed extreme events (Figure 5.14) occurred during the winter period with a high groundwater level. But the reaction of the groundwater level is unknown during the dry period in case of heavy rainfall, dry soil and low groundwater level.

Despite all those simplifications and limitations, the model was used to study the impact of an engineered system cover over the TSF on the hydrogeological functioning of the aquifer system. This cover is expected to limit or stop the infiltration through the TSF in order to reduce AMD generation. To test this scenario, the recharge over the TSF surface (7 ha) was set at 0 mm/year. As the main input in the model is the recharge, the modification of the recharge impacts directly the groundwater level and discharge, mainly at the TSF scale. Compared to the reference model, the average decrease in simulated water level with cover would be about 1.6 m in the TSF area and the decrease of the discharge is 20% at Q BC and 3% at Q Venturi. The discharge would still be 0.0052 m³/s at Q BC and mainly composed of water from the gneiss aquifer with an average pH of 5.7, above the environmental release limit (pH = 5.5). The acid mine drainage at the TSF outlet would be slightly reduced because gypsum and pyrite contained in the tailings will be isolated from the rainfall. However, ferric iron still present in the waste rocks and tailings may maintain AMD (Moses et al., 1987). Geochemical modelling at the TSF scale is underway and will give more arguments on the added value of an engineering cover over the TSF.

5.6.4. Climate change impact

Although the impact of climate change has not been simulated with the model, the water balance forecasts with the CMIP5 simulations are reassuring as to the possible evolution of recharge. An increase of the frequency and intensity of extreme events is expected for the end of the century. Analysis of climate variables under three RCP scenarios predicted a temperature rise of 0.5°C to 5°C until 2098 in the study area. Changes in annual rainfall have no significant pattern for all RCP scenarios. Regarding seasonal variation, summer should be drier with a rise of temperature and a decrease of rainfall as shown by Terray and Boé (2013). Regarding effective rainfall, few simulations show a significant trend (two out of 18) and for those two simulations, it is expected to decrease over the next 100 years. The Thornthwaite water balance method is not widely used to calculate effective rainfall in the future but it remains the simplest way to determine it (Aparecido et al., 2021). Nevertheless, this conclusion should be used with caution, as evapotranspiration could be impacted by changes in vegetation due to climate change (Laanaia et al., 2016). The major uncertainties in potential evapotranspiration come from the climate models (GCM and RCM) themselves (Lemaitre-Basset et al., 2021), the potential evapotranspiration formula being co-dependent on temperature. At the annual scale,

if the effective rainfall were to decrease, the water volume to be treated would be lower and therefore the current environmental management of the site would remain valid in the future.

Extreme events due to climate change, both heatwayes and rain events, are expected to increase in France (Ouzeau et al., 2016; Tramblay and Somot, 2018). The number of events will rise compared to the historical period (1975-2005). On the one hand, the analysis showed that extreme events in this area should be more frequent during the 21st century according to RCP2.6 and RCP8.5 scenarios. For RCP4.5, the number of events should almost double between 2006-2036 and 2068-2098. A study on six catchments near the Cévennes in southern France also showed that the frequency of extreme events could increase by 22% at the end of the century compared to the period 1960-1990 (Tramblay et al., 2012). Those results support the prediction that extreme events should be more frequent in the study basin, like in southern France. On the other hand, these extreme events should be more intense during the period 2068-2098 compared to the 2006-2036 period, according to the calculation of their return level using a maximum 3-day rainfall event per year, except for RCP8.5. This increase has also been predicted with an even greater increase of up to 22% in extreme daily rainfall in the French Mediterranean (Ribes et al., 2019). This increase in rainfall during extreme events could impact the groundwater level below the TSF, allowing it to reach the tailings. Based on observation of short-period return events, the water table should not remain in contact with the tailings for more than five days. As seen in section 5.6.1, extreme events could generate more AMD at the TSF outlet due to high pressure gradient in fine-textured materials such as the tailings. Extreme events may also have a different impact on the recharge depending on the season in which they occur (Manna et al., 2022). This impact is not taken into account by the Thornthwaite method, which is calculated on a monthly basis, independently of rainfall intensity. The extreme events occurring in summer are mainly due to storms with short and intense rainfall. This can lead to rapid flows into the storage which is flat and permeable. The low-intensity summer rainfall is mainly evapotranspired unlike winter rainfall which produces more infiltration and increases the water content in the unsaturated zone. Such impacts could not be analyzed with the available data.

5.7. Conclusion

The reclaimed Bertholène mine allows us to study the hydrogeological behavior of an anthropogenic site, to determine its potential modifications due to climate change and to provide guidance for sustainable environmental management in the future. The analysis developed in this study was supported by long-term field data. The installation of two new piezometers located in the tailings mining facility (TSF) and the implementation of a daily monitoring in several piezometers in the area provided new and accurate information at the site scale. The groundwater level analysis showed that the facility is in an unsaturated condition throughout the year including during recorded extreme rainfall events. Correlations between rainfall and discharges confirmed the fast response of the catchment. At the TSF outlet, the water collected at the control basin consists of at least 70% of water from the gneiss aquifer and up to 30% from vertical seepage through the unsaturated tailings during high-flow periods.

A three-dimensional simplified groundwater flow model was developed to understand the steady-state functioning of the mining catchment based on the analysis of monitored data, and to identify the groundwater flow paths. The model's input is the recharge calculated from the water balance at the catchment scale (Q Venturi). The model was used to test the impacts of a reclamation scenario. A cover over the TSF could lower groundwater levels by 1 m at the site scale and decrease the discharge at the BC by 20%. The cover would slightly reduce the AMD at the outlet of the TSF, with only water coming from the gneiss aquifer reaching the control basin. Since AMD is generated elsewhere in the mine site, the treatment station should continue to operate with or without TSF coverage. The geochemical model should provide new information on how long AMD is expected to last in the near future at the TSF scale. This will make an informed decision on the added value of the TSF cover.

Climate change is expected to have little effect on the hydrological functioning of the catchment. With only two out of the 18 evaluated models giving a significant trend of decreasing effective rainfall, the recharge might slightly decrease at the site, leading to lower water levels and discharges compared to the current situation. Climate change, on the other hand, will have an impact on extreme events. They should be more frequent and more intense than during the historical period in the catchment area. At the end of the century and compared to the period 2006-2036, events should not be more frequent except for the RCP4.5 scenario. For the RCP2.6 and RCP4.5 scenarios, the intensity of an event for a given return period would increase by 4% compared to a 4% decrease for the RCP8.5 scenario. This means that the water table could reach the tailings during some extreme events but only for a few days. The impact of such an event in terms of geochemical reaction should be evaluated. Overall, the climate change study shows that the current hydrological functioning of the site remains valid in the future.

The methodology developed here is not site-specific and is applicable to other sites with some adaptations regarding the site's characteristics and modeling expectations. Daily frequency monitoring appears essential to understand the functioning of the catchment as it gives information regarding the water table reactivity, its interaction with the tailings especially during extreme events and the discharge reaction to rainfall. The combination of data analysis with groundwater modeling is very useful for testing and (in)validating different hypotheses about groundwater flow paths and water sources. It is also useful for testing reclamation scenario. However steady-state modelling does not simulate the fate of the site under climate change and extreme events. In our case, this simple modeling methodology only provides the average state of the hydrogeological system, determines the sub-catchments and identifies the origin of the water at BC, all based on a detailed data analysis. The use of climate change projections is necessary to evaluate the impact of future rainfall and temperature variations on the effective rainfall. It may be more appropriate to run the model with climate change data as input if changes in recharge were significant, which is not the case here. Similarly for extreme events, a transient model would allow to simulate the response of the catchment in wet and dry periods and to see the resulting variations of groundwater levels as well as discharges. Pending the results of the geochemical study and from a hydrogeological point of view, this study validates the current management for this former mine. The geochemical study under development will focus on 1D and 2D modeling of the TSF in unsaturated conditions in order to quantify the duration of AMD generation. Beaucaire (2021) worked with a model in saturated conditions and with a lack of data regarding the petro-physical and mineralogical properties of the stored materials. These two limits justify that the estimate of the end of AMD generation, already proposed, must be taken with caution, especially since the amount of pyrite remaining in the storage is not known. Through the hydrogeological model and data monitoring, the flow conditions in the TSF and the origin and discharges evolution at the outlet of the TSF were clarified. Thus, the geochemical model will be better constrained and could be run in transient conditions given the influence of extreme events in the unsaturated zone.

Synthèse

Ce chapitre apporte des connaissances sur le fonctionnement hydrologique du stockage de résidus et de stériles et du bassin versant en général. Pour rappel, le drainage minier acide dans le stockage est provoqué par la présence de pyrite résiduelle provenant des stériles miniers. La plupart de ces nouvelles informations ont des objectifs opérationnels en termes de gestion des eaux directement pour le site.

Stockage de résidus

- L'eau s'écoule dans des conditions non saturées à travers le stockage.
- Il n'y a pas de nappe dans le stockage.
- Le drainage minier acide est généré par l'infiltration des eaux de pluie au contact de la pyrite résiduelle et représente jusqu'à 30% du volume au bassin de contrôle en période hivernale.

Nappe des gneiss

- Les débits et des niveaux piézométriques ont une réaction rapide aux précipitations (< 8 jours).
- L'eau des coteaux circule dans les gneiss altérés sous le stockage et rejoint la chaussette drainante pour être dirigée vers le bassin de contrôle.
- Les effluents au bassin de contrôle sont un mélange des eaux provenant de la nappe des gneiss et des eaux ayant circulées dans le stockage qui sont acides et concentrées en métaux.
- En cas de colmatage la chaussette drainante, il n'y a pas de risques de montée en charge de la digue au vu de la porosité et perméabilité des stériles qui la constituent.
- Le modèle hydrogéologique reproduit de manière satisfaisante le fonctionnement actuel du bassin versant.
- La création d'une couverture étanche sur le stockage diminuerait le volume d'eau au bassin de contrôle de 20% et limiterait le drainage minier acide.
 - Dans notre cas, le drainage minier acide va continuer à être généré dû à la présence de fer ferrique (Fe³⁺) et de pyrite résiduelle présente dans les stériles miniers.
 - Si le choix est fait d'installer cette couverture, son impact environnemental devra être pris en compte dans l'étude (volume de terre à amener, nombre de camions, nombre de kilomètres).
 - Il faut garantir l'étanchéité de la couverture sur des échelles de temps pluriséculaires et qu'il n'y a pas d'écoulement latéral sur toute la longueur du stockage.
 - Tant que les eaux sont collectées, suivies et traitées même à l'échelle de plusieurs dizaines d'années, cela est une solution qui peut être gérable pour un industriel.

Changement climatique

- La pluie efficace devrait diminuer d'ici à 2100 (-4 % pour le scénario RCP8.5).
- Les évènements extrêmes devraient être légèrement plus intenses (+4,5 %) pour les scénarios RCP2.6 et RCP4.5 mais pour le scénario RCP8.5 (-4 %). Leur fréquence ne devrait pas varier entre le début et la fin du siècle.
- Cette approche nous permet de confirmer que la gestion environnementale actuelle du site (volume d'eau traités et bassins de stockage) reste valable dans le futur (jusqu'à la fin du siècle).

Annexes

Supplementary material



Figure A5.17 : Longitudinal cross-section of the TSF with the four piezometers (BE10, BE11, V1 and BE12) in the axis of the TSF and the mean observed water table in blue


Figure A5.18 : Daily electrical conductivity monitored in piezometers P3 and V1 and daily rainfall at the Rodez meteorological station

Piezometers	Depth (m)
AI16	> 100.0
BE10	26.0
BE11	38.1
BE12	56.3
BE19	20.0
Р3	33.0
P4	43.0
P5	56.0
P6	18.3
P8	17.3
Р9	9.9
V1	51.0
V2	32.5

Tableau A5.8 : Depth of the piezometers

Tableau A5.9 : Data for each water balance parameters between November 2006 and October 2021

Year	Rainfall	AET	Effective rainfall	QVenturi	QBC
	(mm/year)	(mm/year)	(mm/year)	(mm/year)	(mm/year)
2006-2007	1018.8	727.68	406.8	524.3	455.32
2007-2008	1067	570.5	574.3	644.55	529.46
2008-2009	1008.3	511.62	601.2	543.7	465.19
2009-2010	837.6	485.04	470.2	462.8	395.08
2010-2011	787.2	547.2	322.1	251.3	268.03
2011-2012	1092.7	561.03	638.6	495.85	445.47
2012-2013	1095.9	563.14	654.9	658.52	559.37
2013-2014	1137.8	643.48	608.9	736.09	628.87
2014-2015	709	427	378.6	677.74	530.91
2015-2016	983.5	557.5	534.3	766.31	580.05
2016-2017	657.5	581.84	201.4	368.98	361.19
2017-2018	1317.5	568.66	886.9	779.85	596.85
2018-2019	1313	641.99	779.1	379.63	346.97
2019-2020	1627.5	646.81	1103.7	979.45	631.69
2020-2021	1586	726.46	998.5	722.87	562.17

For the next 3 tables, the 6 models are renamed as follows:

- M1: CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM-ALADIN63
- M2: CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI-RACMO22E
- M3: ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E
- M4: ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4
- M5: MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-8-17
- M6: MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-REMO2009

Tableau A5.10 : Historical return levels of each model for the period 1975-2005

Models	M1	M2	M3	M4	M5	M6
Return periods (years)	Historical return levels (mm)					
2	63.5	60.4	58.5	60.6	60.2	62.7
5	79.6	77.5	68.4	76.5	74.5	80.0
10	89.4	91.1	74.8	87.8	85.4	91.5
20	98.1	106.2	80.9	99.1	96.9	102.5
30	102.8	115.8	84.3	105.9	104.2	108.8

Tableau A5.11 : Return levels b	by model for the	period 2006-2036 for	each RCP scenarios
---------------------------------	------------------	----------------------	--------------------

Models	M1	M2	M3	M4	M5	M6	
Return periods (years)	Return levels for RCP2.6 (mm)						
2	73.3	72.0	62.5	60.7	69.6	64.9	
5	92.2	97.3	76.6	78.9	84.2	82.8	
10	104.3	116.6	86.2	94.2	93.4	96.1	
20	115.7	137.2	95.6	112.0	101.7	110.1	
30	122.0	150.0	101.1	123.8	106.3	118.7	
	Return levels for RCP4.5 (mm)						
2	68.1	70.1	65.0	63.8	67.3	72.9	
5	86.0	92.7	79.3	82.1	86.2	93.9	
10	97.5	110.7	88.0	95.6	101.2	110.9	
20	108.3	130.7	95.6	109.7	117.9	130.0	
30	114.3	143.6	99.8	118.3	128.6	142.4	
		Retur	n levels fo	r RCP8.5	(mm)		
2	68.1	74.3	63.7	68.4	67.3	66.1	
5	90.4	99.8	75.5	88.1	82.4	79.9	
10	108.7	119.1	81.9	102.5	91.1	88.6	
20	129.6	139.6	87.1	117.5	98.7	96.6	
30	143.3	152.4	89.8	126.6	102.7	101.1	

Models	M1	M2	M3	M4	M5	M6	
Return periods (years)	Return levels for RCP2.6 (mm)						
2	66.0	70.1	69.1	72.8	74.6	72.4	
5	80.3	96.7	87.5	89.4	93.5	90.0	
10	88.9	119.5	99.9	99.1	106.9	101.5	
20	96.4	146.1	111.9	107.4	120.6	112.5	
30	100.4	164.0	119.0	111.9	128.8	118.7	
	Return levels for RCP4.5 (mm)						
2	78.1	68.0	70.6	69.7	70.9	64.9	
5	106.4	88.0	87.3	87.2	93.4	81.5	
10	129.3	104.3	96.5	98.5	111.4	92.1	
20	154.9	122.8	104.1	109.0	131.5	101.9	
30	171.5	134.9	108.0	115.0	144.5	107.4	
		Retur	n levels fo	r RCP8.5	(mm)		
2	67.9	66.5	69.9	68.7	64.3	65.0	
5	85.4	88.2	83.4	83.5	80.9	77.4	
10	98.0	109.0	90.6	91.9	92.1	84.0	
20	110.7	135.6	96.4	99.0	103.0	89.5	
30	118.4	154.7	99.3	102.7	109.3	92.2	

Tableau A5.12 : Return levels by model for the period 2068-2098 for each RCP scenarios

Complément d'information sur l'acquisition complémentaire

Le site de Bertholène est suivi par ORANO AMF depuis sa fermeture en 1995. Le suivi comporte des données hydrologiques, météorologiques, piézométriques et physico-chimiques à différents pas de temps (hebdomadaire et mensuel). En particulier, un suivi mensuel des niveaux piézométriques est effectué depuis janvier 2000. Il porte sur 10 piézomètres et permet d'avoir un historique des variations piézométriques sur le site. Ce suivi a été effectué de manière manuelle avec une sonde piézométrique. La plupart des points suivis sont situés dans la zone du stockage de résidus.

Dans le cadre de cette étude, deux nouveaux piézomètres (V1 et V2) ont été forés dans le stockage des résidus en octobre 2018 (Laurent, 2018). Le piézomètre V1 (Figure A5.19a) a une profondeur de 49,5 m. Sa crépine capte les eaux situées dans la chaussette drainante à la base du stockage de résidus et dans les gneiss. Grâce à la sonde présente dans ce nouveau piézomètre, il est possible de suivre en continu le niveau piézométrique à l'interface entre les gneiss et la chaussette drainante. Le piézomètre V2 (Figure A5.19b) est profond de 33 m. Il est foré dans le stockage à mi-chemin entre les coteaux ouest et le fond de l'ancienne vallée. La position de ce dernier a été définie pour disposer d'observations entre le stockage et les coteaux et pour mieux appréhender le rôle des coteaux dans l'alimentation de la zone de stockage.



Figure A5.19 : Coupe transversale du stockage au niveau des nouveaux piézomètres V1 et V2.

Depuis juin 2018, des sondes de pression enregistrent en continu (toutes les 2 h) les fluctuations des niveaux piézométriques de 9 piézomètres (en orange sur la Figure A5.20). Entre 2019 et 2021, le relevé des données a été effectué tous les 3 mois. Les points en marron sur la Figure A5.20 sont toujours suivis de façon manuelle mensuellement par ORANO AMF en complément du suivi par les sondes. Le Tableau A5.13 récapitule les informations disponibles sur les différents piézomètres, le type de suivi et le type de sonde utilisé.



Figure A5.20 : Localisation des piézomètres et des points de mesure de débit (fond de carte IGN25®).

Nom	Suivi mensuel depuis	Suivi journalier depuis	Sonde utilisée pour le suivi	Précision	Conductivité électrique
BE10	Janvier 2000	Juin 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 10 m	
P1	Janvier 2000		Mesure manuelle		
BE11	Janvier 2000		Mesure manuelle		
P3	Janvier 2000	Août 2018	SOLINST LTC Junior	\pm 0,01%, échelle totale 0 - 10 m	Depuis août 2018
V2		Novembre 2018	SOLINST Levelogger	\pm 0,01%, échelle totale 0 - 10 m	
V1		Janvier 2019	SOLINST LTC Junior	\pm 0,01%, échelle totale 0 - 10 m	Depuis janvier 2019
P4	Janvier 2000	Novembre 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 20 m	
BE12	Janvier 2000		Mesure manuelle		
P5	Janvier 2000	Juin 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 10 m	
P6	Janvier 2000	Novembre 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 10 m	
P7	Janvier 2000		Mesure manuelle		
AI16		Juin 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 10 m	
BE19	Janvier 2000		Mesure manuelle		
P8	Janvier 2000	Juin 2018	OTT Orpheus Mini	\pm 0,05%, échelle totale 0 - 10 m	
P9	Janvier 2000		Mesure manuelle		

Tableau A5.13 : Récapitulatif des piézomètres suivis sur le site de Bertholène.

Chapitre 6 Le Cellier (Lozère)

Préambule

Ce chapitre porte sur la compréhension des écoulements en milieu non saturé à travers un terril miniers statiques. L'objet d'étude est de plus faibles de résidus dimensions $(surface = 106000 \text{ m}^2)$ que dans le chapitre précédent axé sur le site de Bellezane et ne porte que sur une partie du site minier du Cellier. Le terril étudié est composé de résidus miniers recouverts d'une couche de stériles, ces matériaux sont considérés comme grossiers. Les résidus de traitement sont issus d'un traitement statique à l'acide sulfurique appliqué sur ce terril de stockage. Il est accompagné d'un système de drains, situé sous le terril et toujours présent, permettant de récupérer les effluents acides enrichis en U. Aujourd'hui, après mise en place d'une couverture de stériles miniers, les eaux traversant le terril sont collectées toujours par ce système de drains et amenées vers une station de traitement des eaux pour neutraliser l'acidité résiduelle (pH ~ 3,5) et abattre la concentration élevée en sulfate (10^{-2} mol/L). Les eaux sont traitées passivement dans deux bassins remplis de calcaire (une station de traitement à la soude complétant le traitement, si nécessaire).

L'étude se concentre sur le terril qui génère le plus d'effluent à traiter. Tous les exutoires du terril ont été instrumentés à partir du 1 avril 2021 de façon à mesurer les débits et la conductivité électrique à un pas de temps journalier. L'analyse de ces données montre que le débit à l'exutoire du terril réagit rapidement aux précipitations. Pour représenter ces écoulements rapides à travers le terril, un modèle à double porosité a été développé en régime transitoire et au pas de temps journalier avec le logiciel HYDRUS. Le modèle intègre une représentation simplifiée de l'hétérogénéité du terril basée sur une analyse granulométrique sur toute sa hauteur. L'évolution potentielle des débits jusqu'en 2100 a été simulée selon différents scénarios d'émission de gaz à effet de serre dans le but d'assurer une gestion responsable des effluents du terril et du site.

Ce chapitre est rédigé en anglais sous forme d'article. Il sera soumis à Water Resources Research. Ce chapitre fait suite à l'article de Ouédraogo et al. (2022). Dans cet article, j'ai participé à l'analyse des données et aux corrections de l'article. L'article est en annexe (p.243).

Plusieurs étapes ont été nécessaires pour aboutir aux résultats obtenus dans ce chapitre. Dans un premier temps, un modèle à simple porosité a développé pour simuler les débits au pas de temps mensuel de 2014 à 2021. Dans un second temps, un changement temporel du modèle a permis de simuler les débits au pas de temps journalier en se basant sur les nouvelles données acquises. Une étude de sensibilité du modèle a permis d'optimiser le maillage pour limiter le temps de calcul et de trouver les paramètres ayant le plus d'impact sur la simulation. Ces optimisations avec le modèle à simple porosité ne permettant pas de reproduire la réactivité des débits, le modèle a été développé avec la double porosité en prenant en comptant l'impact de la végétation. En complément, les résidus stockés ont été caractérisés par une étude granulométrique permettant de mieux contraindre le modèle. Seulement les résultats obtenus avec le modèle à double porosité et l'impact de la végétation sont présentés dans ce chapitre.

Abstract

The former uranium mine near Le Cellier, France represents an opportunity to investigate unsaturated flow in real conditions through a tailings pile resulting from heap leaching. Sustainable water management requires the understanding of its flows, to limit chemical reactions and avoid the migration of contaminants into the environment. Daily monitoring of drain discharge and monthly monitoring of physicochemical parameters at the pile outlet provide reliable information on how fast the pile reacts to precipitation. A two-dimensional dual-porosity model was developed with HYDRUS 2D at a daily time step. The model integrates a simple representation of material heterogeneity, based on a sieve analysis, and the vegetation transpiration due to the presence of bushes and coniferous trees on the surface of the pile. The calibrated model correctly simulates water discharge at the pile outlet and allows its simulation under climate change. Climate change may affect the recharge and discharge over the next 100 years with median annual discharge varying between +4.4% and -12% depending on greenhouse gas emission scenarios. Discharge simulations show that effluents generated during events below the 200-year return period rainfall events could be stored in a buffer basin to avoid any environmental contamination. These simulations are essential to ensure sustainable future water management at this former mining site.



Figure 6.1 : Abstract graphique

6.1. Introduction

Uranium mining activities generate waste products consisting of waste rock and mill tailings. Waste rocks are not milled but are instead used in the construction of the mining facilities. Tailings are the waste from the ore milling process, and their characteristics depend on the ore concentration. Dynamic leaching is suitable for high concentrations whereas static acid heap leaching has often been preferred for low concentrations. The static treatment consists of crushing the ore, then depositing it in piles of 10 m to 150 m high, and spraying a sulfuric acid solution for several months all over the pile. In such treatments, the effluents are collected by a drain system and treated to obtain a solid yellow "cake". During reclamation, waste rocks can also act as a cover on the piles. In France, tailings storage facilities (TSFs) contain several million tons of dynamic, static, and combined process tailings (BRGM, 1997; Orano Mining, 2019) which are under environmental survey to prevent risks such as water contamination, food-chain modification or deterioration, and the elimination of sensitive species (Betrie et al., 2016).

One of the major sources of water contamination is acid mine drainage (AMD) (Bell et al. 2001; Hakkou et al. 2008). In the mining context, this reaction occurs when sulfide materials – mainly pyrite – are in contact with a water flow and oxygen, resulting in water with low pH and high concentrations of heavy metals, sulfate, and toxic metalloids (Blowes, 1997; Descostes et al., 2004; Gu et al., 2020). In the case of static leaching in piles, the sulfide is generally all consumed during the ore exploitation. However remaining sulfuric acid can immobilized within the tailings into highly soluble minerals in unsaturated conditions, which may then leach out following rainwater infiltration, generating acidic, sulfate-laden effluents at the pile outlet. This acid generation varies according to the ore treatment, the tailings mineralogy, the pile size, and the residual acid in the tailings. Acid dissolution also depends on the water saturation of the pile and the water circulation through it. Understanding how water flows through the pile is therefore an essential component of long-term environmental management of these former TSFs. It allows for a better control and the prediction of acid generation and minimization of any environmental damage.

Numerous authors have studied the hydrogeological functioning of mine tailings piles using various approaches including laboratory and field analyses, tracer tests, and numerical modeling, and have succeeded in simulating water content and pile drainage (Aubertin et al., 2002; Bao et al., 2020; Dawood and Aubertin, 2014; Oldecop et al., 2011). The geochemical processes have also been well investigated to understand the generation of AMD (Leiva et al., 2021; Molson et al., 2005) and the impact of a pile's structure on it (Lahmira et al., 2017; Raymond et al., 2021). Tailings pile materials are generally highly heterogeneous. This heterogeneity affects the effluent quality (Munroe et al., 1999; Raymond et al., 2021) and impacts the flows, which can be divided into two types (Newman et al., 1997). The continuous Darcy-type flow occurs mainly in fine-grained materials receiving light rainfall (Fala et al., 2005; Ma et al., 2021). During heavy precipitation, the water instead flows preferentially through the coarse-grained materials (Blackmore et al., 2018; Muniruzzaman et al., 2020). In a laboratory experiment, Kalisman et al. (2022) show that in the case of sudden water injections

such as those occurring during extreme events, 75% more solute mass is generated in preferential-path flows compared to Darcy-type flows.

Numerical models are valuable tools for incorporating heterogeneity (Amos et al., 2015; Ma et al., 2014). The development of numerical models has to integrate the pile structure, the particle size distribution, and the dual-flow domain (capillary and preferential flow). Aubertin et al. (2003) insist in particular on the need for accurate knowledge of the soil's hydraulic properties in order to constrain the model and correctly represent the water flow in unsaturated soils. Regarding the representation of the dual-flow domain, dual-porosity and dual-permeability models are used to better represent the drainage dynamics with preferential and fast flows (e.g. Haws et al. 2005; Varvaris et al. 2018, 2021).

In addition, models are also useful for predicting the long-term changes of groundwater flow at former mine sites. Site reclamation must be sustainable, as acidic effluents can last for more than 100 years (Akcil and Koldas, 2006). Recent studies have examined the ability of current AMD prevention methods to remain effective in the future, in the context of climate change. Bashir et al. (2020) investigated the impact of texture (both coarse and fine) on oxygen flux for a TSF over until 2100. They concluded that covers made with fine materials have more sensitivity to climate change than those made with coarse materials, due to an increasing evaporative demand, that results in a loss of moisture. Lieber et al. (2022) concluded that a monolayer cover combined with a high water table remains effective for limiting the oxygen flux under climate change. Hotton et al. (2020) studied the ability of a capillary barrier to remain saturated during droughts and concluded that this method was robust. A few studies have considered changes in precipitation, temperature, and vegetation to assess changes in water balance at the annual scale (Alam et al., 2020, 2018; L'Hermite et al., 2022). These changes could have an impact on the discharge to be treated and could therefore require alteration of the water management and treatment facilities. Moreover, at a daily scale, the frequency and intensity of extreme events should increase with climate change, impacting the TSFs (Labonté-Raymond et al., 2020), and generating high volume of water to be treated in a short period of time. Several studies have worked on AMD generation during extreme events (Anawar, 2013; Nordstrom, 2009) but none of these on acid dissolution, resulting from historical static leaching.

The purposes of this paper are to understand the hydrological functioning of the pile at the daily scale and explore the impact of climate change on tailings drain discharges on an annual scale and during extreme events, based on a real pile in an industrial site with data coming from the environmental monitoring (precipitation, temperature, discharge, pH, sulfates, electrical conductivity, and sieve analysis) and using a modeling approach. This research effort is needed to anticipate any alterations required to the treatment facilities, if only in terms of the volumes of water to be handled, and also to consider the possible consequences of hydrological changes on the geochemical behavior of the tailings pile and the studies to be planned accordingly.

This study focuses on a leached tailings pile at the former Le Cellier mine in France. In a previous study, Ouédraogo et al. (2022) developed a numerical model with HYDRUS-2D based on historical environmental monitoring of a drainage system collecting all the effluents of the pile. The model of the drained pile satisfactorily reproduced the outflow at a monthly scale whether its internal structure was considered homogeneous or stochastically heterogeneous.

This paper presents improvements to the model thanks to the implementation of a new daily monitoring, which allows for an adequate observation of the fast responses in the pile, and a sieve analysis at different pile depths, which better constrains the spatial distribution of the hydraulic properties. We have thus developed a new dual-porosity model of the pile with HYDRUS-2D on a daily scale. After calibrating the model with in-situ discharge measurements, the climate change impact was assessed using the DRIAS-2020 daily precipitation and temperature reanalysis for three climate scenarios (RCP2.6, RCP4.5, and RCP8.5). We simulated daily discharges at the tailings pile outlet until 2100, with a particular interest in the impact of extreme events on the pile, in order to consider the modifications that might become necessary for sustainable water management.

6.2. Site and pile description

The Le Cellier site is located southeast of the Massif Central (Figure 6.2). The local climate is subcontinental, with episodic snow (altitude: 1,150m). Surrounded by forests, pastures, and swamps, the site is on a granite plateau with low slopes located in the crystalline massif of the Margeride. The site covers 66 ha.

The ORANO Group supervises and monitors the site for its remediation, reclamation, and water management. The mining activities took place from 1956 to 1990 and the vein produced 2,283 tons of uranium. The ore was extracted from underground and in open-pit mines (green area in Figure 6.2). The latter was subsequently filled in and covered with waste rocks. The uranium-rich ore (> 0.04‰) was treated with sulfuric acid and sodium chlorate. This dynamic leaching was also used for the medium-grade ore (> 0.02‰) but using just sulfuric acid. The mine tailings and low-grade ore (< 0.02‰) were amassed into three piles on the surface (yellow, orange and red areas in Figure 6.2) and the residual uranium was mined by static heap leaching, enabling the ore to be recovered and residual acid to be used, and avoiding the need for lime neutralization. Injected via boreholes at different depths, the acid leached through the ore. A system of drains, arranged at the base of the piles and separated from the soil by a concrete slab, collected the resulting effluents.



Figure 6.2 : Location map of the study area (base map from the IGN SCN25[®]).

In 1990, the mining activities were stopped and the site was remediated and reclaimed. The leaching piles were remodeled and covered with waste rocks. The piles are now covered with sparse conifers such as pine trees, grass, and small bushes. They are exposed to atmospheric conditions and water percolates through the tailings. The same drain system now collects the percolated water. Today, vadose water dissolves the precipitated residual acid, resulting in an acidic effluent at the drains system outlet (pH ~ 3.5) and high concentrations of sulfate ($SO_4^{2-} = 10^{-2}$ mol/L). Before 2006, the collected water was systematically treated with sodium hydroxide. Since 2007, the water has been received into two in-line limestone basins to increase the pH and precipitate any metals ([Fe] = 10^{-4} mol/L and [Mn] = 10^{-4} mol/L) by subsequent hydrolysis (blue area in Figure 6.2).

Designed to treat a mean discharge of 2.8 L/s, these two basins are connected by an underground drain and can each store approximately 180 m^3 of water. In case of overflow, the water is redirected into a buffer basin of $10,000 \text{ m}^3$ (dark blue in Figure 6.2). As passive treatment with limestone is efficient, additional treatment with sodium hydroxide is only required when the pH is still below 6. Every three years, the limestone is cleaned and the basin refilled to increase its efficiency. The effluents from the three piles are acidic with pH between 3 and 5, but only the effluents from pile 2 and half of pile 1 are treated in these basins. Water from pile 3 exhibits a very low discharge. This water is mixed with the treated water from other piles and rejected into the environment. All of the site effluents are rejected into the river of la

Fouillouse with concentrations below the regulatory limits ($6 \le pH \le 8.5$, $SO_4^{2-} \le 3.6 \times 10^{-3}$ mol/L and Fe $\le 3.6 \times 10^{-6}$ mol/L).

Until now, only pile 2 (orange area in Figure 6.2) has been studied. The stored tailings were characterized mineralogically, chemically, and radiologically. Nos et al. (2013) described the internal structure of pile 2 (see Ouédraogo et al., 2022) based on the historical mining activities and on the log of the borehole drilled in 2011 at the top (red point in Figure 6.2). The surface pile covers an area of 100,000 m² with a maximum height of 37 m. It consists of three tabular layers of tailings covering a fourth layer representing the natural soil, and resting on a granitic substrate. No water inflow was noted during drilling and the flow is predominantly vertical.

6.3. Materials and methods

6.3.1. Data

The data summary is presented in Tableau A6.2 and each data is detailed below.

6.3.1.1. Field measurements

An in-situ rain gauge measured the daily precipitation from January 2014 to October 2022. The average annual precipitation at Le Cellier was 832 mm/year. This includes the amount of snowfall that was converted into precipitation on the same day, i.e. with no melt lag. An outdoor thermometer measured the air temperature from January 2014 to October 2022 on a daily basis. The lowest monthly temperature was measured in January $(-1.2^{\circ}C)$ and the highest in July $(14.3^{\circ}C)$.

Four drains, whose precise locations are unknown, exit from pile 2 at different depths (Q41, Q42, Q49, and Q51). The total pile discharge Qd is the sum of the discharges from the four drains and should correspond to the infiltration of rainwater through the pile. Between January 2014 and March 2021, the drain discharges were measured once a month with a bucket and a stopwatch. Since April 1, 2021, the installation of triangular weirs with OTT sensors (accuracy: $\pm 0.05\%$ FS 0 – 10 m) has enabled a daily discharge monitoring (average of values measured every 6 hours). The average annual discharge of the pile is 454 mm/year. The highest flow comes from Q51 (86%), then Q41 (6% of the total volume), Q49 (5%), and Q42 (3%). These latter three drains function intermittently, drying up from April to October. From November, the discharges increase until March. Figure 6.3 shows the data monitored at the study site until October 31, 2022. At daily scale, only one peak of discharge has been observed on May 11, 2021 with 82 mm of precipitation in one day.

Between January 2014 and June 2020, the electrical conductivity (EC) was measured once a month for Q51 only. Since July 2020, daily measurements were conducted manually for nine months for Q51 only, and then with OTT sensors for all drains (Figure 6.3). Additionally, and only for drain Q51, the pH was measured once a month and sulfate concentration quarterly (Figure A6.9) since January 2014.



Figure 6.3 : Observed monthly one-time and daily discharges, Q_{51} electrical conductivity (EC) and pH, and daily precipitation at Le Cellier site between January 2014 and October 2022.

6.3.1.2. LAI data

The leaf area index (LAI) characterizes the plant canopy. It is defined as the area of green leaf per unit of ground surface area. Several methods exist to evaluate LAI, among which satellite data provide a great opportunity to observe vegetation dynamics. LAI data from the MOD15A2H version 6 Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS, Myneni et al. 2015) were extracted using AppEEARS (<u>https://appeears.earthdatacloud.nasa.gov/</u>) at a weekly time step between January 2014 and October 2022 and aggregated at a monthly time step at the pile scale (pixel size of the product is 500 m by 500 m).

6.3.1.3. Sieve analysis

A sieve analysis was performed in June 2022 on core samples from the borehole drilled in pile 2. 60 samples each 50 cm long were analyzed to obtain the grain diameters at 10% and 60% cumulative weight passing (d_{10} and d_{60}). The coefficient of uniformity C_u is calculated as $C_u = d_{60}/d_{10}$. According to Vukovic and Soro (1992), the porosity can be estimated from the empirical relationship (equation 6.1) as follows:

$$n = 0.255 \times (1 + 0.83^{C_u}) \tag{6.1}$$

Figure A6.10 summarizes the grain-size distribution of the 60 samples. This non-uniform distribution confirms that the pile material is coarse-grained and mainly composed of gravel and cobble (75%) but not without finer material (25% sand), with the following value ranges: $0.02 \le d_{10} \le 0.29$ cm, $0.15 \le d_{60} \le 5.1$ cm, and $8.6 \le C_u \le 156$. The porosity varies between 0.26 and 0.31.

6.3.1.4. Climate data

According to the RCP (Representative Concentration Pathway) scenarios, the temperature in France could increase by 2°C to 5°C, and precipitation by 2 to 6%, by the end of the century (Soubeyroux et al., 2020). However, the southeast of France could be drier in summer with longer droughts, but could receive more precipitation in winter.

Global climate projections come from the Coupled Model Intercomparison Project Phase 5 (CMIP5). The EUROCORDEX regional climate projections used include a historical part from 1975 to 2005 and a prospective part from 2006 to 2100. As part of the DRIAS-2020 project, they have been projected onto the same 8 km resolution grid, and corrected for bias based on the analysis of observation data (SAFRAN) using the ADAMONT method extended to France and implemented by Météo France (Déqué, 2007; Verfaillie et al., 2017). These corrected data are available on the DRIAS platform (http://www.drias-climat.fr/).

To evaluate the temperature and precipitation changes until the end of the century at the site scale, we analyzed 18 daily climate simulations for the period 2006 – 2100 from five regional models forced by three global circulation models (Tableau A6.4) with three RCP scenarios, these latter selected for the study representing alternative possible changes in greenhouse gases. They come from IPCC (2014) and correspond to the new Shared Socioeconomic Pathways (SSP) from CMIP6 (Pagse 6). These latter scenarios now integrate socio-economic changes (gross domestic product, demography, governance, education, and technology) in addition to climate forcing (RCP). SSP1–2.6 and RCP2.6 represent the scenario in line with the 2015 Paris Agreement, SSP2 and RCP4.5 are the most probable scenarios, and SSP5–8.5 and RCP8.5 are the worst scenarios for which CO₂ emissions are the highest.

The climate projection analysis was performed from the mesh that includes the site (center of the mesh at around 2 km from the site, latitude: 44.713402°; longitude: 3.699450°). The estimated temperature variation for the site by the end of the century is below the expected temperature rise in France for the three RCP scenarios. The temperature variation for each simulation and each scenario is detailed in Tableau A6.5. For precipitation, the overall variation of the site is in line with the variation simulated in France but only two out of 18 simulations present a significant trend for the three RCP scenarios (Tableau A6.6). For RCP8.5, precipitation in France is expected to rise by 1.8% with a north-south divide in which precipitation should decrease in the south (Soubeyroux et al., 2020).

Concerning possible changes in LAI with climate change, we selected six models from the top nine from CMIP5 that best simulate LAI for mid-latitudes, based on the study by Mahowald et al. (2016) (see supplementary materials Tableau A6.3). The variation of LAI between 2006-2036 and 2070-2100 was analyzed for the three RCP scenarios for the closest mesh to the site.

Based on this trend analysis, no change is detected for RCP2.6; there is an overall average increase of 7.6% for RCP4.5, and the overall average increase in LAI is 5% for RCP8.5.

6.3.2. Methods

6.3.2.1. Water balance

Equation 6.2 describes the annual water balance at the pile scale with dimension L.T⁻¹:

$$P = AET + R + I = AET + P_{eff},$$
6.2

$$P_{eff} = R + I = Q_d, \tag{6.3}$$

where *P* is the precipitation including snow, *AET* the actual evapotranspiration, *R* the runoff, and *I* the infiltration. The total discharge Q_d measured at the pile outlet should be equal to the effective precipitation (*P_{eff}*) for a well-defined hydrological unit (equation 6.3). *AET* was estimated using the Thornthwaite method (1948). This method is based on the difference between precipitation, potential evapotranspiration (*PET*), and the soil's water capacity (*RU*), fixed at a maximum of 100 mm in this study. The potential evapotranspiration in mm.day⁻¹ was estimated using the Oudin et al. (2005) formula (equation 6.4).

$$if T + 5 > 0^{\circ}C, PET = \frac{Re}{\gamma\rho} \times (\frac{T+5}{100})$$

$$if not, PET = 0$$

$$6.4$$

where *Re* is the extraterrestrial radiation (MJ m⁻²d⁻¹) given by the Julian day and the latitude, γ the latent heat of water vaporization (kJ/kg), ρ the density of water (kg/m³) and *T* the mean daily air temperature (°C). The annual water balance of pile 2 was estimated from daily data recorded on-site aggregated at monthly time step for each hydrological year (November 2014 – October 2022). The calculated *P_{eff}* was then compared to the total drained discharge of the pile for a surface of 100,000 m².

6.3.2.2. Cross-correlations

The response mechanisms of hydrogeological systems can be evaluated using correlation analysis (L'Hermite et al., 2022; Sahu et al., 2009; Tirogo et al., 2016). Cross-correlation compares two time series to explain a link between the input and the output series (equation 6.5). Equation 6.6 defines the cross-correlation function r_{xy} :

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x})(y_{t+k} - \bar{y})$$
6.5

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y} \tag{6.6}$$

where $C_{xy}(k)$ is the length of the cross-correlogram, \bar{x} and \bar{y} are the means of the input x_t and output y_t time series, σ_x and σ_y are the standard deviations of the input and output time series, n is the time series length and k the time lag. When $r_{xy}(k)$ is greater than $2/\sqrt{n}$, the correlation is significant. The response time of the system to the input signal corresponds to the time lag of the maximum value for $r_{xy}(k)$

Here, cross-correlation was used to describe the hydrodynamic and geochemical behavior of the pile. The hydrological response to precipitation was estimated with the daily precipitation and discharge data between April 2021 and October 2022. The geochemical pile response was estimated with cross-correlations between precipitation and pH, precipitation and EC, discharge and pH, discharge and EC for drain Q51 at the daily time step, and precipitation and sulfate concentration at the quarterly time step between January 2014 and December 2021.

6.3.2.3. Numerical modeling with HYDRUS-2D

6.3.2.3.1. Numerical code

Unsaturated flow simulations were performed with HYDRUS-2D finite-element code (Šimůnek et al., 2008b; Šimůnek and van Genuchten, 2008). It solves the Richards equation (Richards, 1931) for water-flow dynamics in unsaturated soils with a mathematical approach in one dimension, or its extension in two or three dimensions. Solving this equation requires knowledge of the water retention curve and the hydraulic conductivity function. For this we used the van Genuchten (1980) model.

The simple porosity model developed by Ouédraogo et al. (2022) reproduces well the monthly discharges but with the time scale changing, the reactivity of this first model is too slow and the model overestimates the low flow period. To improve the reactivity of the model we used the dual-porosity model which divides the total water flow into two domains: the mobile domain (θ_{mo}), restricted to the mobile region or macropores, and the immobile domain (θ_{im}), referring to the water in the immobile region or matrix which does not move (van Genuchten and Wierenga, 1976). The Richards equation is adapted to describe the water flow in the mobile region (preferential flow, equation 6.7) and in the matrix (equation 6.8). A mass balance equation represents moisture dynamics in the matrix with transfer parameters between the two domains:

$$\frac{\partial \theta_{mo}(h_{mo})}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[K(h_{mo}) \left(\frac{\partial h_{mo}}{\partial z} + 1 \right) \right] - S_{mo}(h_{mo}) - \Gamma_w$$
6.7

$$\frac{\partial \theta_{im}(h_{im})}{\partial t} = -S_{im}(h_{im}) + \Gamma_w \tag{6.8}$$

where S_{mo} and S_{im} are sink terms for the mobile and immobile domains (T⁻¹), h_{mo} and h_{im} the pressure heads for each domain (L), and Γ_w is the water transfer rate between the two domains (T⁻¹). Γ_w (equation 6.9) is proportional to the difference in their effective saturations, which provides a more realistic description of the exchange rate (Philip, 1968; Šimůnek et al., 2003).

$$\Gamma_{w} = \omega [S_{e}^{mo} - S_{e}^{im}]$$

$$6.9$$

where ω is a first-order rate coefficient (T⁻¹) and S_e^{mo} and S_e^{im} are effective fluid saturations of the mobile and immobile domains. Their water retention properties (van Genuchten parameters α_{vg} and n_{vg}) are considered similar. The dual-porosity model divides the saturated water content into two domains (θ_{smo} and θ_{sim}) whereby the residual water content in the mobile domain (θ_{rmo}) is equal to zero and the residual water content is only found in the matrix (θ_{rim}).

6.3.2.3.2. Materials properties

The saturated hydraulic conductivity (K_s) was estimated using the Mbonimpa et al. (2002) formula (in cm.s⁻¹, equation 6.10), derived from the Kozeny-Carman model. This equation is valid for a wide spectrum of granular and low-plasticity materials such as crushed rocks or mine tailings.

$$K_{S} = C_{g} \frac{\gamma_{w}}{\mu_{w}} \times \frac{e^{5}}{1+e} \times C_{u}^{\frac{1}{3}} \times d_{10}^{2}$$
6.10

where C_g is a constant parameter for granular materials (= 0.1), γ_w the specific gravity of water (9.807 kN/m³), μ_w the dynamic viscosity of water (10⁻³ Pa.s at 20°C), *e* the void ratio ($e = \frac{n}{1-n}$), C_u the uniformity coefficient, and d_{10} the grain diameter at 10% passing (in cm). The saturated hydraulic conductivity is estimated for the 60 samples of the pile 2 borehole (Figure A6.12). It reveals a high vertical heterogeneity (more than two order of magnitude). To simplify the modelling process, we made the choice to represent the vertical heterogeneity based on four layers based on the historical tabular deposits highlighted by Nos et al. (2013). We defined four layers from the bottom to the top of pile 2 based on the calculated hydraulic conductivities: 0 to 5 m (in khaki), 5 to 15 m (in red) 15 to 29 m (in orange), and 29 to 37 m (in green). The layer hydraulic conductivities are similar for layer 1 and 3 (1×10⁻⁴ m.s⁻¹). The layer 2 is a slightly more heterogeneous (2×10⁻⁴ m.s⁻¹) than layer 1 and 3. The layer 4 is composed of fine materials with a lower *Ks* than the other layers (8.2×10⁻⁵ m.s⁻¹). The hydraulic conductivity is set anisotropic. Figure S4 shows the pictures of core samples for each layer and illustrates that the material is quite similar for the four layers with heterogeneity due to the presence of gravel.

For the water retention curve (WRC), we first used a modified Kovács (1981) model deduced from the particle size analysis (d_{10} , e, and C_u), which we then translated into a van Genuchten model using the RETC code (van Genuchten et al., 1991). The modified Kovács model proposed by Aubertin et al. (2003) uses the following equations:

$$S_r = \frac{\theta}{n} = 1 - \langle 1 - S_a \rangle (1 - S_c)$$

$$6.11$$

with
$$S_c = 1 - \left[\left(\frac{h_{co}}{\psi} \right)^2 + 1 \right]^m \exp \left[-m \left(\frac{h_{co}}{\psi} \right)^2 \right]$$
 6.12

and
$$S_a = a_c \left[1 - \frac{\ln\left(1 + \frac{\psi}{\psi_r}\right)}{\ln\left(1 + \frac{\psi_0}{\psi_r}\right)} \right] \frac{\left(\frac{h_{co}}{\psi_n}\right)^{\frac{2}{3}}}{e^{\frac{1}{3}}\left(\frac{\psi}{\psi_n}\right)^{\frac{1}{6}}}$$

6.13

where S_r is the saturation (equation 6.11), θ the water content and *n* the porosity. S_r is a combination of the capillary saturation S_c (equation 6.12) and the adhesion saturation S_a (equation 6.13). ψ is the suction (cm), *m* a dimensionless coefficient of pore size which is approximated by $m=1/C_u$, a_c is the adhesion constant (= 0.01 if suction is in centimeters), and h_{co} , defined in equation 6.14, is the equivalent capillary height (cm):

$$h_{co} = \frac{0.75}{[1.17\log(C_u) + 1] \times e \times d_{10}'}$$

$$6.14$$

where C_u is the coefficient of uniformity, *e* the void ratio and d_{10} (cm) the 10% passing on the grain-size distribution curve. ψ_n is a normalizing parameter (= 1 cm if suction is in centimeters). The residual suction ψ_r (in centimeters, equation 6.15) is estimated from the capillary height h_{co} :

$$\psi_r = 0.8 \ h_{co}^{1.2} \tag{6.15}$$

The median of d_{10} , e, and C_u is used to estimate the WRC for the four previously defined layers. The van Genuchten hydraulic parameters (α_{vg} and n_{vg}) are then determined with the RETC code for each layer (Tableau 6.1) with a fixed tortuosity parameter l at 0.5. The residual water contents, determined with the mean value of water content for the highest suction (suction ≥ 100 cm), are very low for all four layers (0.006 to 0.01). The saturated water content is around 0.26 for each layer corresponding to the lowest range of porosity (Figure A6.13a). The firstorder rate coefficient (ω) is fixed at 0.04 d⁻¹.

The hydraulic conductivity curves show the capacity of the material to transmit the water depending on the saturation state (h and θ). They are expressed by equation 6.16 from van Genuchten model (1980). It highlights a very steep slope for each layer (Figure A6.13b).

$$K(\theta) = K_s S_e^{\ l} \left[1 - (1 - S_e^{\frac{1}{m_{vg}}})^{m_{vg}} \right]^2$$
6.16

where $S_e = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r}$ is the effective saturation, K_s is the saturated hydraulic conductivity, l is a pore connection coefficient equal to 0.5, θ_r and θ_s are the residual and saturated water content, and $m_{vg} = 1 - \frac{1}{n_{vg}}$ is a dimensionless coefficient link to the van Genuchten shape parameter (n_{vg}) .

6.3.2.3.3. Model configuration and simulations

A two-dimensional model for transient conditions was developed using HYDRUS-2D. The pile geometry derives from a digital elevation model at 1 m from the French IGN



Figure 6.4 : Geometry and boundary conditions of the 4-layer model.

The initial conditions correspond to a water content of 0.02, close to the residual water content. A spin-up period of 2 years was used to homogenize the water content. The lower part of the model is defined with a free-drainage boundary condition (i.e., a zero pressure-head gradient) which is appropriate for field studies of water flow (Figure 6.4). The boundary conditions for the upper part are the atmospheric conditions with precipitation and potential evapotranspiration *PET* (equation 6.17). The *PET* is separated into potential evaporation (*PE*, equation 6.18) and potential transpiration (*PT*, equation 6.19). In HYDRUS, the distributions of *PE* and *PT* are derived from the soil-cover fraction (*SCF*, equation 6.20), which depends on the extinction coefficient (*rEtc* = 0.463) and the *LAI*.

$$PET = PE + PT \tag{6.17}$$

$$PE = PET \times (1 - SCF) \tag{6.18}$$

$$PT = PET \times SCF \tag{6.19}$$

$$SCF = 1 - \exp(-rEtc \times LAI)$$
 6.20

The calculation of the actual transpiration in the model requires the use of the root water uptake module (RWU, Šimůnek and Hopmans 2009). RWU is defined using the S-shaped function of van Genuchten (1987). This function uses only one parameter (*P50*), the pressure head at which the water extraction is reduced by 50%, fixed at -0.2 m. The vertical distribution of the roots is defined as follows:

- the maximum root depth = 5 m,
- the depth where the root intensity is the highest = 2 m,
- the Pz parameter that controls the root density for depths below the maximum potential depth of water extraction = 1 m.

The evaporation depends on the *hCritA* parameter, which is the minimum-allowed pressure head at the surface (equation 6.21):

$$if P_{surface} > hcritA \rightarrow AE = PE$$

$$if P_{surface} \le hcritA \rightarrow 0 < AE < PE$$

$$6.21$$

where AE is the actual evaporation and PE is the potential evaporation. hCritA usually ranges from -150 m to -1000 m except for coarse soil with a steep water-retention curve. After a sensitivity study, we fixed hCritA at -0.2 m.

The transient simulations were conducted at a daily time-step between January 1, 2014 and October 31, 2022 after a 2-year spin-up, using in-situ precipitation and *PET* estimated from insitu temperature. Evaporation and transpiration are separated using the monthly LAI (section 6.3.1.2).

6.3.2.3.4. Model evaluation

The simulated discharge was converted from 2D into 3D by using the ratio between the pile volume (2,101,650 m3) and the surface area of the model (7,484 m2) to integrate the pile length. The simulated discharge was compared to the total observed discharge Qd with a simple visualization of the two hydrographs. They were evaluated with statistical estimators for the hydrological models. Four criteria were selected: Nash-Sutcliffe efficiency (*NSE*, Nash and Sutcliffe 1970), Kling-Gupta efficiency (*KGE*, Gupta et al. 2009), volumetric efficiency (*VE*, Criss and Winston 2008), and the Pearson coefficient of correlation (r):

$$NSE = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n} (O_i - S_i)^2}{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \overline{O})^2},$$
6.22

$$KGE = 1 - \sqrt{(r-1)^2 + (\alpha - 1)^2 + (\beta - 1)^2},$$
6.23

$$VE = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n} |O_i - S_i|}{\sum_{i=1}^{n} O_i},$$
6.24

$$r = \frac{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \bar{O})(S_i - \bar{S})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} (O_i - \bar{O})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^{n} (S_i - \bar{S})^2}},$$
6.25

where S is the simulated discharge, \overline{S} the mean simulated discharge, O the observed discharge, \overline{O} the mean observed discharge and n the length of the time series for equations 6.22, 6.24, and 6.25. For equation 6.23, r is the Pearson coefficient (defined equation 6.25), α the ratio between the standard deviation of the observed data and the standard deviation of the simulated data, and β the ratio between the mean of the observed data and the mean of the simulated data. The criteria were calculated separately with monthly one-time data and daily data, which provide two sets of criteria by simulation. For these criteria, the values must be equal to 1 for a perfect model. NSE and KGE are commonly used to evaluate hydrological models, as they focus on the reproduction of the flow dynamics. VE focuses on the volume of the hydrograph, whether it is during a recession flow or a peak flow.

6.3.2.3.5. Climate change scenarios

Precipitation, temperature through the same evapotranspiration formula, and LAI variations were integrated into the model input data. For LAI, a monthly time series was created from 2006 to 2100 based on the historical values of LAI observed by satellite between 2014 and 2021. This eight-year time series was repeated 12 times (minus one year for the last repetition). For RCP2.6, no variation was taken into account. For RCP4.5 and RCP8.5, we have shown that the last 30 years of the LAI time series are respectively 7.6% and 5% higher than for the period 2006-2036 (section 6.3.1.4). The LAI variation is linearized over 100 years.

For each RCP scenario, six simulations were run using data from the six climate models to estimate the variation in annual discharge at the pile outlet over the century and the impact of changes in the frequency and intensity of extreme events on the water content distribution.

6.3.2.4. Frequency and intensity of extreme events in climate change

The impact of climate change is evaluated on a daily basis, based on changes in the intensity and frequency of extreme events. For intensity, our approach is to compare the amount of rainfall for the same return period (2, 5, 10, 20 and 30 years). Return levels are estimated using the Generalized Extreme Values (GEV, Fisher and Tippett, 1928). The return levels are determined by taking the highest 3-day rainfall event per year and calculated for 3 periods, the historical one (1975-2005), the beginning of the century (2006-2036) and the end of the century (2068-2098) from the 18 climate simulations. For frequency, we looked at the number of events above the 10-year return period level calculated for the historical period (118 mm). The number of events above this threshold is cumulated for 4 periods of 31 years (1975-2005, 2006-2036, 2037-2067, 2068-2098).

6.4. Results

6.4.1. Water balance

Figure A6.14 shows the pile water balance between November 2014 and October 2022. The actual evapotranspiration estimated with the Thornthwaite method is 461 mm/year, representing 55% of precipitation. It results in an effective precipitation (P_{eff}) of 425 mm/year, with a difference of 8% from the observed discharges ($Q_d = 459$ mm/year). The observed discharge is higher than the effective rainfall for the first three hydrologic years. Then, the next three years are wet with effective rainfall higher than observed discharge. The last two years are dry and in 2021-2022, France experienced a severe drought, as evidenced by the low precipitation (480 mm), which was almost entirely evapotranspired.

6.4.2. Hydrological and geochemical dynamics of the pile

Switching daily monitoring allowed us to observe the reaction of the pile to precipitation. We observed a single discharge peak on May 11, 2021, corresponding to 82 mm of rain in one day

and a maximum discharge of 6.9 L/s (maximum recorded discharge). On the same day, a onepoint increase in pH by one point and a significant decrease in electrical conductivity were also observed (-1 mS/cm). During the recession period between June and October 2021, the electrical conductivity increased from 1.7 mS/cm to 2.5 mS/cm due to the low discharge, while the pH remained stable (3.5, Figure A6.15).

Cross-correlations were performed for different time scales depending on the availability of the data (Tableau A6.3). At the daily scale (Figure 6.5a), they confirmed the fast reaction of discharge to precipitation with a quasi-instantaneous reaction of discharge to heavy precipitation for the three drains (≤ 1 day), followed by a slower reaction ten days later. Extreme precipitation contributes to the dilution of the drained water, decreasing significantly the electrical conductivity (Figure 6.5b) and increasing pH (Figure 6.5c) for Q₅₁. These variations are also observed with cross-correlation between daily discharge and EC, (Figure A6.16a) and daily discharge and pH (Figure A6.16b) for Q₅₁, confirming the dilution of pile water during extreme rainy event. The dilution observed during extreme event cannot be generalized for the winter rainfall due to the lack of discharge peak observation during the daily monitoring.

At a monthly time step, Ouédraogo et al. (2022) showed that the discharge is correlated with a time lag of one month. The cross-correlation between precipitation and pH at the monthly time step is slightly significant and confirms an increase in pH during rainy months (Figure A6.16c). The correlation between precipitation and EC confirms a decrease in EC with a one-month lag (Figure A6.16d).

At a quarterly time step, sulfate concentration is uncorrelated with precipitation (Figure A6.16e) but is highly correlated with discharge, (Figure 6.5d) showing an annual pattern. The variation of electrical conductivity correlates strongly with sulfate concentration (r = 0.88) and correlates well with pH (r(daily) = 0.74 and (r(monthly) = 0.65). The correlation between pH and sulfate concentration is moderate (r = 0.54).



Figure 6.5 : Cross-correlations at a daily time lag and truncation at 36 days between (a) precipitation and discharges for the period March 30, 2021 to May 31, 2022, (b) precipitation and electrical conductivity, (c) precipitation and the pH for the period July 1, 2020 to May 31, 2022. (d) Cross-correlation at a 3-month time lag and truncation at 12 months between monthly one-time discharge and the concentration of SO_4^{2-} for the period January 2014 to March 2021. The dashed lines represent the 95 % confidence level.

6.4.3. Historical simulated discharge and water content distribution during extreme events

The *a priori* model with the parameters presented in Tableau 6.1 correctly represents the monthly one-time discharges (grey in Figure A6.17b with NSE = 0.61 and KGE = 0.57) but poorly represents the observed daily discharges (grey in Figure A6.17a with NSE = 0.04 and KGE = 0.55).

Calibration of the model was performed with respect to the monthly one-time and daily observed discharges between January 2018 and May 2022 with the automatic parameters estimation procedure in HYDRUS for three parameters (α_{vg} , n_{vg} , and Ks). The residual and saturated water contents of the immobile and mobile domains and the tortuosity parameter l

Results

were not changed. For the calibration period, *NSE* and *KGE* for the daily data are 0.48 and 0.68, and for the monthly one-time data 0.71 and 0.70. For the validation period (January 2014 to December 2017), *NSE* is 0.73 and *KGE* is 0.64 for monthly one-time data. As shown in black in Figure A6.17a, the calibrated model improves the simulated discharges on a daily scale and was considered of good quality for both time scales. The calibration has less impact on the criteria for the monthly one-time data (Figure A6.17b). Tableau 6.1 presents the calibrated hydraulic parameters. The difference in mean inter-annual discharges between observation ($Q_d = 459 \text{ mm/year}$) and simulation ($Q_{sim} = 525 \text{ mm/year}$) is +14.4%. No direct runoff is simulated by the model.

Parameters	La	yer 1	Layer 2		Layer 3		Layer 4	
	AP	С	AP	С	AP	C	AP	С
θr_im [m ³ .m ⁻³]	0.006	0.006	0.006	0.006	0.006	0.006	0.01	0.01
θr_mo [m ³ .m ⁻³]	0	0	0	0	0	0	0	0
$\theta_{s_{im}} [m^3.m^{-3}]$	0.224	0.224	0.218	0.218	0.217	0.217	0.226	0.226
θ _{s_mo} [m ³ .m ⁻³]	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
α _{vg} [m ⁻¹]	25.9	30	49.6	40	34.4	31.3	12.4	13.4
n _{vg} [-]	3.4	3.6	3.3	3.6	3.2	3.6	3.6	3.5
Ks [m.s ⁻¹]	1x10 ⁻⁴	1.8x10 ⁻⁴	2x10 ⁻⁴	8.1x10 ⁻⁴	1x10 ⁻⁴	4x10 ⁻⁴	8.2x10 ⁻⁵	1.4x10 ⁻⁴
l [-]	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
ω [d ⁻¹]	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04

Tableau 6.1 : A priori and calibrated hydraulic parameters for the three layers.

The observed and simulated discharges between 2014 and 2022 are represented in Figure 6.6. Overall the model well simulates the seasonality and the amplitude of the discharge for both high and low flow periods, although it is less successful in representing two low flow periods (August to December 2015 and August to December 2020) and the highest discharge measured

once a month (winter period between 2014 and 2017). Figure 6.6 illustrates the very good agreement between the daily simulated discharge and daily observations from 2021. Thanks to the dual-porosity model and carefully adjusting the transfer rate (ω), the model well reproduces the rainy event on May 11, 2021. The discharge increase is simulated on the same day but the peak is simulated 1 day after the observed one. However, in terms of intensity, the model underestimates the peak by 28% (simulation = 5 L/s and observation = 6.9 L/s). After the peak, the recession period is well simulated; this period was due to low precipitation and high evapotranspiration, itself dominated by transpiration. During high flow periods and extreme winter events (2018 and 2020), the model simulates discharges up to twice as high as that simulated in May 2021 (winter 2018). These flows could not be observed due to the measurements being taken only once per month.



Figure 6.6 : Simulated and observed discharges between January 2014 and October 2022 with the daily precipitation at Le Cellier. The crosses represent monthly one-time discharges and the solid green line represents daily observed discharges.

The simulated water content (sum of the two domains) in the pile is very low, with a maximum of 4.5% at the bottom side of the pile after precipitation. Figure 6.7 shows the simulated water content distribution over three consecutive days, including a day of intense rain (82 mm on May 11, 2021). On the first day (May 10), the water content in layers 1 and 3 is higher than in layer 2 due to the difference in the water retention curves (Figure S5a). Layer 4 is the wettest (3%). During the above-mentioned major rainy event, layer 1 again has a higher water content (up to

3.3%) than layer 2 (2.2%). For all layers, the sides of the pile are wetter than the center. In the following days, the water content decreases, and a wet area extends slightly in the center of the pile.



Figure 6.7 : Simulated water content distribution for three consecutive days (May 10-12, 2021) with 82 mm of rain in one day on May 11.

6.4.4. Hydrological response of the pile to climate change

Figure 6.8a represents the mean annual discharges for three periods from the six simulations performed for each RCP scenario. The inter-annual variability of the annual discharge is considerable, ranging from around 348 mm/year (5th percentile) to around 755 mm/year (95th percentile). For RCP2.6, the simulations show a median annual discharge increase of 4.4% between the beginning (535 mm/year) and the end of the century (559 mm/year). For RCP4.5, there is a decrease during the century of 1.9% (from 536 mm/year to 526 mm/year). These two RCP scenarios predict little discharge variation, in contrast to RCP8.5, for which median annual discharges are expected to decrease by 12% at the end of the century (from 537 mm/year to 473 mm/year). For the period 2068-2098, RCP2.6 is the wettest scenario with a median inter-annual discharge of 559 mm/year, and RCP8.5 is the driest with 473 mm/year.

Figure 6.8b represents the mean actual annual evapotranspirations for three periods from the six simulations performed for each RCP scenario. The simulated AET increases from 2% for RCP2.6 to 16.5% for RCP8.5 between the beginning and the end of the century. The interannual variability is lower than for the discharges, with a variability of \pm 70 mm (difference between the 5th and 95th percentile) for each period at the site scale. For the period 2006-2036, the actual evapotranspiration is similar for each RCP scenario. Then for periods 2037-2067 and 2068-2098, RCP2.6 has less AET, and the highest AET is for RCP8.5. At the end of the century, the actual evapotranspiration for RCP8.5 is 16.5% higher than for RCP2.6.

For RCP8.5, the change in the annual discharge is mainly due to an increase in actual evapotranspiration, while the decrease in the precipitation is only 1.2%; however a strong pattern is observed for monthly variations of precipitation and discharges (Figure A6.19). The six simulations predict an increase in precipitation during the wet period at Le Cellier (November to March) and a decrease between April and August. For the discharges, there is a decrease between May and January, but for February, March, and April, the simulations show an increase. The temperature and the actual evapotranspiration increase for all months (Figure A6.19).



Figure 6.8 : Boxplots showing the 5-, 25-, 50-, 75-, and 95-quantiles for (a) the mean annual discharge and (b) the mean annual actual evapotranspiration for three periods of 31 years for the six simulations and for each RCP scenario. Each boxplot is calculated with 186 data.

The frequency and intensity of extreme events should change over the century. The frequency of three-day cumulative events over the decennial return period (118 mm over the period 1975–2005) was analyzed by counting the number of events over this threshold. An increase in the

number of events was observed between the historical period (3.2) and the beginning of the century (3.9), and should almost double by the end of the century (5.7). A 50% increase in the number of events was calculated for the three RCP scenarios between the beginning and the end of the century (Figure A6.20). Regarding the intensity, the return level for several given return periods (2, 5, 10, 20, and 30 years) was compared between the historical period (1975–2005) and two future periods (2006–2036 and 2068–2098), for the three RCP scenarios. The intensity of extreme events should increase by 12.5% for RCP2.6, 8.9% for RCP4.5, and 8.2% for RCP8.5 (Figure A6.21). Therefore, extreme events should be more intense and more frequent by the end of the century compared to the historical period and the period 2006-2036.

From the discharge simulation, we analyzed for which event the volume of water is over 10,000 m^3 in 11 days. This corresponds to the volume that the buffer basin could store if it was empty. We chose to work over a 11-day period to observe all types of extreme events and to allow the discharge return to its value before the rain starts again. No events were detected for the RCP2.6 scenario. For RCP4.5, four events were found, for the six simulations with no more than two events per simulation. We found two events for RCP8.5. The choice was made to analyze the events for RCP4.5, being wetter than RCP8.5 and the most likely scenario in the future. These events are detailed in Tableau A6.7 and plotted in Figure A6.22. Three out of four events are simulated for September and October that could correspond to extreme rainy events observed in the region (Cevenol events). The other is in January with six consecutive rainy days of more than 40 mm per day. The minimum return period is 225 years for these four extreme events. Moreover, two other extreme events were also found with a return period over than 200 years that could only generate 4,407 m³ and 3,780 m³ in 11 days. However, the volume of water for the six analyzed events could be slightly underestimated because the model simulated the discharge peak of May 11, 2021, 28% lower than observed. The generated volumes could be therefore higher than presented here.

6.5. Discussion

6.5.1. Hydrogeological and geochemical pile functioning

Despite slopes between 15 and 20%, no direct runoff is observed or simulated by the model. Compared to the calculated effective precipitation, the observed discharges confirmed that all the effective precipitation infiltrates the pile and is collected by the drain system under the pile before its treatment and its release into the environment.

Water flow occurs as a rapid preferential flow during major rainfall events. Our understanding is still limited by the fact that we observed only one intense event, which does not help us to understand the triggering of these rapid circulations. The rapid reaction of the discharge to heavy precipitation (during one day), which can be simulated with a dual-porosity model, is supported by the data from the new daily monitoring as illustrated by the cross-correlation. The material size and prior acid leaching have resulted in preferential pathways where the water flows quickly. Even during major rainy events, the simulated water content in the pile remains very low (Fala et al., 2005; Hajizadeh Namaghi et al., 2015), which indicates that the pile is

largely unsaturated in all conditions. The simulated water content is nonetheless higher at the bottom of the pile due to the finer grain size in these layers, which retain more water. Even more so if we consider the alternation with finer layers, which, however, should not be continuous within the pile otherwise there would be no rapid downward infiltration.

As shown by Kalisman et al. (2022), preferential and rapid flow could generate more solute mass compared to continuous flow. In our case, the volume of water generated during rainy events creates a dilution with no first flush detected (e.g., Davies et al., 2011; Nordstrom, 2009). The pH rises from 3.5 to 4.5 (the concentration of hydronium decreases by a factor of 10) and EC decreases. The sulfate concentration varies between 0.8 g/L and 2.5 g/L between 2014 and 2021 with its annual cycle correlated to the discharge. Contrario during low flow and/or low precipitation, flow is slow and water becomes more concentrated (EC increases during low flow). Since 2014, the acid concentration released into drain Q₅₁ has decreased while sulfate concentration (Pearson correlation coefficient r = 0.88). By leaving the pile accessible to rainwater, the effluent will become slowly less acidic in the future although only a reactive transport modeling can define the duration of attenuation.

6.5.2. Contribution of the numerical model

The pile was divided into 4 layers based on the deposition history, which simplifies the real heterogeneity. The WRC was determined using the modified Kovács (MK) model developed by Aubertin et al. (2003) from sieve analysis (Mbonimpa et al., 2006). For coarse-grained soils, Maqsoud et al. (2017) concluded that the MK model performed well for estimating the WRC, justifying the use of this model in light of the parameters needed in a first approach, before refining these parameters with an inverse calibration.

As previously estimated by Ouédraogo et al. (2022), we calculated a residual water content close to zero. For the saturated water content of the whole pile, we obtained lower total values ($\theta_{s_{1}total} \sim 0.26$) than in the previous study ($\theta_{s_{1}total} \sim 0.37$). This difference can be explained by the extrapolation of d_{60} and the unique sample used by Ouédraogo et al. (2022). Concerning the distribution of the saturated hydraulic conductivity, the formula proposed by Mbonimpa et al. (2002) that we used is the only one appropriate for coarse-grained soils and crushed materials such as mine tailings. A large variability in hydraulic conductivity is estimated on a single vertical but it probably expend laterally, from 4.3×10^{-5} m.s⁻¹ to 9.5×10^{-3} m.s⁻¹. The hydraulic conductivity used by Ouédraogo et al. (2022) in their homogeneous model is at the upper end of the range (8.7×10^{-4} m.s⁻¹), corresponding to the center of the pile where the sample was taken. A discretization in four layers is not required to create a good simulation of the discharge pile, as shown by Ouédraogo et al. (2022).

As shown by Figure S15, the initial model (SP in orange) does not simulate well the observed peak (May 11, 2021) which was simulated 3 weeks later than the observed one. The dual-porosity model helps to reproduce the fast reaction due to preferential flows at a daily scale (Figure S15 in blue). This approach is efficient in simulating a fast reaction of discharge and/or reactive transport (Haws et al., 2005) and for our study, a more complex model (dual-

permeability) is not required. Our calibration using three free parameters for each layer (α_{vg} , n_{vg} , and Ks) improved the model performance. Numerical models are sensitive to temporal resolution and the daily scale appears to be the best modeling scale for small models (Whitman and Breitmeyer, 2019). In our case, the calibration of the model was performed on three years of monthly one-time discharges (2018-2021, split into two equal parts) and 18 months of daily discharges (April 2021 to May 2022). Using all the monthly one-time discharges (2014–2021), and without considering the daily discharge, the model's performance deteriorates.

SP and DP models (Figure A6.23) are bad to reproduce the low flow period. The only way was to integrate the RWU module which improve the simulation (Figure A6.23, SP+ RWU and DP+ RWU). The use of dual-porosity and RWU module was necessary to simulate well the discharge with the final calibrated model (DP+RWU). The RWU module takes account of the summer transpiration of the vegetation over the pile (De Silva et al., 2008). The model overestimates the discharge for two periods (August–December 2015 and August–December 2020). These differences can be explained by heavy storms during the summer. During these periods, there were several days with important rainfall of around 60 mm by day. Yet the dual-porosity model developed here was only calibrated on a specific peak of discharge (May 11, 2021), a rainy day followed by six days without rainfall or a period of low rainfall (< 30 mm.d⁻¹) and could be not adapted for events with multiple rainy days in several weeks.

Without any observation of water content, the calibration is based on the capacity of the model to represent discharges. The water content simulated by HYDRUS remains very low (< 5 %), even during heavy rains and in finer-grained layers, as previously simulated by Ouédraogo et al. (2022). These predictions should however be taken with caution. Some thin layers of fine materials, not represented in the model, could generate locally higher water content even in layer 2 (Figure A6.12). Haws et al. (2005) failed to reproduce both the flow and transport processes and demonstrated that a good hydrograph fit may not necessarily predict solute fluxes. Bauser et al. (2022) confirmed this limitation and concluded that internal soil dynamics are not accurately represented even with a model incorporating soil heterogeneity, if it is calibrated only on flow. The predicted water content may be unreliable even if the simulated values agree with the low water-holding capacity of the coarse-grained soils (Vrugt et al., 2001). Additional observations, such as water content, tracer data, mineralogical and geophysical data are required to accurately represent the internal functioning of the soil, and especially to model geochemical reactions (Ballini et al., 2020; Seigneur et al., 2021).

6.5.3. Perspectives associated with climate change

The climate change simulations were carried out with DRIAS-2020 daily precipitation and temperature projections. For the precipitation, the overall variation between the beginning and the end of the century is small (+5.2% for RCP2.6, +1.6% for RCP4.5, and -1.2% for RCP8.5). The mean annual temperature is expected to be higher for all the RCP scenarios with an increase between +0.3°C and +3.2°C. Terray and Boé (2013) also found that summers could be drier with a rise in temperature and a decrease in precipitation in the South of France.

With regard to actual evapotranspiration, an increase is expected due to the increase in temperature, especially as the calculation of potential evapotranspiration using the Thornthwaite (1948) formula is based on temperature only. Because of this limitation, Lemaitre-Basset et al. (2022b) estimated that the uncertainties concerning the predicted potential evapotranspiration therefore originate from the climate models (GCM and RCM) themselves. The transpiration should also increase with the increase of LAI at the end of the century according to CMIP5 projections. However, the Thornthwaite (1948) formula does not consider the effect of an increase of atmospheric CO₂ on stomatal resistance (Allen Jr., 1990), which reduces transpiration, resulting in higher discharges (Lemaitre-Basset et al., 2022a; Vremec et al., 2023). These authors recommend that elevated CO₂ concentrations be included in future watershed-scale hydrological studies in order to integrate all forcing factors into the evapotranspiration calculation, for example by using a revised formula of the Penman–Monteith equation (Milly and Dunne, 2016; Zhang et al., 2023). For RCP8.5, the simulated decrease in discharge at the end of the century could be reduced by taking CO₂ concentrations

Indeed, and as expected, the decrease is higher for RCP8.5 (-10%), whereas the mean annual discharges should increase for RCP2.6 (+6.9%) and decrease for RCP4.5 (-1.5%). For RCP2.6, this variation is probably linked to the 5.2% increase in precipitation. For RCP4.5, precipitation remains stable (+1.6%) but the temperature rise ($+1.4^{\circ}$ C) leads to a rise in evapotranspiration. For RCP8.5, the small decrease (-1.2%) in precipitation cannot alone explain the discharge decrease, unlike the significant increase in temperature ($+3.2^{\circ}$ C) which leads to an increase of 16.6% of actual evapotranspiration. These simulations provide a general trend for the future changes in discharges, which could be attenuated or amplified by future changes in precipitation, temperature, LAI, or stomatal resistance.

Extreme events in France due to climate change are expected to increase (Ouzeau et al., 2016; Tramblay and Somot, 2018). Ribes et al. (2019) predicted an increase of intensity by 22% in extreme daily precipitation in the French Mediterranean. At the Le Cellier site, the number of events over the historical 10-year return period could double by the end of the century. The intensity could also increase by at least 8.2% for RCP8.5 up to 12.5% for RCP2.6. This increase in daily precipitation could generate significant volumes of water in a short period of time that need to be treated and managed.

6.5.4. Long-term and sustainable water management of the site

At the site scale, pile 2 effluents represent the largest part of the total treated water volume (maximum 90%). Pile 3 effluents are directly rejected into the environment since 2001 in agreement with concentrations below the regulation limits. Pile 1 can be cut into two parts (North/South) depending on the slope (Figure 6.2). The water in the North part is mixed with the treated water and rejected into the environment. The water in the South part is drained to the limestone ponds representing between 2 and 10% of pile 2 flow. All the water is rejected into the receiving river with concentrations below the regulatory limits.
At the annual scale, the water management of the site should remain sustainable with a discharge variation between +4.4% for RCP2.6 and -12% for RCP8.5 between the beginning and the end of the century. The limestone basins for water treatment, and the buffer basin, are well-sized for today and for the future even though the quantities released may vary from month to month.

At the daily scale, extreme events could lead to rapid discharge flows and large volumes of water reaching the limestone basins. These basins were designed for a mean flow rate of 2.8 L.s⁻ ¹. To safely manage extreme events, an overflow system was designed to redirect the excess water to a buffer basin that can store a maximum of 10,000 m³, then redirect the water to the sodium hydroxide treatment basin. In total, for the six simulations, four extreme events each generating more than 10,000 m³ in 11 days were simulated for the RCP4.5 scenario over the period 2006-2100. These extreme events could be caused by three-day precipitation events with a minimum return period of 225 years estimated with the precipitation projection between 2006 and 2098 for each simulation. Specific management is required for these events that could generate an overflow and release low-concentration water and pH higher than 3.5 directly into the environment (EC decreases by 1 mS/cm and pH rises by 1 for 82 mm of precipitation). Mayes et al. (2021) concluded that the impact of an extreme event (200-year return period) appears to be unexpectedly subtle regarding instream contaminant transport. Our study shows that for extreme events with a return period of 200 years estimated with the precipitation projections for each simulation between 2006 and 2098 (return levels for each simulation are in Table S7) or lower, the facilities are well-designed and the water management should be sustainable.

6.6. Conclusion

The static leaching tailings pile at the former Le Cellier mine, France, is an interesting target for a study to simulate its hydrological functioning on a daily scale. This paper also explores the impact of climate change on annual discharge and extreme events. The results of this real-world case study provide relevant information to anticipate the impact of climate change and to adapt current facilities and/or water management, if necessary.

Based on basic grain-size properties, the *a priori* hydraulic properties of four layers were determined using the modified Kovács (1981) model. After further calibration, the model was confirmed to be effective in simulating the monthly one-time historical observed discharges as well as the new daily discharge observations. In particular, the model integrates both the vegetation transpiration, which helps to reproduce the discharge during low flow periods, and the dual-porosity approach, for the simulation of the episodes of rapid discharge. The pile's simulated bulk water content remains very low throughout the simulation, even during extreme events.

The climate change impact is estimated with the calibrated model integrating variations in precipitation, temperature via PET, and vegetation (LAI). The simulation of the discharges between 2006-2036 and 2068-2098 showed that the mean annual discharges could increase by 4.4% for RCP2.6 while they could decrease by 1.9% for RCP4.5 and by 12% for RCP8.5

leading to a likely higher concentration of effluent in the latter scenario. At the annual scale, the current water management remains valid for the future.

The increase in intensity and frequency of extreme events could generate large volumes of water in a short period of time. The decrease in electrical conductivity recorded during an observed extreme event demonstrated that the large volume of infiltrating water dilutes the initial flow. The extreme event analysis exhibited that for a rainfall extreme event below the 200-year return period, the facilities and the water management are sustainable for the future.

The knowledge gained from this study will help to develop sustainable management of surface tailings storage pile sites. Such a methodology can be applied on different tailings piles as long as their discharge data are available. Additional geophysical investigations could also provide a better description of the internal structure of the pile, thus guiding the choice of an appropriate discretization in heterogeneous layers, in our case with alternating thin layers of fine and coarse material (Arcila et al., 2021; Maghsoudy et al., 2019). A daily time step is the most appropriate temporal resolution to simulate discharges, which also requires long-term monitoring of the sites, which can be restrictive and expensive. This hydrological study is a necessary first step before developing a geochemical model. Additional observations on water content and tracer data, such as those provided by a dye tracing experiment, are required to validate the transport processes of the pile. These new observations could provide a better description of the pile heterogeneity in the three dimensions.

Synthèse

Ce chapitre précise le fonctionnement hydrologique d'un terril de résidus miniers du site du Cellier.

Fonctionnement du terril

- Le terril est composé de graviers et de sables hétérogènes.
- Le terril fonctionne en conditions non saturées.
- Les teneurs en eau simulées par le modèle sont très faibles même lors d'évènements extrêmes (teneur en eau maximum simulée = 5 %)
- Les débits, la conductivité et le pH à l'exutoire du terril réagissent rapidement aux précipitations (1 journée).
- Lors d'évènements pluvieux, le pH des effluents augmente et la conductivité électrique et la concentration en sulfate diminuent montrant ainsi une dilution.

Modélisation

- Les propriétés hydrauliques du terril sont définies à partir de la distribution granulométrique des sables et graviers sur une verticale au centre du terril.
- Le modèle est développé avec une double porosité afin de simuler les écoulements rapides.
- L'intégration de la prise d'eau racinaire dans le modèle permet de mieux simuler les périodes de basses eaux.
- Avec les hypothèses formulées (profondeur des racines, hétérogénéité du terril, propriétés hydrauliques des matériaux, valeur du LAI), le modèle réussit à simuler correctement les débits.

Changement climatique

- Les débits devraient diminuer pour le scénario RCP8.5 de 13 % et augmenter de 7 % pour le scénario RCP2.6 entre le début et la fin du siècle.
- Les aménagements du site, pour le traitement et la gestion des eaux, sont bien dimensionnés pour des évènements pluvieux ayant une période de retour inférieure à 200 ans.
- Cette approche nous permet de confirmer que la gestion environnementale actuelle du site reste valable jusqu'à la fin du siècle à l'échelle annuelle et journalière.

Annexes

Supplementary material

Type of data	Time step	Source	Availability
Rainfall	Daily	In-situ	01/01/2014 - 31/10/2022
Temperature	Daily	In-situ	01/01/2014 - 31/10/2022
Discharge	Once a month	In-situ	01/01/2014 - 29/03/2021
	Daily	In-situ	30/03/2021 - 31/10/2022
Climate change	Daily	DRIAS	01/01/2006 - 31/12/2100
projection			
LAI	Weekly	MODIS	01/01/2014 - 31/10/2022
Electrical	Once a month	In-situ	01/01/2014 - 30/06/2020
conductivity	Daily	In-situ	01/07/2020 - 31/10/2022
pH	Once a month	In-situ	01/01/2014 - 30/06/2020
	Daily	In-situ	01/07/2020 - 31/12/2021
Sulfate	Quarterly	In-situ	01/01/2014 - 01/03/2021

Tableau A6.2 : Summary of the data used in the study.



Figure A6.9 : Quarterly concentration of sulfate between January 2014 and March 2021 for the drain Q_{51} with the total precipitation by month.



Figure A6.10 : Envelopes of the grain-size distribution of the 60 samples taken in pile 2. The grey lines represent the minimum and maximum grain-size distributions, and the black line is the mean grain-size distribution.



Figure A6.11 : Illustration of samples for the different layers at (a) layer 1 between 32.5 and 33 m, (b) layer 2 between 22.5-23 m, (c) layer 3 between 12-12.5 m, and (d) layer 4 between 3.5-4 m.

Model	Variation of mean annual LAI between 2006-2036 and 2070- 2100 (%) and trend (+: trend, -: no trend)			
	RCP2.6	RCP4.5	RCP8.5	
BCC-CSM1-1-M	+0.9 (-)	+6.9 (+)	+14 (+)	
CanESM2	-11.3 (-)	+17.2 (+)	+2.4 (-)	
HadGEM2-ES	+0.2 (-)	+11.9 (+)	+9.7 (+)	
IPSL-CM5A-LR	+0.1(-)	+1 (-)	+1.2 (+)	
IPSL-CM5A-MR	-2.1 (-)	+1.6 (-)	-6.4 (+)	
MPI-ESM-LR	+1.1 (-)	+6.9 (+)	+9 (+)	
Mean	-1.85	+7.6	+5	
Median	+0.15	+6.9	+5.7	

Tableau A6.3 : Models used to estimate LAI variation at the study grid point.

Tableau A6.4 : Models used for climate change analysis.

Simulation	Institution	GCM	RCM
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM-	CNRM	CNRM-CM5-LR	ALADIN63
ALADIN63			
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI-	KNMI	CNRM-CM5-LR	RACMO22E
RACMO22E			
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E	KNMI	EC-EARTH	RACMO22E
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	SMHI	EC-EARTH	RCA4
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-	CLMcom	MPI-ESM	CCLM4-8-17
8-17			
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-	CSC	MPI-ESM	REMO2009
REMO2009			

Tableau A6.5 : Variation of the annual temperature between 2006-2036 and 2068-2098 (°C) and the presence of trend (+: trend, -: no trend) for each simulation and each RCP scenario at the study grid point.

Simulation	RCP2.6	RCP4.5	RCP8.5
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM-ALADIN63	0.4 (+)	1.6 (+)	3.5 (+)
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI-RACMO22E	0.2 (-)	1.1 (+)	3.1 (+)
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E	0.2 (-)	1.5 (+)	3.3 (+)
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	0.3 (-)	1.5 (+)	3.7 (+)
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-8-17	0.4 (+)	1.3 (+)	2.9 (+)
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-REMO2009	0.4 (+)	1.2 (+)	2.9 (+)
Mean	+0.3	+1.4	+3.2

Tableau A6.6 : Variation of the mean annual rainfall between 2006-2036 and 2068-2098 (%) and the presence of trend (+: trend, -: no trend) for each simulation and each RCP scenario at the study grid point.

Simulation	RCP2.6	RCP4.5	RCP8.5
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM-ALADIN63	1.7 (-)	7.4 (-)	-1.3 (-)
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI-RACMO22E	6.2 (-)	1.3 (-)	4.3 (-)
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E	9.9 (+)	1.9 (-)	2.1 (-)
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	6.8 (-)	4.6 (-)	-7.2 (-)
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-8-17	2.9 (-)	-5.7 (-)	-8.3 (+)
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-REMO2009	3.4 (-)	-0.3 (-)	3.4 (-)
Mean	+5.2	+1.6	-1.2



Figure A6.12 : Saturated hydraulic conductivity of all 60 samples



Figure A6.13 : (a) Water retention curve and (b) unsaturated hydraulic conductivity curve for the four layers, estimated with the median parameters.



Figure A6.14 : Annual water balance for the pile calculated by hydrological year between November 2014 and October 2022, also showing the inter-annual average with error bars representing the standard deviations.



Figure A6.15 : Daily discharge, electrical conductivity, pH, and precipitation between 30 March 2021 and 30 October 2022 for the drain Q_{51} . The monitoring has been interrupted due to a problem with the sensor between June 2022 and mid-October 2022. pH monitoring was not available in 2022.



Figure A6.16 : Cross-correlations at a daily time lag and truncation at 90 days between (a) discharge and electrical conductivity and (b) discharge and pH for the period 30 March 2021 to 31 May 2022 for the drain Q_{51} . Cross-correlations at a monthly time lag and truncation at 12 months between (c) rainfall and electrical conductivity and (d) rainfall and pH for the period January 2014 to December 2021. (e) Cross-correlation at a 3-months time lag and truncation at 12 months between precipitation and the concentration of SO_4^{2-} for the period January 2014 to March 2021. The dashed lines represent the 95 % confidence level.



Figure A6.17 : Performance criteria for the a priori and calibrated models calculated on daily and monthly one-time discharges.



Figure A6.18 : Monthly total of simulated evaporation and transpiration between 2014 and October 2022.



Figure A6.19 : Monthly variations for temperature in the first line, rainfall in the second line, actual evapotranspiration in the third line, and discharge in the fourth line between the period 2068-2098 and the period 2006-2036 for the three RCP scenarios. For each month, the difference is estimated for each regional climate simulation.



Figure A6.20 : Mean number of events over the threshold (118 mm, decennial return period) over the six simulated historical periods and for the six simulations for each RCP scenario and three successive 30-year periods over the next century with the maximum, minimum, and median.



Figure A6.21 : Estimated return levels for the three RCP scenarios in 2006–2036 and 2068–2098 and the historical period (1975–2005). These return levels are based on the maximum by year of the 3-day cumulative precipitation for the periods 1975-2005, 2006-2036, and 2068-2098 respectively for each RCP scenario. Return levels are estimated for 2, 5, 10, 20, and 30 years.

Simulation	Event	Volume (m3)	Sum of rainfall over 3 days (mm)	Rainfall return period (years)	
CNRM-CERFACS-CNRM-	1	15 200	348	500	
CM5_CNRM-ALADIN63	1	13,200	570	500	
CNRM-CERFACS-CNRM-	0				
CM5_KNMI-RACMO22E	0				
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-	0				
RACMO22E	0				
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	0				
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-	1	15 100	201	350	
CCLM4-8-17	1	13,190	291	550	
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC-	2	14,100	355	225	
REMO2009	2	11,480	356	225	

Tableau A6.7 : Number of events that generate more than $10,000 \text{ m}^3$ in 11 days. For each event, the sum of the rainfall over 3 days and the extreme event return period are detailed.



Figure A6.22 : Simulated discharge and daily precipitation for each event that creates a discharge volume over $10,000 \text{ m}^3$.

Tableau A6.8 : Estimated return levels of the precipitation for 3 days for the 200-year return period for each simulation and the lower and upper confidence intervals. These return levels are based on the maximum by year of the 3-day cumulative precipitation for the period 2006-2100 for RCP4.5.

Simulation	95% lower confidence interval (mm/3days)	Return level (mm/3days)	95% upper confidence interval (mm/3days)
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_CNRM- ALADIN63	180	288	395
CNRM-CERFACS-CNRM-CM5_KNMI- RACMO22E	156	221	286
ICHEC-EC-EARTH_KNMI-RACMO22E	140	209	277
ICHEC-EC-EARTH_SMHI-RCA4	134	167	200
MPI-M-MPI-ESM-LR_CLMcom-CCLM4-8- 17	176	264	352
MPI-M-MPI-ESM-LR_MPI-CSC- REMO2009	188	342	497



Figure A6.23 : Simulated and observed discharges between January 2014 and October 2022 with different models (SP: simple porosity, SP+WRU: simple porosity and root water uptake (WRU), DP: dual-porosity, DP+WRU: dual porosity and root water uptake).

Complément d'information sur l'acquisition complémentaire

Le site du Cellier est suivi par ORANO AMF depuis sa fermeture en 1990. Le suivi comporte des données hydrologiques, météorologiques et physico-chimiques à différents pas de temps (journalier pour les données météorologiques et mensuel pour les autres). Le suivi des débits est réalisé avec un seau et un chronomètre. Pour étudier le site et avoir une idée du fonctionnement au pas de temps journalier du terril, tous les exutoires du terril ont été instrumentés à partir du 1^{er} avril 2021 pour suivre le débit et la conductivité électrique.

Un déversoir à seuil triangulaire muni d'une sonde de pression et de conductivité électrique OTT (précision $\pm 0,05$ %, échelle totale 0 - 10 m, Figure 4.7) ont été installés sur 4 points d'arrivée d'eau par des drains. Ces instruments permettent d'avoir un suivi journalier par conversion hauteur d'eau/débit, des débits sortant du terril (Q₄₁, Q₄₂, Q₄₉ et Q₅₁). Pour les trois drains, Q₄₁, Q₄₂ et Q₄₉, les débits sont intermittents et l'eau ne s'écoule que lors de la période hivernale de novembre à mars alors que le drain Q₅₁ qui est le principal exutoire du terril s'écoule toute l'année. Le site du Cellier étant à 1100 m d'altitude à l'est du Massif central, il peut arriver que l'eau gèle dans le déversoir. Dans ce cas-là, la sonde enregistre des valeurs aberrantes de hauteurs d'eau qu'il faut supprimer de la chronique. Ces dispositifs de mesure ont été dimensionnés et installés avec Damien Regnier (SDR-IE, <u>https://sdr-ie.fr/</u>).



(a)

(b)

Figure A6.24 : Seuil triangulaire et sonde de pression au point (a) Q_{51} et (b) Q_{41} , Q_{42} et Q_{49} .

Chapitre 7 Conclusion et perspectives

7.1. Synthèse sur le fonctionnement des sites de stockage de résidus miniers

Entre 1950 et 2000, l'exploitation de l'uranium en France a généré près de 50 millions de tonnes de résidus de traitement. Ces derniers sont stockés au sein de sites spécifiques de type installations classées pour l'environnement (ICPE) et font l'objet d'une surveillance environnementale dédiée. Ce sont généralement des anciens sites miniers où les stockages ont bénéficié des installations et contraintes historiques, topographiques, géologiques, météorologiques, hydrologiques. Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés à trois sites de stockage de résidus miniers présentant des caractéristiques de stockage différentes : dans une vallée comblée, en terril, et enfin dans une ancienne mine à ciel ouvert. Sur ces trois sites, les résidus sont sous couverture solide. Ces sites sont suivis d'un point de vue environnemental, sanitaire et sécuritaire par ORANO. L'objectif de cette thèse était de comprendre le fonctionnement hydro(géo)logique à différentes échelles des sites de stockage afin d'aider à leur gestion actuelle et future. Pour cela, nous avons développé une méthodologie commune aux trois sites comprenant le déploiement d'un système complémentaire d'acquisition de données couplée à une analyse de données par plusieurs méthodes, une modélisation hydro(géo)logique adaptée à chaque site et une étude du changement climatique par site (Figure 1.2).

7.1.1. Apport des données journalières

Les données collectées lors du suivi environnemental assuré par ORANO ne sont pas disponibles à des pas de temps suffisant pour caractériser les écoulements sur les sites. La mise en place d'une instrumentation complémentaire au pas de temps journalier a permis de mettre en avant la réaction rapide (inférieure à la semaine) par rapport aux précipitations des niveaux piézométriques à Bertholène, des débits à Bellezane et au Cellier. Ces nouvelles données permettent d'observer des phénomènes qui se produisent à des intervalles de temps inférieurs au suivi mensuel ou hebdomadaire historique comme l'étude des évènements extrêmes. Leur étude est d'autant plus importante qu'ils devraient être plus fréquents et intenses dans un contexte de changement climatique.

Le système complémentaire d'acquisition est composé principalement de sondes de pression qui peuvent aussi enregistrer la température de l'eau et sa conductivité électrique, ce qui reste un système simple à mettre en place. Cependant dans les milieux acides, qui peuvent être rencontrés sur les sites de l'Après-Mines France, il convient d'adapter le matériel et de prévoir des sondes qui résistent à ce type d'eau (Bertholène). Enfin pour assurer un suivi de qualité, c'est-à-dire limiter la dérive des sondes et pouvoir les recalibrer si nécessaire (comparaison de la mesure manuelle et de la sonde et rectification), effectuer l'entretien (nettoyage des déversoirs, de tubes percés et des sondes) et limiter la perte de données lorsqu'il y a un problème de batterie (piles), il convient d'effectuer un déplacement sur le terrain une fois par mois pour une maintenance optimum. De plus, les sondes peuvent être soumises à des conditions météorologiques difficiles (température négative et gel de l'eau au Cellier) qui impactent la qualité des données.

7.1.2. Apport de l'analyse des données

Les mêmes méthodes d'analyse de données ont été utilisées pour les trois sites.

- L'analyse des corrélations croisées a permis de conclure sur la réaction/l'inertie des entités étudiées par rapport aux précipitations. Pour les trois sites, nous constatons une réaction rapide des débits, niveaux piézométriques et/ou conductivité électrique aux précipitations. Ces réactions rapides peuvent impacter la gestion des eaux lors d'évènements pluvieux en générant des volumes importants dans un court laps de temps associés à des variations de la composition chimique (pH, EC, ion sulfate). Sur les sites de Bellezane (chapitre 4) et du Cellier (chapitre 6), nous avons observé que les fortes précipitations diluent les eaux qui transitent sur ces sites ce qui n'est pas le cas à Bertholène (chapitre 5). La dilution constatée sur ces deux sites diffère des résultats issus de la littérature qui montrent généralement une augmentation de la concentration des eaux lors d'évènements pluvieux que ce soit dans des conditions saturées (Bao et al., 2020 ; Cánovas et al., 2018) ou non saturées (Tum et al., 2023). Il est aussi souvent question d'un épisode de lessivage rapide (Gzyl et Banks, 2007; Merritt et Power, 2022) avant la dilution des eaux qui ne se produit pas sur les sites étudiés grâce à la présence d'un contrôle géochimique. Dans le cas des résidus, l'uranium et le radium sont présents dans des concentrations en trace ou ultra trace ($[U] = \sim 10^{-6} \text{ mol/L}$ et $[^{226}\text{Ra}] = 10^{-6}$ ¹⁴ mol/L par rapport aux ions sulfate $[SO_4] = 5 \times 10^{-2}$ mol/L) et sont plus soumis à des réactions chimiques à l'interface eau/minéral sans oublier que l'uranium et le radium ne sont pas des traceurs. Cela montre que l'uranium et le radium sont bien piégés dans les résidus (Ballini et al., 2020 ; Chautard et al., 2017 ; Seigneur et al., 2021).
- L'approche par bilan hydrologique en tenant compte des débits observés peut apporter de nombreuses informations. Dans cette thèse, nous avons utilisé la méthode de Thornthwaite (1948) ainsi que l'évapotranspiration potentielle se basant uniquement sur la température moyenne du jour (Oudin et al., 2005). Notre approche du bilan hydrologique reste simple et l'intégration de plusieurs facteurs tels que la végétation, les échanges souterrains et la teneur en eau du sol permettrait d'affiner les résultats mais complexifierait le calcul. Le modèle de Budyko (1961) est une alternative intéressante puisqu'il reste simple d'utilisation et de nombreux développements ont été étudiés pour prendre en compte les facteurs énumérés (Hwang et Devineni, 2022 ; Ning et al., 2019 ; Zhang et al., 2008, 2001). Différentes formules d'évapotranspiration potentielle peuvent être testées pour estimer l'impact de celle-ci sur le bilan d'eau au vu des variations calculées de PET entre les formules (Shaw et Riha, 2011). Portela et al. (2019) ont montré que la PET calculée avec Thornthwaite (1948) est toujours inférieure à celle calculée avec la formule de Penman-Monteith (Monteith, 1965). Cependant, ils ont montré que cette différence de PET avait un effet négligeable sur le débit surfacique.

L'utilisation de données satellites ou de lysimètres pourraient diminuer l'incertitude sur l'évapotranspiration réelle (Bilibio et al., 2017).

Sur le site de Bertholène, le bilan calculé à partir de la surface du bassin versant topographique, nous a permis d'estimer la recharge qui a ensuite été utilisée dans le modèle. Les échanges souterrains ont été considérés comme négligeables entre les bassins versants hydrogéologiques. Sur le site du Cellier, la position et l'altitude des drains au sein du terril considérés comme les exutoires du terril sont inconnues. Dans ce cas, le bilan nous a permis de vérifier que tous les flux traversant le terril étaient bien récupérés pour être traités. Enfin pour le site de Bellezane, le bilan hydrologique a été utilisé pour déterminer les surfaces drainées par les différents drains. Les différents systèmes de collecte des eaux avant le traitement fonctionnent correctement.

La part de ruissellement a été peu étudiée durant cette thèse ce qui pourrait avoir son impact lors d'évènements extrêmes. En effet, les fortes précipitations augmentent la part de ruissellement, érodent les surfaces et modifient le comportement hydrogéologique des sites. A Bertholène, le ruissellement a été pris en compte notamment avec la présence de fortes pentes dans le bassin versant. Au Cellier, les observations et la modélisation n'ont pas mis en évidence le ruissellement sur le terril étudié même lors d'un évènement intense. Enfin à Bellezane, le ruissellement n'a pas été pris en compte. D'un point de vue qualitatif, le ruissellement présente un impact négligeable puisque l'eau restera à la surface et ne sera pas en contact avec les résidus miniers. Les évènements extrêmes et donc le ruissellement restent un enjeu majeur d'un point de vue quantitatif, puisque d'importants volumes d'eau peuvent arriver dans les bassins de stockage et de traitement dans un cours laps de temps. La thèse s'intéressant particulièrement au volume généré lors d'évènements extrêmes, il serait pertinent d'étudier plus en détails la part du ruissellement sur les trois sites.

Après avoir conclu au sujet des méthodes d'analyse, le fonctionnement hydro(géo)logique de chaque entité étudiée est détaillé.

- Le site de Bellezane (chapitre 4) présente la particularité d'avoir des pôles d'eau de géométrie complexe et peu connue, arrivant à la station de traitement puis au bassin de rejet. L'instrumentation complémentaire installée pour cette thèse a permis d'étudier chaque pôle indépendamment d'un point de vue hydrologique et géochimique. La contribution de chaque pôle à la station de traitement a pu être calculée et montre que le pôle majoritaire (70 %) draine de l'eau provenant en partie de l'extérieur du bassin versant topographique. Au niveau du rejet du site dans l'environnement, les eaux du site sont la principale source du ruisseau des Magnelles (81 %). Cette proportion est confirmée par les concentrations en sulfate à cet endroit. A l'aval du site, les eaux du rejet sont ensuite diluées par les apports provenant du bassin versant naturel.
- Le chapitre 5 permet de clarifier le fonctionnement hydrologique du stockage de résidus du site de Bertholène et du bassin versant en général. L'implémentation de nouveaux piézomètres confirme qu'il n'y a pas de nappe dans le stockage et que l'écoulement au sein de celui-ci se produit dans des conditions non saturées. L'eau circulant dans la

nappe des gneiss n'entre pas en contact avec les résidus et les stériles miniers stockés. L'eau de la nappe des gneiss contribue à la dilution des effluents avant le traitement.

- L'étude du site du Cellier s'intéresse à un terril de résidus miniers ayant subi un traitement par lixiviation statique (chapitre 6). Les écoulements dans le terril se produisent dans des conditions non saturées avec une réaction rapide des débits aux précipitations. L'augmentation du pH et la diminution de la conductivité électrique montrent une dilution de l'écoulement au sein du terril par les précipitations mettant en évidence des chemins préférentiels d'écoulement à travers le terril. Ces chemins préférentiels peuvent être liés aux contrastes de matériaux de granulométrie variée dans un terril composé de sables et de graviers fins. La composition (minéralogique et chimique) précise de ce terril n'est cependant pas disponible et pose des défis complémentaires dans l'étude des écoulements à travers ce stockage.

Notre travail a reposé sur une grande quantité de données météorologiques, hydro(géo)logiques et géochimiques. Des données complémentaires permettraient de caractériser les propriétés hydrauliques et les conditions de saturation sur les sites du Le Cellier et de Bertholène. Travailler sur des anciens sites miniers suivis régulièrement depuis des années est une réelle opportunité. Cela offre l'opportunité de bénéficier de longues chroniques de données à un pas de temps régulier souvent hebdomadaire ou mensuel. Cependant, la fréquence des suivis n'est pas toujours en adéquation avec les réactions des systèmes hydrologiques, ce qui limite la compréhension des sites et a justifié des acquisitions complémentaires (nouveaux piézomètres, installation de déversoirs et de sondes multiparamètres, missions de prélèvements), réalisées dans le cadre de cette thèse. Le suivi de données au pas de temps journalier apparaît très pertinent dans nos cas d'étude et est primordial pour comprendre le fonctionnement hydrogéologique des systèmes étudiés. De plus, l'installation de matériel pour mesurer les différents paramètres permet d'avoir des données fiables sous réserve d'assurer un suivi régulier du matériel pour maintenir son bon fonctionnement. Pour conclure, la combinaison des données issues du suivi historique environnemental et complémentaire a permis d'apporter de nouvelles connaissances sur le fonctionnement hydrologique des entités étudiées et a permis de développer des modèles conceptuels du fonctionnement de chaque site. Ces modèles conceptuels ont permis de définir et d'adapter la stratégie de modélisation développée ensuite spécifiquement pour chaque site.

7.1.3. Apport de la modélisation

Le choix du type de modèle dépend des conditions d'écoulement, de l'entité étudiée et des données disponibles. Le Tableau 7.1 résume les modèles utilisés, les types de modélisation, les données nécessaires et les résultats obtenus pour chaque site. Les trois modèles développés sont donc adaptés aux particularités de chaque site en fonction de l'étendue spatiale étudiée, la présence d'entités minières différentes et de la complexité des processus étudiés (écoulements rapides, transpiration).

Tableau 7.1 : Résumé des logiciels utilisés pour modéliser les écoulements sur les trois sites, des données utilisées et des résultats obtenus. (P : précipitations, T : température, Q : débit, LAI : indice foliaire, NP : niveau piézométrique, SO_4^{2-} : concentration en sulfate).

Modèle	Туре	Données nécessaires	Résultats
HYDRUS (Le Cellier)	Transfert vertical à travers un terril de résidus Ecoulements non saturés	P, T, Q, LAI	Identification de chemins préférentiels
MODFLOW (Bertholène)	Ecoulements saturés dans la nappe à l'échelle du bassin versant topographique	P, T, NP	Indentifications des sources du DMA Tests des scénarios de réhabilitation
GOLDSIM (Bellezane)	Ecoulements de surface et sub- surface à l'échelle du bassin versant hydrogéologique	P, T, Q, SO ₄ ²⁻	Quantification des pôles du bassin versant

L'approche de modélisation développée à Bellezane est innovante et particulièrement adaptée au site. Elle permet de simuler les débits individuellement à partir d'un modèle hydrologique spécifique pour chaque pôle et d'intégrer les aménagements liés au traitement, le tout dans une chaîne de modélisation. Le modèle simule de façon correcte le fonctionnement hydrologique de chaque pôle et du bassin versant dans sa globalité. En couplant les débits simulés et les concentrations en sulfate de chaque pôle, les mélanges réalisés montrent que les proportions de chaque pôle sont correctes. Grâce au modèle global, nous avons déterminé le temps de transfert de l'eau entre son arrivée dans le bassin récepteur et sa sortie du site. Il est estimé à 16 jours s'il ne pleut pas, mais diminue de quelques jours lors d'évènements pluvieux, même de faible intensité. Les précipitations jouent aussi un rôle important dans la dilution de l'eau après le rejet environnemental du site et peuvent diminuer la concentration des rejets jusqu'à 50 % à l'aval du site.

Sur le site de Bertholène, le modèle hydrogéologique reproduit de manière satisfaisante le fonctionnement actuel du bassin versant à partir de la recharge estimée par le bilan hydrologique en simulant de manière satisfaisante les niveaux piézométriques et les débits. Le suivi des particules confirme que le bassin de contrôle, qui reçoit les eaux provenant du sous-bassin versant du stockage, est alimenté par de l'eau provenant des coteaux et de l'infiltration verticale sur le stockage. Le modèle a aussi permis de tester un scénario de couverture du stockage pour annuler les infiltrations à travers ce dernier. Cette couverture diminuerait le débit à l'exutoire du stockage de 20 %. Nos résultats montrent que le drainage minier acide généré par l'apport des précipitations devrait être limité mais cette solution ne permet pas d'éliminer la source du DMA (présence de fer ferrique et de pyrite présente dans les stériles dans le stockage) ce qui

devrait maintenir l'existence d'un drainage minier acide (équation 2.4). La solution de collecter, suivre et traiter les eaux reste une solution gérable par un industriel.

Sur le site du Cellier, le modèle d'écoulement en conditions non saturées intègre une représentation simplifiée de l'hétérogénéité du terril. Pour reproduire des écoulements rapides, nous avons utilisé un modèle à double porosité qui a été préféré au modèle double perméabilité au vu du nombre de paramètres de ce dernier. L'intégration des pertes par transpiration de la végétation présente sur le terril a permis de mieux reproduire les périodes de basses eaux. Le modèle développé reproduit correctement les écoulements rapides liés aux chemins préférentiels et simule une teneur en eau très faible (maximum 5 %) dans le terril même lors d'évènements pluvieux qui demande à être validée par des observations.

Les modèles développés à Bellezane et au Cellier offrent la possibilité de simuler les débits et l'évapotranspiration réelle jusqu'en 2100 dans le contexte du changement climatique. Les modèles hydrologiques développés dans cette thèse sont une première étape afin de développer des modèles hydrogéochimiques à l'échelle des sites.

7.1.4. Le changement climatique

La méthodologie développée pour l'étude du changement climatique est innovante, flexible et est applicable à tous les sites de stockages de résidus miniers (Figure 3.1). L'approche statistique facilite sa mise en place et apparaît suffisante pour étudier l'impact du changement climatique à différentes échelles de temps (annuelle, saisonnière ou journalière) dans le futur. Toutefois, cette étude dépend de la disponibilité des jeux de simulations climatiques régionalisées et descendues à l'échelle des pays. Par exemple, les simulations climatiques les plus récentes (CMIP6) ne sont pas encore disponibles à l'échelle de la France. La simulation des débits et de l'évapotranspiration réelle est complémentaire pour étudier plus en détails certains aspects (impact des évènements pluvieux sur le niveau piézométrique et les débits). Les projections climatiques, issues de CMIP5, de précipitations et de températures sont disponibles sur le site DRIAS (https://www.drias-climat.fr/) à l'échelle de toute la France. A noter qu'il convient d'utiliser des données issues de la maille la plus proche du site étudié et de comparer plusieurs simulations entre elles car celles-ci peuvent être très variables selon les modèles globaux et régionaux utilisés.

A l'échelle annuelle et comme attendu sur toute la France, la température devrait augmenter pour tous les scénarios et pour tous les sites avec la même amplitude (Figure 7.1). L'augmentation des températures est plus marquée pour les sites du Cellier et de Bertholène qui se situent dans la partie sud de la France. Les précipitations à l'échelle annuelle ne devraient donc que très peu varier. Il apparait quand même que le scénario RCP2.6 est plus pluvieux sur les sites de Bertholène et du Cellier (+4 % et +5,2 % respectivement) et le scénario RCP8.5 plus sec (-4 % et -1,1 % respectivement) entre le début (2006-2036) et la fin du siècle (2068-2098). Pour le site de Bellezane, les variations sont faibles (±1 %) pour les trois scénarios.



Figure 7.1 : Récapitulatif des résultats de la modification de la température moyenne annuelle et des précipitations moyennes annuelles entre 2006 et 2098 par site.

L'approche saisonnière montre les mêmes schémas de modifications pour les trois sites. Les étés devraient devenir plus chauds et plus secs et les hivers (novembre jusqu'à mars) pourraient être plus humides et plus chauds. Cette tendance est visible pour le scénario RCP4.5 et est plus marquée pour le scénario RCP8.5. Sur le site de Bellezane et du Cellier, les simulations montrent une augmentation de l'évapotranspiration réelle durant l'hiver (plus de pluie et plus de chaleur). Les débits simulés jusqu'en 2100 devraient diminuer durant la période estivale et augmenter légèrement ou être stables en hiver, ce qui engendre une diminution des débits à l'échelle annuelle. Ces changements confirment une « méditerranéisation » du climat en France (Jeantet, 2022 ; Soubeyroux et al., 2020 ; Terray et Boé, 2013).

L'approche journalière montre que les évènements pluvieux devraient être plus fréquents (> 50 %) sur la période (2006-2036) que sur la période historique simulée (1975-2005) sur les sites de Bertholène et de Bellezane et de 20 % sur le site du Cellier. La fréquence des évènements pluvieux devrait continuer à augmenter jusqu'à la fin du siècle (50 % entre les périodes 2006-2036 et 2068-2098) sur les sites du Cellier et de Bellezane. Pour le site de Bertholène, le nombre d'évènements reste stable entre le début et la fin du siècle (+1 évènement en moyenne sur la période de 31 ans). A noter que ces variations concernent la médiane du nombre d'évènements pluvieux devrait aussi augmenter, générant des volumes d'eau plus importants à gérer dans un court laps de temps. L'augmentation de la quantité de pluie pour une même période de retour est plus marquée pour le site du Cellier (de +8 % pour le RCP8.5 à +12 % pour le RCP2.6) et celui de Bellezane (de +5 % pour le RCP2.6 à +8 % pour le RCP8.5) entre les périodes 2006-2036 et 2068-2098. Pour le site de Bertholène, l'intensité devrait augmenter de 4,5 % pour le RCP2.6 et RCP4.5 mais devrait diminuer pour le RCP8.5 de 4 %. Ces résultats sont cohérents avec l'augmentation de la fréquence et de l'intensité des

évènements pluvieux à l'échelle de la France (Déqué, 2007 ; Soubeyroux et al., 2020). Pour les sites de Bertholène et du Cellier, situés à proximité du bassin méditerranéen, les variations de fréquence et d'intensité sont en accord avec les études antérieures (Ribes et al., 2019 ; Tramblay et al., 2012 ; Tramblay et Somot, 2018). Il aurait été intéressant de regarder aussi l'évolution des périodes de retours maxima, plutôt que la médiane, permettant d'étudier le pire des scénarios possibles d'évènements extrêmes.

Nous pouvons donc conclure que le changement climatique ne devrait pas modifier le fonctionnement hydrologique des sites étudiés à l'échelle annuelle. Les installations actuelles, utilisées pour le traitement de l'eau, sont correctement dimensionnées au vu des faibles variations des précipitations et de la simulation à la baisse des débits à l'échelle annuelle (Le Cellier et Bellezane). Les variations à l'échelle saisonnière sont similaires pour les trois sites. L'augmentation des températures est plus marquée durant les mois de juin, juillet et août. Pour le reste de l'année, l'augmentation est la même. La variation saisonnière des précipitations est très marquée pour le scénario RCP8.5, avec une augmentation des précipitations entre novembre et mars et une diminution importante durant période estivale. Il faudra donc s'attendre à des hivers plus humides et donc des volumes d'eau plus importants et des étés secs pouvant engendrer une concentration des effluents plus élevée. A l'échelle journalière, les évènements pluvieux devraient être plus intenses et plus fréquents. Ces évènements pourraient générer des volumes d'eau importants dans un court laps de temps et créer des débordements des différents bassins. L'étude sur le site du Cellier montre que les bassins sont correctement dimensionnés pour des évènements pluvieux avec des périodes de retour inférieures à 200 ans. En cas de débordement des bassins, Mayes et al. (2021) ont montré qu'un évènement pluvieux avec une période de retour de 200 ans n'avait peu que d'impact sur le transport de contaminants dans l'eau en raison de la dilution que l'évènement pluvieux provoque. Les évènements extrêmes devraient donc générer des volumes d'eau importants mais les concentrations devraient être diluées.

L'étude du changement climatique sur chaque site montre qu'il y a peu de différence entre les sites à l'échelle annuelle et saisonnière et confirme les résultats obtenus par les études à l'échelle de la France (Soubeyroux et al., 2020). A ces échelles de temps, l'étude du changement climatique peut être optionnelle en se basant sur les résultats à l'échelle de la France. Pour les variations à l'échelle journalière, les résultats sont en accord avec la littérature mais sont dépendantes de chaque site. Pour aller plus loin dans l'analyse à l'échelle journalière, il apparaît nécessaire de simuler les débits à l'aide des modèles. L'étude du changement climatique montre que la gestion actuelle des sites devrait rester valable dans le futur.

7.2. Perspectives

Les résultats présentés dans ce manuscrit permettent de comprendre le fonctionnement hydrologique de trois sites de stockage de résidus étudiés. Il serait intéressant d'appliquer la méthodologie générale développée lors de cette thèse à d'autres sites miniers, d'uranium ou d'autres métaux, et à d'autres sites de stockage de résidus miniers avec d'autres types de stockages, sous eau par exemple. Les trois sites étudiés étant relativement proche, il présente peu de différence dans un contexte de changement climatique. La méthodologie développée pour étudier ce dernier pourrait être appliquée à d'autres sites dans d'autres régions du monde avec des climats différents. A l'avenir, l'étude du CC devrait devenir plus fréquente sur les sites miniers, il serait intéressant de faire une synthèse des résultats et d'adapter la méthode développée en utilisant par exemple les scénarios SSP (partie 2.2.1). Pour étudier l'impact sur un site minier, il faudra veiller à pouvoir utiliser des données de projection climatique descendues d'échelle permettant de réaliser une étude à l'échelle locale. Cette méthode est applicable à n'importe quelle temporalité de la mine, pendant la phase de projet, pendant l'exploitation ou dans un contexte d'après-mines.

Concernant l'étude des trois sites, il faut tout d'abord consolider les connaissances acquises dans cette thèse en continuant l'acquisition de données au pas de temps journalier, notamment car les deux dernières années ont été marquées par une sécheresse importante sur toute la France. Les données journalières jouent un rôle essentiel dans la compréhension des sites miniers et notamment pour comprendre l'impact du changement climatique pour des évènements ponctuels. En complément du suivi journalier, de nouvelles données doivent être acquises pour diminuer les incertitudes concernant les résultats des modélisations. Des tests de traçages pourraient être effectués pour identifier les hétérogénéités de structures et les chemins préférentiels, comprendre le fonctionnement interne et évaluer le temps de transfert du stockage de Bertholène et du terril sur le site du Cellier (Köhne et al., 2009). Sur le site du Cellier, le terril pourrait être instrumenté de manière à obtenir la teneur en eau (bougies poreuses) et la profondeur des racines. Des études géophysiques permettraient d'avoir une meilleure description de la structure interne du terril et de détecter le niveau de la nappe souterraine ou la présence d'eau (Arcila et al., 2021 ; Maghsoudy et al., 2019 ; Tavakoli et Rasmussen, 2022).

Ensuite, les modèles peuvent être améliorés selon différents aspects.

- Il serait intéressant de développer le modèle du bassin versant de Bertholène en régime transitoire pour étudier l'impact des fortes précipitations en périodes estivales ou hivernales sur les niveaux piézométriques. Il serait alors possible d'étudier l'impact du changement climatique sur les niveaux piézométriques et sur les débits du site de Bertholène jusqu'en 2100.
- Toujours pour le site de Bertholène, il faudrait intégrer le stockage de résidus dans le modèle actuel ou développer un modèle du sous-bassin versant du stockage, par exemple avec HYDRUS.
- D'un point de vue hydrologique, le modèle global de Bellezane pourrait être amélioré en réactualisant les modèles avec de nouvelles données journalières. D'un point de vue géochimique, il faudrait continuer le suivi géochimique pour avoir de plus longues chroniques de concentration en sulfate et observer la variabilité annuelle de chaque pôle. Il faudrait développer le modèle réactif de ce site pour intégrer la concentration en radium et en uranium des eaux.
- Sur le site du Cellier, l'amélioration passe par l'acquisition de nouvelles données (campagnes de traçage, étude géophysique, mesure de l'humidité). Dans cette thèse, nous ne nous sommes intéressés qu'à un seul terril de résidus alors que le site en

dénombre trois. Il serait intéressant de développer des modèles sur les autres terrils pour comparer leur fonctionnement.

D'un point de vue général, les incertitudes n'ont pas été prises en compte dans cette thèse et pourrait être un point intéressant à développer dans un futur travail notamment sur le site de Bellezane avec l'accumulation d'incertitude de l'amont à l'aval de la chaîne de modélisation. De plus, l'étude de la sensibilité des modèles aux différents paramètres est à poursuivre notamment à Bellezane concernant l'impact des différents modèles et/ou paramètres dans la chaîne de modélisation hydrologique, au Cellier en s'intéressant aux différents paramètres hydrogéologiques et à Bertholène en travaillant sur les limites topographiques du bassin versant et sur la conductivité hydraulique à saturation.

Pour finir, de nouvelles approches pourraient être considérées pour étudier l'impact du changement climatique sur le fonctionnement hydrologique des sites. Les formules d'évapotranspiration potentielle utilisées dans cette thèse ne dépendent que de la température. Un travail complémentaire serait d'évaluer l'impact de différentes formules de l'évapotranspiration potentielle sur la simulation des débits et de l'évapotranspiration réelle en prenant en compte l'augmentation de l'indice foliaire (LAI) et les rétroactions liées à l'augmentation du CO_2 sur la transpiration des plantes dans le contexte du changement climatique.

Par ailleurs, nous nous sommes principalement intéressés aux écoulements et aux évènements pluvieux d'un point de vue quantitatif. D'un point de vue qualitatif, il serait intéressant d'observer l'impact des « first flushes » sur la qualité des effluents avec un suivi journalier des concentrations à l'exutoire. L'effet de ces lessivages rapides est encore largement débattu dans la communauté scientifique (Mamun et al., 2020). Il serait aussi pertinent d'étudier l'impact des périodes sèches sur le transport de contaminants et sur la concentration des effluents.

Cette thèse ouvre à la réflexion sur des questions plus générales concernant le devenir de ces sites de stockages de résidus et de stériles. La gestion de ces sites coûte cher et leur gestion peut durer pendant plusieurs dizaines d'années. Il se pose alors la question de qui va assurer la pérennité de ces sites sur le long terme ? Dans le cas des sites miniers gérés par un industriel, ces sites peuvent être suivis et les eaux collectées et traitées pendant plusieurs dizaines d'années sans que cela ne pose problème. Cette thèse apporte de nouvelles connaissances permettant de mieux comprendre le fonctionnement des sites miniers de façon à mieux gérer les résidus miniers issus d'exploitations historiques. Les différentes problématiques abordées dans ce travail sont importantes pour l'acceptabilité sociale et environnementale de futurs projets miniers qui dans les prochaines années devraient augmenter.

Bibliographie

- Adams, R., Younger, P. l., 2001. A Strategy For Modeling Ground Water Rebound In Abandoned Deep Mine Systems. Groundwater 39, 249–261. https://doi.org/10.1111/j.1745-6584.2001.tb02306.x
- Adla, S., Tripathi, S., Disse, M., 2019. Can We Calibrate a Daily Time-Step Hydrological Model Using Monthly Time-Step Discharge Data? Water 11, 1750. https://doi.org/10.3390/w11091750
- Ahmadisharaf, E., Kalyanapu, A.J., Bates, P.D., 2018. A probabilistic framework for floodplain mapping using hydrological modeling and unsteady hydraulic modeling. Hydrol. Sci. J. 63, 1759–1775. https://doi.org/10.1080/02626667.2018.1525615
- Akcil, A., Koldas, S., 2006. Acid Mine Drainage (AMD): causes, treatment and case studies. J. Clean. Prod., Improving Environmental, Economic and Ethical Performance in the Mining Industry. Part 2. Life cycle and process analysis and technical issues 14, 1139– 1145. https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2004.09.006
- Alam, M.S., Barbour, S.L., Elshorbagy, A., Huang, M., 2018. The Impact of Climate Change on the Water Balance of Oil Sands Reclamation Covers and Natural Soil Profiles. J. Hydrometeorol. 19, 1731–1752. https://doi.org/10.1175/JHM-D-17-0230.1
- Alam, M.S., Barbour, S.L., Huang, M., Li, Y., 2020. Using Statistical and Dynamical Downscaling to Assess Climate Change Impacts on Mine Reclamation Cover Water Balances. Mine Water Environ. 39, 699–715. https://doi.org/10.1007/s10230-020-00695-6
- Allen Jr., L.H., 1990. Plant Responses to Rising Carbon Dioxide and Potential Interactions with
Air Pollutants. J. Environ. Qual. 19, 15–34.
https://doi.org/10.2134/jeq1990.00472425001900010002x
- American Society of Civil Engineers, 1969. Design and construction of sanitary and storm sewers. American Society of Civil Engineers and the Water Pollution Control Federation, New York.
- Amos, R.T., Blowes, D.W., Bailey, B.L., Sego, D.C., Smith, L., Ritchie, A.I.M., 2015. Wasterock hydrogeology and geochemistry. Appl. Geochem., Environmental Geochemistry of Modern Mining 57, 140–156. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2014.06.020
- An, N.N., Nhut, H.S., Phuong, T.A., Huy, V.Q., Hanh, N.C., Thao, G.T.P., Trinh, P.T., Hoa, P.V., Bình, N.A., 2022. Groundwater simulation in Dak Lak province based on MODFLOW model and climate change scenarios. Front. Eng. Built Environ. 2, 55–67. https://doi.org/10.1108/FEBE-11-2021-0055
- Anawar, H.M., 2013. Impact of climate change on acid mine drainage generation and contaminant transport in water ecosystems of semi-arid and arid mining areas. Phys. Chem. Earth Parts ABC, Contamination in Water 58–60, 13–21. https://doi.org/10.1016/j.pce.2013.04.002
- ANDRA, 2018. La gestion des résidus de traitement des mines d'uranium [WWW Document]. URL https://inventaire.andra.fr/les-matieres-et-dechets-radioactifs/dechets-ayant-faitlobjet-de-mode-de-gestion-historique/5les#:~:text=Ces%20résidus%20correspondent%20à%20des,classées%20sous%20la% 20rubrique%201735. (accessed 10.13.21).
- Aparecido, L.E., Lorençone, P., Lorençone, J., Meneses, K., Moraes, J., 2021. Climate changes and their influences in water balance of Pantanal biome. Theor. Appl. Climatol. 143. https://doi.org/10.1007/s00704-020-03445-4

- Aquaveo, 2017. Groundwater Modeling System [WWW Document]. URL https://www.aquaveo.com/software/gms-groundwater-modeling-system-introduction (accessed 2.10.21).
- Araujo, F.S.M., Taborda-Llano, I., Nunes, E.B., Santos, R.M., 2022. Recycling and Reuse of Mine Tailings: A Review of Advancements and Their Implications. Geosciences 12, 319. https://doi.org/10.3390/geosciences12090319
- Arcila, E.J.A., Moreira, C.A., Camarero, P.L., Casagrande, M.F.S., 2021. Identification of Flow Zones Inside and at the Base of a Uranium Mine Tailings Dam Using Geophysics. Mine Water Environ. 40, 308–319. https://doi.org/10.1007/s10230-020-00746-y
- Ardejani, F., Singh, 2004. Assessment of Ground Water Rebound in Backfilled Open Cut Mines using the Finite Element. J. Rock Mech. Tunn. Technol. 10, 1–16.
- Aubertin, M., Bussière, B., Pabst, T., James, M., Mbonimpa, M., 2016. Review of the Reclamation Techniques for Acid-Generating Mine Wastes upon Closure of Disposal Sites, in: Geo-Chicago 2016. Presented at the Geo-Chicago 2016, American Society of Civil Engineers, Chicago, Illinois, pp. 343–358. https://doi.org/10.1061/9780784480137.034
- Aubertin, M., Fala, O., Bussière, B., Martin, V., Campos, D., Gamache-Rochette, A., Chouteau, M., Chapuis, R., 2002. Analyse des écoulements de l'eau en conditions non saturées dans les haldes à stériles. Comptes-rendus du Symposium 2002 sur l'Environnement et les Mines Rouyn-Noranda Québec Canada.
- Aubertin, M., Mbonimpa, M., Bussière, B., Chapuis, R.P., 2003. Development of a model to predict the water retention curve using basic geotechnical properties [WWW Document]. URL https://publications.polymtl.ca/2604/ (accessed 11.16.22).
- Aubertin, M., Pabst, T., Bussière, B., Molson, J., 2015. Revue des meilleures pratiques de restauration des sites d'entreposage de rejets miniers générateurs de DMA. Presented at the Symposium 2015 sur l'environnement et les mines, Rouyn-Noranda, Québec.
- Azzouzi, K., 2015. Étude de différentes voies de valorisation des rejets miniers comme matériaux de construction : faisabilité d'un concept d'écologie industrielle (other). UQAT, Rouyn-Noranda, Québec, Canada.
- Ballini, M., Chautard, C., Nos, J., Phrommavanh, V., Beaucaire, C., Besancon, C., Boizard, A., Cathelineau, M., Peiffert, C., Vercouter, T., Vors, E., Descostes, M., 2020. A multi-scalar study of the long-term reactivity of uranium mill tailings from Bellezane site (France). J. Environ. Radioact. 218, 106223. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106223
- Bao, Z., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., Bain, J., Holland, S.P., Wilson, D., Wilson, W., MacKenzie, P., 2020. Faro Waste Rock Project: Characterizing Variably Saturated Flow Behavior Through Full-Scale Waste-Rock Dumps in the Continental Subarctic Region of Northern Canada Using Field Measurements and Stable Isotopes of Water. Water Resour. Res. 56, e2019WR026374. https://doi.org/10.1029/2019WR026374
- Barnett, B., Townley, L., Post, V., Evans, R., Hunt, R., Peeters, L., Richardson, S., Werner, A., Knapton, A., Boronkay, A., 2012. Australian Groundwater Modelling Guidelines.
- Bashir, R., Ahmad, F., Beddoe, R., 2020. Effect of Climate Change on a Monolithic Desulphurized Tailings Cover. Water 12, 2645. https://doi.org/10.3390/w12092645
- Bauser, H.H., Kim, M., Ng, W.-R., Bugaj, A., Troch, P.A., 2022. Richards Equation at the Hillslope Scale: Can We Resolve the Heterogeneity of Soil Hydraulic Material Properties? Water Resour. Res. 58, e2022WR032294. https://doi.org/10.1029/2022WR032294
- Beaucaire, C., 2021. Modélisation géochimique du drainage acide minier au sein du stockage de résidus de Bertholène (Technical Report No. IDF-DT-009383). Orano Mining.

- Bell, F.G., Bullock, S.E.T., Haelbich, T.F.J., Lindsay, P., 2001. Environmental impacts associated with an abandoned mine in the Witbank Coalfield, South Africa. Int. J. Coal Geol. 45, 195–216.
- Bérubé, S., Brissette, F., Arsenault, R., 2022. Optimal Hydrological Model Calibration Strategy for Climate Change Impact Studies. J. Hydrol. Eng. 27, 04021053. https://doi.org/10.1061/(ASCE)HE.1943-5584.0002148
- Besançon, C., Chautard, C., Beaucaire, C., Savoye, S., Sardini, P., Gérard, M., Descostes, M., 2020. The Role of Barite in the Post-Mining Stabilization of Radium-226: A Modeling Contribution for Sequential Extractions. Minerals 10, 497. https://doi.org/10.3390/min10060497
- Betrie, G.D., Sadiq, R., Nichol, C., Morin, K.A., Tesfamariam, S., 2016. Environmental risk assessment of acid rock drainage under uncertainty: The probability bounds and PHREEQC approach. J. Hazard. Mater. 301, 187–196. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2015.07.022
- Beven, K., 2012. Predicting Hydrographs Using Models Based on Data, in: Rainfall-Runoff Modelling. John Wiley & Sons, Ltd, pp. 83–117. https://doi.org/10.1002/9781119951001.ch4
- Bilibio, C., Schellert, C., Retz, S., Hensel, O., Schmeisky, H., Uteau, D., Peth, S., 2017. Water balance assessment of different substrates on potash tailings piles using non-weighable lysimeters. J. Environ. Manage. 196, 633–643. https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2017.01.024
- Blackmore, S., Pedretti, D., Mayer, K.U., Smith, L., Beckie, R.D., 2018. Evaluation of singleand dual-porosity models for reproducing the release of external and internal tracers from heterogeneous waste-rock piles. J. Contam. Hydrol. 214, 65–74. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2018.05.007
- Blackmore, S., Smith, L., Ulrich Mayer, K., Beckie, R.D., 2014. Comparison of unsaturated flow and solute transport through waste rock at two experimental scales using temporal moments and numerical modeling. J. Contam. Hydrol. 171, 49–65. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2014.10.009
- Blowes, D.W., 1997. The Environmental Effects of Mine Wastes. Mapp. Monit. Mine Environ. Proceedings of Exploration 97: Fourth Decennial International Conference on Mineral Exploration, 6.
- Blowes, D.W., Ptacek, C.J., Jambor, J.L., Weisener, C.G., Paktunc, D., Gould, W.D., Johnson, D.B., 2014. 11.5 The Geochemistry of Acid Mine Drainage, in: Treatise on Geochemistry. pp. 131–190. https://doi.org/10.1016/b978-0-08-095975-7.00905-0
- Bossé, B., Bussière, B., Maqsoud, A., Hakkou, R., Benzaazoua, M., 2016. Hydrogeological Behavior of a Store-and-Release Cover: A Comparison Between Field Column Tests and Numerical Predictions With or Without Hysteresis Effects. Mine Water Environ. 35, 221–234. https://doi.org/10.1007/s10230-015-0350-8
- Boughton, W., 2004. The Australian water balance model. Environ. Model. Softw. 19, 943–956. https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2003.10.007
- Boyaud, C., Therrien, R., 2004. Numerical modeling of mine water rebound in Saizerais, northeastern France, in: Miller, C.T., Pinder, G.F. (Eds.), Developments in Water Science, Computational Methods in Water Resources: Volume 2. Elsevier, pp. 977– 989. https://doi.org/10.1016/S0167-5648(04)80118-7
- Brett, D.M., Fourie, A.B., Tibbett, M., 2009. Water covers for tailings and waste rock designing for perpetuity. Presented at the Mine Closure 2009: Fourth International Conference on Mine Closure, 2009 9-11 September, Perth, Australian Centre for Geomechanics. https://doi.org/10.36487/ACG_repo/908_37

- BRGM, 1997. Les résidus miniers français : typologie et principaux impacts environnementaux potentiels (Rapport No. R-39503). BRGM.
- Brigode, P., Génot, B., Lobligeois, F., Delaigue, O., 2020. Summary sheets of watershed-scale hydroclimatic observed data for France. https://doi.org/10.15454/UV01P1
- Brigode, P., Oudin, L., Perrin, C., 2013. Hydrological model parameter instability: A source of additional uncertainty in estimating the hydrological impacts of climate change? J. Hydrol. 476, 410–425. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2012.11.012
- Broda, S., Blessent, D., Aubertin, M., 2013. Conceptual Model Suitability for Reproducing Preferential Flow in Waste Rock. Proc. IASTED Int. Conf. Model. Identif. Control. https://doi.org/10.2316/P.2013.794-040
- Brooks, R.H., Corey, A.T., 1964. Hydraulic Properties of Porous Media and Their Relation to Drainage Design. Trans. ASAE 7, 0026–0028. https://doi.org/10.13031/2013.40684
- Budyko, M.I., 1961. The Heat Balance of the Earth's Surface. Sov. Geogr. 2, 3–13. https://doi.org/10.1080/00385417.1961.10770761
- BURGEAP, 2006. Site de Bellezane Expertise hydrogéologique et préconisations pour le site de stockage de sédiments et de boues (No. RTr00046a). AREVA COGEMA.
- Bussière, B., 2010. Acid Mine Drainage From Abandoned Mine Sites: Problematic and Reclamation Approaches, in: Chen, Y., Zhan, L., Tang, X. (Eds.), Advances in Environmental Geotechnics. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, pp. 111–125. https://doi.org/10.1007/978-3-642-04460-1_6
- Cánovas, C.R., Macías, F., Olías, M., 2018. Hydrogeochemical behavior of an anthropogenic mine aquifer: Implications for potential remediation measures. Sci. Total Environ. 636, 85–93. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.04.270
- Chaouche, K., Neppel, L., Dieulin, C., Pujol, N., Ladouche, B., Martin, E., Salas, D., Caballero, Y., 2010. Analyses of precipitation, temperature and evapotranspiration in a French Mediterranean region in the context of climate change. Comptes Rendus Geosci. 342, 234–243. https://doi.org/10.1016/j.crte.2010.02.001
- Chautard, C., Beaucaire, C., Gérard, M., Phrommavanh, V., Nos, J., Galoisy, L., Calas, G., Roy,
 R., Descostes, M., 2017. Geochemical Characterization of U Tailings (Bois Noirs Limouzat, France). Procedia Earth Planet. Sci. 17, 308–311. https://doi.org/10.1016/j.proeps.2016.12.067
- Chernos, M., MacDonald, R.J., Straker, J., Green, K., Craig, J.R., 2022. Simulating the cumulative effects of potential open-pit mining and climate change on streamflow and water quality in a mountainous watershed. Sci. Total Environ. 806, 150394. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150394
- Clark, R., Andreichuk, I., Sauchyn, D., McMartin, D.W., 2017. Incorporating climate change scenarios and water-balance approach to cumulative assessment models of solution potash Mining in the Canadian Prairies. Clim. Change 145, 321–334. https://doi.org/10.1007/s10584-017-2099-5
- Clothier, B.E., Green, S.R., Deurer, M., 2008. Preferential flow and transport in soil: progress and prognosis. Eur. J. Soil Sci. 59, 2–13. https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.2007.00991.x
- Collet, L., Beevers, L., Prudhomme, C., 2017. Assessing the Impact of Climate Change and Extreme Value Uncertainty to Extreme Flows across Great Britain. Water 9, 103. https://doi.org/10.3390/w9020103
- Cooper, C., Grobler, J., Reyes, M.P., 2018. 3D Deposition and Water Balance Modelling with Muk3D and GoldSim. Proc. Mine Water Solut. 14.
- Coron, L., Delaigue, O., Thirel, G., Perrin, C., Michel, C., 2020. airGR: Suite of GR Hydrological Models for Precipitation-Runoff Modelling, R News. https://doi.org/10.15454/EX11NA

- Coron, L., Thirel, G., Delaigue, O., Perrin, C., Andréassian, V., 2017. The Suite of Lumped GR Hydrological Models in an R package. Environ. Model. Softw. 94, 166–171. https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.05.002
- Côte, C.M., Moran, C.J., Hedemann, C.J., Koch, C., 2010. Systems modelling for effective mine water management. Environ. Model. Softw. 25, 1664–1671. https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2010.06.012
- Criss, R.E., Winston, W.E., 2008. Do Nash values have value? Discussion and alternate proposals. Hydrol. Process. 22, 2723–2725. https://doi.org/10.1002/hyp.7072
- Darcy, H., 1856. Les fontaines publiques de la ville de Dijon: exposition et application ... Victor Dalmont.
- Davies, H., Weber, P., Lindsay, P., Craw, D., Pope, J., 2011. Characterisation of Acid Mine Drainage in a High Rainfall Mountain Environment, New Zealand. Sci. Total Environ. 409, 2971–80. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2011.04.034
- Dawood, I., Aubertin, M., 2014. Effect of Dense Material Layers on Unsaturated Water Flow Inside a Large Waste Rock Pile: A Numerical Investigation. Mine Water Environ. 33. https://doi.org/10.1007/s10230-013-0251-7
- Dawood, I., Aubertin, M., Intissar, R., Chouteau, M., 2011. A combined hydrogeological– geophysical approach to evaluate unsaturated flow in a large waste rock pile. 9.
- De Silva, M.S., Nachabe, M.H., Šimůnek, J., Carnahan, R., 2008. Simulating Root Water Uptake from a Heterogeneous Vegetative Cover. J. Irrig. Drain. Eng. 134, 167–174. https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9437(2008)134:2(167)
- Déjeant, A., Bourva, L., Sia, R., Galoisy, L., Calas, G., Phrommavanh, V., Descostes, M., 2014.
 Field analyses of 238U and 226Ra in two uranium mill tailings piles from Niger using portable HPGe detector. J. Environ. Radioact. 137, 105–112. https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2014.06.012
- Déjeant, A., Galoisy, L., Roy, R., Calas, G., Boekhout, F., Phrommavanh, V., Descostes, M., 2016. Evolution of uranium distribution and speciation in mill tailings, COMINAK Mine, Niger. Sci. Total Environ. 545–546, 340–352. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.12.027
- Delbart, C., Valdes, D., Barbecot, F., Tognelli, A., Richon, P., Couchoux, L., 2014. Temporal variability of karst aquifer response time established by the sliding-windows cross-correlation method. J. Hydrol. 511, 580–588. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2014.02.008
- Déqué, M., 2007. Frequency of precipitation and temperature extremes over France in an anthropogenic scenario: Model results and statistical correction according to observed values. Glob. Planet. Change, Extreme Climatic Events 57, 16–26. https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2006.11.030
- Descostes, M., Vitorge, P., Beaucaire, C., 2004. Pyrite dissolution in acidic media. Geochim. Cosmochim. Acta 68, 4559–4569. https://doi.org/10.1016/j.gca.2004.04.012
- Dewandel, B., Lachassagne, P., Wyns, R., Maréchal, J.C., Krishnamurthy, N.S., 2006. A generalized 3-D geological and hydrogeological conceptual model of granite aquifers controlled by single or multiphase weathering. J. Hydrol., Hydro-ecological functioning of the Pang and Lambourn catchments, UK 330, 260–284. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2006.03.026
- Didovets, I., Krysanova, V., Hattermann, F.F., del Rocío Rivas López, M., Snizhko, S., Müller Schmied, H., 2020. Climate change impact on water availability of main river basins in Ukraine. J. Hydrol. Reg. Stud. 32, 100761. https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2020.100761
- Direction des Risques du Sol et du Sous-sol, 2017. Guide de gestion du risque minier postexploitation (Guide méthodologique No. DRS-17-164640-01814A). INERIS.
- Dold, B., 2017. Acid rock drainage prediction: A critical review. J. Geochem. Explor. 172, 120–132. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2016.09.014
- Drobniewski, M., Witthaus, H., 2017. Monitoring of mine water. Presented at the International mine water association, Lappeenranta, Finland.
- Eary, L.E., Jakubowski, R., Watson, J.E.& A., 2008. Applying numerical hydrogeochemical models as decision support tools for mine closure planning, in: Tailings and Mine Waste '08. CRC Press.
- Environmental Law Alliance Worldwide (ELAW), 2010. Guidebook for Evaluating Mining Project EIAs (Guidebook No. 1st Edition). ELAW.
- Ethier, M.-P., Bussière, B., Broda, S., Aubertin, M., 2018. Three-dimensional hydrogeological modeling to assess the elevated-water-table technique for controlling acid generation from an abandoned tailings site in Quebec, Canada. Hydrogeol. J. 26, 1201–1219. https://doi.org/10.1007/s10040-017-1713-y
- Fala, O., Aubertin, M., Molson, J., Bussière, B., Wilson, G., Chapuis, R., Martin, V., 2003. Numerical Modelling of Unsaturated Flow in Uniform and Heterogeneous Waste Rock Piles. Proc. Sixth Int. Conf. Acid Rock Drain. ICARD.
- Fala, O., Molson, J., Aubertin*, M., Bussière*, B., 2005. Numerical Modelling of Flow and Capillary Barrier Effects in Unsaturated Waste Rock Piles. Mine Water Environ. 24, 172–185. https://doi.org/10.1007/s10230-005-0093-z
- Fiorillo, F., Doglioni, A., 2010. The relation between karst spring discharge and rainfall by cross-correlation analysis (Campania, southern Italy). Hydrogeol. J. 18, 1881–1895. https://doi.org/10.1007/s10040-010-0666-1
- Fisher, R.A., Tippett, L.H.C., 1928. Limiting forms of the frequency distribution of the largest or smallest member of a sample. Math. Proc. Camb. Philos. Soc. 24, 180–190. https://doi.org/10.1017/S0305004100015681
- Fortuna, J., Waterhouse, J., Chapman, P., Gowan, M., 2021. Applying Practical Hydrogeology to Tailings Storage Facility Design and Management. Mine Water Environ. 40, 50–62. https://doi.org/10.1007/s10230-020-00739-x
- Fowler, H.J., Blenkinsop, S., Tebaldi, C., 2007. Linking climate change modelling to impacts studies: recent advances in downscaling techniques for hydrological modelling. Int. J. Climatol. 27, 1547–1578. https://doi.org/10.1002/joc.1556
- Fraipont, P. de, Raines, G., 1984. Les images orbitales : une échelle complémentaire d'analyse de l'environnement structural des gisements de La Crouzille (Limousin, Massif central, France) / The satellite image : a complementary scale for the analyse of the structural control of the La Crouzille uranium deposits. Sci. Géologiques Bull. Mém. 37, 185– 191. https://doi.org/10.3406/sgeol.1984.1664
- Fréchet, M., 1927. Sur la loi de probabilite de l'ecart maximum. Ann Soc Pol. Math.
- Fredlund, D.G., Xing, A., 1994. Equations for the soil-water characteristic curve. Can. Geotech. J. 31, 521–532. https://doi.org/10.1139/t94-061
- Galván, L., Olías, M., Cánovas, C.R., Sarmiento, A.M., Nieto, J.M., 2016. Hydrological modeling of a watershed affected by acid mine drainage (Odiel River, SW Spain). Assessment of the pollutant contributing areas. J. Hydrol. 540, 196–206. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2016.06.005
- Garcia, F., Folton, N., Oudin, L., 2017. Which objective function to calibrate rainfall-runoff models for low-flow index simulations? Hydrol. Sci. J. 62, 1149–1166. https://doi.org/10.1080/02626667.2017.1308511
- Garrido, F., Serrano, S., Barrios, L., Uruñuela, J., Helmhart, M., 2014. Preferential flow and metal distribution in a contaminated alluvial soil from São Domingos mine (Portugal). Geoderma 213, 103–114. https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2013.07.034

- Gaur, Ayushi, Gaur, Abhishek, Simonovic, S.P., 2018. Future Changes in Flood Hazards across Canada under a Changing Climate. Water 10, 1441. https://doi.org/10.3390/w10101441
- Géostock, 1993. Reconnaissance hydrogéologique de la verse et du site (No. GK/BER-93/051 ; BVH/EAM!TT).
- Gerke, H.H., van Genuchten, M.T., 1993. A dual-porosity model for simulating the preferential movement of water and solutes in structured porous media. Water Resour. Res. 29, 305–319. https://doi.org/10.1029/92WR02339
- Gerst, M.D., Graedel, T.E., 2008. In-Use Stocks of Metals: Status and Implications. Environ. Sci. Technol. 42, 7038–7045. https://doi.org/10.1021/es800420p
- GoldSim Technology Group, 2023. Monte Carlo Simulation Software GoldSim [WWW Document]. URL https://www.goldsim.com/Web/Home/ (accessed 9.3.23).
- González-Quirós, A., Fernández-Álvarez, J.P., 2019. Conceptualization and finite element groundwater flow modeling of a flooded underground mine reservoir in the Asturian Coal Basin, Spain. J. Hydrol. 578, 124036. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2019.124036
- Gu, H., Ni, H., Wang, Y., Liu, Y., Li, D., Zhang, Z., 2020. Hydrogeochemical Characteristics and Impact of Arsenic Released from a Gold Deposit in Tibet. Mine Water Environ. 39, 746–757. https://doi.org/10.1007/s10230-020-00732-4
- Gumbel, E.J., 1941. The Return Period of Flood Flows. Ann. Math. Stat. 12, 163–190. https://doi.org/10.1214/aoms/1177731747
- Gupta, H.V., Kling, H., Yilmaz, K.K., Martinez, G.F., 2009. Decomposition of the mean squared error and NSE performance criteria: Implications for improving hydrological modelling. J. Hydrol. 377, 80–91. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2009.08.003
- Gzyl, G., Banks, D., 2007. Verification of the "first flush" phenomenon in mine water from coal mines in the Upper Silesian Coal Basin, Poland. J. Contam. Hydrol. 92, 66–86. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2006.12.001
- Hajizadeh Namaghi, H., Li, S., Jiang, L., 2015. Numerical simulation of water flow in a large waste rock pile, Haizhou coal mine, China. Model. Earth Syst. Environ. 1, 5. https://doi.org/10.1007/s40808-015-0007-4
- Hakkou, R., Benzaazoua, M., Bussière, B., 2008. Acid Mine Drainage at the Abandoned Kettara Mine (Morocco): 1. Environmental Characterization. Mine Water Environ. 27, 145–159. https://doi.org/10.1007/s10230-008-0036-6
- Hamed, K.H., Ramachandra Rao, A., 1998. A modified Mann-Kendall trend test for autocorrelated data. J. Hydrol. 204, 182–196. https://doi.org/10.1016/S0022-1694(97)00125-X
- Hancock, G.R., 2021. A method for assessing the long-term integrity of tailings dams. Sci. Total Environ. 779, 146083. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146083
- Hancock, G.R., Coulthard, T.J., 2022. Tailings dams: Assessing the long-term erosional stability of valley fill designs. Sci. Total Environ. 849, 157692. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.157692
- Hang, Y., Zhang, G., Yang, G., 2009. Numerical simulation of dewatering thick unconsolidated aquifers for safety of underground coal mining. Min. Sci. Technol. China 19, 312–316. https://doi.org/10.1016/S1674-5264(09)60058-2
- Harbaugh, A.W., 2005. MODFLOW-2005 : the U.S. Geological Survey modular ground-water model-the ground-water flow process. US Geological Survey. https://doi.org/10.3133/tm6a16
- Hatje, V., Pedreira, R.M.A., de Rezende, C.E., Schettini, C.A.F., de Souza, G.C., Marin, D.C., Hackspacher, P.C., 2017. The environmental impacts of one of the largest tailing dam failures worldwide. Sci. Rep. 7, 10706. https://doi.org/10.1038/s41598-017-11143-x

- Haws, N., Rao, P., Šimůnek, J., Jirka, Poyer, I., 2005. Single-porosity and dual-porosity modeling of water flow and solute transport in subsurface-drained fields using effective field-scale parameters. J. Hydrol. 313, 257–273. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2005.03.035
- Henriksen, H.J., Jakobsen, A., Pasten-Zapata, E., Troldborg, L., Sonnenborg, T.O., 2021.
 Assessing the impacts of climate change on hydrological regimes and fish EQR in two Danish catchments. J. Hydrol. Reg. Stud. 34, 100798. https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2021.100798
- Hernandez-Suarez, J.S., Nejadhashemi, A.P., Kropp, I.M., Abouali, M., Zhang, Z., Deb, K., 2018. Evaluation of the impacts of hydrologic model calibration methods on predictability of ecologically-relevant hydrologic indices. J. Hydrol. 564, 758–772. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2018.07.056
- Herr, J., Chen, C., Goldstein, R., Herd, R., Brown, J., 2007. Modeling Acid Mine Drainage on a Watershed Scale for TMDL Calculations. JAWRA J. Am. Water Resour. Assoc. 39, 289–300. https://doi.org/10.1111/j.1752-1688.2003.tb04384.x
- Hersey, D., Power, C., 2023. Assessing the importance of drainage layers over geomembrane liners within engineered cover systems: Seven years of field monitoring at three mine waste rock piles. Geotext. Geomembr. https://doi.org/10.1016/j.geotexmem.2023.01.002
- Hotton, G., Bussière, B., Pabst, T., Bresson, É., Roy, P., 2020. Influence of climate change on the ability of a cover with capillary barrier effects to control acid generation. Hydrogeol. J. 28, 763–779. https://doi.org/10.1007/s10040-019-02084-y
- Hrachowitz, M., Clark, M.P., 2017. HESS Opinions: The complementary merits of competing modelling philosophies in hydrology. Hydrol. Earth Syst. Sci. 21, 3953–3973. https://doi.org/10.5194/hess-21-3953-2017
- Hwang, J., Devineni, N., 2022. An Improved Zhang's Dynamic Water Balance Model Using Budyko-Based Snow Representation for Better Streamflow Predictions. Water Resour. Res. 58, e2021WR030203. https://doi.org/10.1029/2021WR030203
- IAEA, 2000. Methods of Exploitation of Different Types of Uranium Deposits (No. IAEA-TECDOC-1174), Methods of Exploitation of Different Types of Uranium Deposits. International Atomic Energy Agency.
- IAEA, OECD, 2002. Environmental Remediation of Uranium Production Facilities, Nuclear Development. OECD Publishing. https://doi.org/10.1787/9789264194809-en
- IPCC, 2021. Climate Change 2021: The Physical Science Basis. (Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change). Cambridge University Press. In Press.
- IPCC, 2014. Climate change 2014 synthesis report. contribution of working groups I, II, and III to the fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Core Writing Team, R.K. Pachauri and L.A. Meyer (eds.)]. Geneva, Switzerland.
- Jacob, D., Petersen, J., Eggert, B., Alias, A., Christensen, O.B., Bouwer, L.M., Braun, A., Colette, A., Déqué, M., Georgievski, G., Georgopoulou, E., Gobiet, A., Menut, L., Nikulin, G., Haensler, A., Hempelmann, N., Jones, C., Keuler, K., Kovats, S., Kröner, N., Kotlarski, S., Kriegsmann, A., Martin, E., van Meijgaard, E., Moseley, C., Pfeifer, S., Preuschmann, S., Radermacher, C., Radtke, K., Rechid, D., Rounsevell, M., Samuelsson, P., Somot, S., Soussana, J.-F., Teichmann, C., Valentini, R., Vautard, R., Weber, B., Yiou, P., 2014. EURO-CORDEX: new high-resolution climate change projections for European impact research. Reg. Environ. Change 14, 563–578. https://doi.org/10.1007/s10113-013-0499-2
- Jacob, D., Teichmann, C., Sobolowski, S., Katragkou, E., Anders, I., Belda, M., Benestad, R., Boberg, F., Buonomo, E., Cardoso, R.M., Casanueva, A., Christensen, O.B.,

Christensen, J.H., Coppola, E., De Cruz, L., Davin, E.L., Dobler, A., Domínguez, M., Fealy, R., Fernandez, J., Gaertner, M.A., García-Díez, M., Giorgi, F., Gobiet, A., Goergen, K., Gómez-Navarro, J.J., Alemán, J.J.G., Gutiérrez, C., Gutiérrez, J.M., Güttler, I., Haensler, A., Halenka, T., Jerez, S., Jiménez-Guerrero, P., Jones, R.G., Keuler, K., Kjellström, E., Knist, S., Kotlarski, S., Maraun, D., van Meijgaard, E., Mercogliano, P., Montávez, J.P., Navarra, A., Nikulin, G., de Noblet-Ducoudré, N., Panitz, H.-J., Pfeifer, S., Piazza, M., Pichelli, E., Pietikäinen, J.-P., Prein, A.F., Preuschmann, S., Rechid, D., Rockel, B., Romera, R., Sánchez, E., Sieck, K., Soares, P.M.M., Somot, S., Srnec, L., Sørland, S.L., Termonia, P., Truhetz, H., Vautard, R., Warrach-Sagi, K., Wulfmeyer, V., 2020. Regional climate downscaling over Europe: perspectives from the EURO-CORDEX community. Reg. Environ. Change 20, 51. https://doi.org/10.1007/s10113-020-01606-9

- Jamson, N.P., Rohde, T.K., Fourie, A.B., Tibbett, M., 2019. Tailings storage facilities storeand-release cover design for the Cobar region. Presented at the Mine Closure 2019: 13th International Conference on Mine Closure, 2019 3-5 September 2019, Perth, Australian Centre for Geomechanics. https://doi.org/10.36487/ACG_rep/1915_50_Jamson
- Janson, E., Łabaj, P., Markowska, M., Wrana, A., Zawartka, P., 2020. A Preliminary Assessment of Climate Change Impacts – Implications for Mining Activity in Polish Coal Regions. Arch. Min. Sci. 2020 Vol 65 No 3 703-717.
- Jarvis, N.J., 2007. A review of non-equilibrium water flow and solute transport in soil macropores: principles, controlling factors and consequences for water quality. Eur. J. Soil Sci. 58, 523–546. https://doi.org/10.1111/j.1365-2389.2007.00915.x
- Jeantet, A., 2022. Durabilité du drainage agricole français sous contrainte de changement climatique (These de doctorat). Sorbonne université.
- Johnson, B.C., Rohal, P.A., Eary, L.E. {Ted}, 2018. Coupling PHREEQC with GoldSim for a More Dynamic Water Modeling Experience. Int. Mine Water Assoc. 6.
- Kalisman, D., Yakirevich, A., Sorek, S., Kamai, T., 2022. Enhancing solute transport by pressure-wave driven flow in unsaturated porous media. J. Hydrol. 612, 128196. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2022.128196
- Kanzari, A., Gérard, M., Boekhout, F., Galoisy, L., Calas, G., Descostes, M., 2017. Impact of incipient weathering on uranium migration in granitic waste rock piles from former U mines (Limousin, France). J. Geochem. Explor. 183, 114–126. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2017.08.010
- Katz, R.W., Parlange, M.B., Naveau, P., 2002. Statistics of extremes in hydrology. Adv. Water Resour. 25, 1287–1304. https://doi.org/10.1016/S0309-1708(02)00056-8
- Kendall, M.G., 1975. Rank Correlation methods.
- Khoeurn, K., Sakaguchi, A., Tomiyama, S., Igarashi, T., 2019. Long-term acid generation and heavy metal leaching from the tailings of Shimokawa mine, Hokkaido, Japan: Column study under natural condition. J. Geochem. Explor. 201, 1–12. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2019.03.003
- Klein, J., Käyhkö, J., Räsänen, A., Groundstroem, F., Eilu, P., 2022. Climate risk perception, management, and adaptation in the Nordic mining sector. Extr. Ind. Soc. 10, 101092. https://doi.org/10.1016/j.exis.2022.101092
- Köhne, J., Köhne, S., Mohanty, B., Šimůnek, J., Jirka, 2004. Inverse Mobile-Immobile Modeling of Transport During Transient Flow: Effects of Between-Domain Transfer and Initial Water Content. Vadose Zone J. - VADOSE ZONE J 3, 1309–1321. https://doi.org/10.2113/3.4.1309
- Köhne, J., Mohanty, B., Šimůnek, J., Jirka, 2006. Inverse Dual-Permeability Modeling of Preferential Water Flow in a Soil Column and Implications for Field-Scale Solute Transport. Vadose Zone J. - VADOSE ZONE J 5. https://doi.org/10.2136/vzj2005.0008

- Köhne, J.M., Köhne, S., Šimůnek, J., 2009. A review of model applications for structured soils: a) Water flow and tracer transport. J. Contam. Hydrol., Preferential Flow 104, 4–35. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2008.10.002
- Kossoff, D., Dubbin, W.E., Alfredsson, M., Edwards, S.J., Macklin, M.G., Hudson-Edwards, K.A., 2014. Mine tailings dams: Characteristics, failure, environmental impacts, and remediation. Appl. Geochem. 51, 229–245. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2014.09.010

Kovács, G., 1981. Seepage hydraulics. Seepage Hydraul.

- Kumpulainen, S., Carlson, L., Räisänen, M.-L., 2007. Seasonal variations of ochreous precipitates in mine effluents in Finland. Appl. Geochem. 22, 760–777. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2006.12.016
- Laanaia, N., Carrer, D., Calvet, J.-C., Pagé, C., 2016. How will climate change affect the vegetation cycle over France? A generic modeling approach. Clim. Risk Manag. 13, 31–42. https://doi.org/10.1016/j.crm.2016.06.001
- Labonté-Raymond, P.-L., Pabst, T., Bussière, B., Bresson, É., 2020. Impact of climate change on extreme rainfall events and surface water management at mine waste storage facilities. J. Hydrol. 590, 125383. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.125383
- Lahmira, B., Lefebvre, R., Aubertin, M., Bussière, B., 2017. Effect of material variability and compacted layers on transfer processes in heterogeneous waste rock piles. J. Contam. Hydrol. 204, 66–78. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2017.07.004
- Lahrouch, F., Guo, N., Hunault, M.O.J.Y., Solari, P.L., Descostes, M., Gerard, M., 2021. Uranium retention on iron oxyhydroxides in post-mining environmental conditions. Chemosphere 264, 128473. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128473
- Larocque, M., Mangin, A., Razack, M., Banton, O., 1998. Contribution of correlation and spectral analyses to the regional study of a large karst aquifer (Charente, France). J. Hydrol. 205, 217–231. https://doi.org/10.1016/S0022-1694(97)00155-8
- Laurent, N., 2018. Rapport d'intervention Pose de piézomètres (No. AN18-1848-V1). Althéa Ingénierie.
- Le Bas, C., 2018. Carte de la Réserve Utile en eau issue de la Base de Données Géographique des Sols de France. https://doi.org/10.15454/JPB9RB
- Le Moine, N., Andréassian, V., Mathevet, T., 2008. Confronting surface- and groundwater balances on the La Rochefoucauld-Touvre karstic system (Charente, France). Water Resour. Res. 44. https://doi.org/10.1029/2007WR005984
- Ledoux, E., Schmitt, J.M., 2010. Étude du fonctionnement hydrogéochimique de l'ancien site minier de Bellezane (Limousin, France) (No. R100119EL BGM/DGS RT 10/004). Centre de Géosciences, École des Mines de Paris, Fontainebleau, France.
- Ledoux, E., Schmitt, J.-M., Combes, P., 1993. Etude hydrologique et hydrogéochimique du site minier de Bertholène (No. LHM/RD/93/93). Ecole des mines de Paris.
- Leiva, E., Cayazzo, M., Dávila, L., Torres, M., Ledezma, C., 2021. Acid Mine Drainage Dynamics from a Paste Tailing Deposit: Effect of Sulfate Content on the Consistency and Chemical Stability after Storage. Metals 11, 860. https://doi.org/10.3390/met11060860
- Lemaitre-Basset, T., Oudin, L., Thirel, G., 2022a. Evapotranspiration in hydrological models under rising CO2: a jump into the unknown. Clim. Change 172, 36. https://doi.org/10.1007/s10584-022-03384-1
- Lemaitre-Basset, T., Oudin, L., Thirel, G., Collet, L., 2022b. Unraveling the contribution of potential evaporation formulation to uncertainty under climate change. Hydrol. Earth Syst. Sci. 26, 2147–2159. https://doi.org/10.5194/hess-26-2147-2022

- Lemaître-Basset, T., Oudin, L., Thirel, G., Collet, L., 2021. Uncertainty on evapotranspiration formulation and its hydrological implication under climate change over France (other). pico. https://doi.org/10.5194/egusphere-egu21-9946
- Lemos, M.G., Valente, T.M., Marinho Reis, A.P., Ferreira Fonseca, R.M., Guabiroba, F., da Mata Filho, J.G., Magalhães, M.F., Delbem, I.D., Rebelo Diório, G., 2023. Adding Value to Mine Waste through Recovery Au, Sb, and As: The Case of Auriferous Tailings in the Iron Quadrangle, Brazil. Minerals 13, 863. https://doi.org/10.3390/min13070863
- Lerat, J., Thyer, M., McInerney, D., Kavetski, D., Woldemeskel, F., Pickett-Heaps, C., Shin, D., Feikema, P., 2020. A robust approach for calibrating a daily rainfall-runoff model to monthly streamflow data. J. Hydrol. 591, 125129. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.125129
- Lersow, M., 2010. Safe closure of uranium mill tailings ponds on basis of long-term stabilityproofs linked with an extensive environmental monitoring. https://doi.org/10.13140/RG.2.1.4805.7364
- Lestini, L., Beaucaire, C., Vercouter, T., Ballini, M., Descostes, M., 2019. Role of Trace Elements in the 226-Radium Incorporation in Sulfate Minerals (Gypsum and Celestite). ACS Earth Space Chem. 3, 295–304. https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.8b00150
- L'Hermite, P., Plagnes, V., Jost, A., Kern, G., Reilé, B., Chautard, C., Descostes, M., 2022. Characterizing groundwater flow in a former uranium mine (Bertholène, France): Present status and future considerations. J. Hydrol. Reg. Stud. 44, 101221. https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2022.101221
- Lieber, E., Demers, I., Pabst, T., Bresson, É., 2022. Simulating the effect of climate change on performance of a monolayer cover combined with an elevated water table placed on acid-generating mine tailings. Can. Geotech. J. 59, 558–568. https://doi.org/10.1139/cgj-2020-0622
- Luan, J., Zhang, Y., Tian, J., Meresa, H., Liu, D., 2020. Coal mining impacts on catchment runoff. J. Hydrol. 589, 125101. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.125101
- Ma, C.-A., Cai, Q., Wang, H., Shao, M., Fan, J., Shi, Z., Wang, F., 2014. Modeling of Water Flow in Reclaimed Mine Spoil with Embedded Lignitic Fragments Using Hydrus-1D. Mine Water Environ. 34. https://doi.org/10.1007/s10230-014-0299-z
- Ma, L., Huang, C., Liu, Z.-S., Morin, K.A., Aziz, M., Meints, C., 2021. Prediction of acid rock drainage in waste rock piles part 2: Water flow patterns and leaching process. J. Contam. Hydrol. 242, 103862. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2021.103862
- Maghsoudy, S., Doulati Ardejani, F., Molson, J., Amini, M., Ebrahimi, L., 2019. Application of Geo-electrical Tomography in Coupled Hydro-mechanical–Chemical Investigations in Heap Leaching. Mine Water Environ. 38, 197–212. https://doi.org/10.1007/s10230-018-0557-6
- Mahowald, N., Lo, F., Zheng, Y., Harrison, L., Funk, C., Lombardozzi, D., Goodale, C., 2016. Projections of leaf area index in earth system models. Earth Syst. Dyn. 7, 211–229. https://doi.org/10.5194/esd-7-211-2016
- Mamo, S., Birhanu, B., Ayenew, T., Taye, G., 2021. Three-dimensional groundwater flow modeling to assess the impacts of the increase in abstraction and recharge reduction on the groundwater, groundwater availability and groundwater-surface waters interaction: A case of the rib catchment in the Lake Tana sub-basin of the Upper Blue Nile River, Ethiopia. J. Hydrol. Reg. Stud. 35, 100831. https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2021.100831
- Mamun, A.A., Shams, S., Nuruzzaman, Md., 2020. Review on uncertainty of the first-flush phenomenon in diffuse pollution control. Appl. Water Sci. 10, 53. https://doi.org/10.1007/s13201-019-1127-1

Mann, H.B., 1945. NonParametric tests against trend Vol. 13.

- Manna, F., Kennel, J., Parker, B.L., 2022. Understanding mechanisms of recharge through fractured sandstone using high-frequency water-level-response data. Hydrogeol. J. 30, 1599–1618. https://doi.org/10.1007/s10040-022-02515-3
- Maqsoud, A., Bussière, B., Mbonimpa, M., Aubertin, M., 2017. Comparison between the predictive modified Kovács model and a simplified one-point method measurement to estimate the water retention curve. Arch. Agron. Soil Sci. 63, 443–454. https://doi.org/10.1080/03650340.2016.1218476
- Maréchal, J.-C., Wyns, R., Lachassagne, P., Subrahmanyam, K., 2004. Vertical anisotropy of hydraulic conductivity in the fissured layer of hard-rock aquifers due to the geological structure of weathering profiles. J. Geol. Soc. India 63, 545–550.
- Mayes, W.M., Perks, M.T., Large, A.R.G., Davis, J.E., Gandy, C.J., Orme, P.A.H., Jarvis, A.P., 2021. Effect of an extreme flood event on solute transport and resilience of a mine water treatment system in a mineralised catchment. Sci. Total Environ. 750, 141693. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.141693
- Mbonimpa, M., Aubertin, M., Bussière, B., 2006. Predicting the unsaturated hydraulic conductivity of granular soils from basic geotechnical properties using the modified Kovács (MK) model and statistical models. Can. Geotech. J. 43, 773–787. https://doi.org/10.1139/t06-044
- Mbonimpa, M., Aubertin, M., Chapuis, R.P., Bussière, B., 2002. Practical pedotransfer functions for estimating the saturated hydraulic conductivity. Geotech. Geol. Eng. 20, 235–259. https://doi.org/10.1023/A:1016046214724
- McMillan, H., Freer, J., Pappenberger, F., Krueger, T., Clark, M., 2010. Impacts of uncertain river flow data on rainfall-runoff model calibration and discharge predictions. Hydrol. Process. 24, 1270–1284. https://doi.org/10.1002/hyp.7587
- Mengistu, H., Tessema, A., Abiye, T., Demlie, M., Lin, H., 2015. Numerical modeling and environmental isotope methods in integrated mine-water management: a case study from the Witwatersrand basin, South Africa. Hydrogeol. J. 23, 533–550. https://doi.org/10.1007/s10040-014-1216-z
- Mengistu, H.A., Demlie, M.B., Abiye, T.A., Xu, Y., Kanyerere, T., 2019. Conceptual hydrogeological and numerical groundwater flow modelling around the Moab Khutsong deep gold mine, South Africa. Groundw. Sustain. Dev. 9, 100266. https://doi.org/10.1016/j.gsd.2019.100266
- Merritt, P., Power, C., 2022. Assessing the long-term evolution of mine water quality in abandoned underground mine workings using first-flush based models. Sci. Total Environ. 846, 157390. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.157390
- Michelangeli, P.-A., Vrac, M., Loukos, H., 2009. Probabilistic downscaling approaches: Application to wind cumulative distribution functions. Geophys. Res. Lett. 36. https://doi.org/10.1029/2009GL038401
- Milly, P.C.D., Dunne, K.A., 2016. Potential evapotranspiration and continental drying. Nat. Clim. Change 6, 946–949. https://doi.org/10.1038/nclimate3046
- Mizukami, N., Rakovec, O., Newman, A.J., Clark, M.P., Wood, A.W., Gupta, H.V., Kumar, R., 2019. On the choice of calibration metrics for "high-flow" estimation using hydrologic models. Hydrol. Earth Syst. Sci. 23, 2601–2614. https://doi.org/10.5194/hess-23-2601-2019
- Mohajerani, H., Zema, D.A., Lucas-Borja, M.E., Casper, M., 2021. Chapter 9 Understanding the water balance and its estimation methods, in: Rodrigo-Comino, J. (Ed.), Precipitation. Elsevier, pp. 193–221. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-822699-5.00019-7

- Mohan, S., Pramada, S.K., Anju, M., 2022. Management of dewatering schemes in an open cast mine operation using groundwater flow modeling: a case study of karst aquifer, Tamil Nadu, India. Acta Geophys. 70, 283–303. https://doi.org/10.1007/s11600-021-00718-y
- Molson, J.W., Fala, O., Aubertin, M., Bussière, B., 2005. Numerical simulations of pyrite oxidation and acid mine drainage in unsaturated waste rock piles. J. Contam. Hydrol. 78, 343–371. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2005.06.005
- Monteith, J.L., 1965. Evaporation and environment. Symp. Soc. Exp. Biol. 19, 205–234.
- Montesarchio, M., Zollo, A.L., Bucchignani, E., Mercogliano, P., Castellari, S., 2014. Performance evaluation of high-resolution regional climate simulations in the Alpine space and analysis of extreme events. J. Geophys. Res. Atmospheres 119, 3222–3237. https://doi.org/10.1002/2013JD021105
- Moreno González, R., Cánovas, C.R., Olías, M., Macías, F., 2020. Seasonal variability of extremely metal rich acid mine drainages from the Tharsis mines (SW Spain). Environ. Pollut. 259, 113829. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113829
- Moses, C.O., Kirk Nordstrom, D., Herman, J.S., Mills, A.L., 1987. Aqueous pyrite oxidation by dissolved oxygen and by ferric iron. Geochim. Cosmochim. Acta 51, 1561–1571. https://doi.org/10.1016/0016-7037(87)90337-1
- Moss, R.H., Edmonds, J.A., Hibbard, K.A., Manning, M.R., Rose, S.K., van Vuuren, D.P., Carter, T.R., Emori, S., Kainuma, M., Kram, T., Meehl, G.A., Mitchell, J.F.B., Nakicenovic, N., Riahi, K., Smith, S.J., Stouffer, R.J., Thomson, A.M., Weyant, J.P., Wilbanks, T.J., 2010. The next generation of scenarios for climate change research and assessment. Nature 463, 747–756. https://doi.org/10.1038/nature08823
- Mu, W., Wu, Q., Xing, Y., Qian, C., Wang, Y., Du, Y., 2018. Using numerical simulation for the prediction of mine dewatering from a karst water system underlying the coal seam in the Yuxian Basin, Northern China. Environ. Earth Sci. 77, 215. https://doi.org/10.1007/s12665-018-7389-3
- Muniruzzaman, M., Karlsson, T., Ahmadi, N., Rolle, M., 2020. Multiphase and multicomponent simulation of acid mine drainage in unsaturated mine waste: Modeling approach, benchmarks and application examples. Appl. Geochem. 120, 104677. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2020.104677
- Munroe, E.A., McLemore, V.T., Kyle, P., 1999. Waste rock pile characterization, heterogeneity, and geochemical anomalies in the Hillsboro Mining District, Sierra County, New Mexico. J. Geochem. Explor. 67, 391–405. https://doi.org/10.1016/S0375-6742(99)00068-0
- Myers, T., 2016. Acid mine drainage risks A modeling approach to siting mine facilities in Northern Minnesota USA. J. Hydrol. 533, 277–290. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2015.12.020
- Mylona, E., Xenidis, A., Csövári, M., Németh, G., 2007. Application of dry covers for the closure of tailings facilities. Land Contam. Reclam. 15, 163–182. https://doi.org/10.2462/09670513.849
- Myneni, R., Knyazikhin, Y., Park, T., 2015. MOD15A2H MODIS/Terra Leaf Area Index/FPAR 8-Day L4 Global 500m SIN Grid V006. https://doi.org/10.5067/MODIS/MOD15A2H.006
- Nalecki, P., Gowan, M., 2008. Mine Water Management Dynamic, Probabilistic Modelling Approach, in: Internation Mine Water Association.
- Nash, J.E., Sutcliffe, J.V., 1970. River flow forecasting through conceptual models part I A discussion of principles. J. Hydrol. 10, 282–290. https://doi.org/10.1016/0022-1694(70)90255-6

- Nerantzaki, S.D., Papalexiou, S.M., 2022. Assessing extremes in hydroclimatology: A review on probabilistic methods. J. Hydrol. 605, 127302. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2021.127302
- Newman, L.L., Herasymuik, G.M., Barbour, S.L., Fredlund, D.G., Smith, T., 1997. The hydrogeology of waste rock dumps and a mechanism for unsaturated preferential flow, in: Proceedings of the 4th Int Conf on Acid Rock Drainage (ICARD). Presented at the Natural Resources Canada, Ottawa, Vancouver, BC, pp. 551–564.
- Nichol, C., Smith, L., Beckie, R., 2005. Field-scale experiments of unsaturated flow and solute transport in a heterogeneous porous medium. Water Resour. Res. 41. https://doi.org/10.1029/2004WR003035
- Niekerk, H.J.V., Viljoen, M.J., 2005. Causes and consequences of the Merriespruit and other tailings-dam failures. Land Degrad. Dev. 16, 201–212. https://doi.org/10.1002/ldr.681
- Ning, T., Zhou, S., Chang, F., Shen, H., Li, Z., Liu, W., 2019. Interaction of vegetation, climate and topography on evapotranspiration modelling at different time scales within the Budyko framework. Agric. For. Meteorol. 275, 59–68. https://doi.org/10.1016/j.agrformet.2019.05.001
- Nordstrom, D., Alpers, C., Ptacek, C., Blowes, D., 2000. Negative pH and Extremely Acidic Mine Waters from Iron Mountain, California. USGS Staff -- Publ. Res.
- Nordstrom, D.K., 2009. Acid rock drainage and climate change. J. Geochem. Explor., Abandoned and active mining sites: From contamination to remediation 100, 97–104. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2008.08.002
- Nos, J., Boizard, A., Peiffert, C., Phrommavanh, V., Cathelineau, M., Descostes, M., 2013. Geochemical characterization of uranium mill tailings. Mineral. Mag. 77, 1818–1868. https://doi.org/10.1180/minmag.2013.077.5.14
- Obasi, P.N., Okolo, C.M., Edene, E.N., 2023. Hydrochemistry and structural control of groundwater flow in the mining areas of Abakaliki, southeast Nigeria. Sustain. Water Resour. Manag. 9, 32. https://doi.org/10.1007/s40899-022-00798-8
- Odell, S.D., Bebbington, A., Frey, K.E., 2018. Mining and climate change: A review and framework for analysis. Extr. Ind. Soc. 5, 201–214. https://doi.org/10.1016/j.exis.2017.12.004
- O'Gorman, P.A., Schneider, T., 2009. The physical basis for increases in precipitation extremes in simulations of 21st-century climate change. Proc. Natl. Acad. Sci. 106, 14773–14777. https://doi.org/10.1073/pnas.0907610106
- Oldecop, L., Libardi, L., Muñoz, J., Pacheco, R.L., Cristóbal, G.-G., 2011. Unsaturated behaviour of mine tailings in low precipitation areas. pp. 1425–1430. https://doi.org/10.13140/RG.2.1.4660.7527
- Oni, S.K., Dillon, P.J., Metcalfe, R.A., Futter, M.N., 2012. Dynamic Modelling of the Impact of Climate Change and Power Flow Management Options using S^{TEL}LA: Application to the Steephill Falls Reservoir, Ontario, Canada. Can. Water Resour. J. Rev. Can. Ressour. Hydr. 37, 125–148. https://doi.org/10.4296/cwrj3702831
- Orano Mining, 2021. Dossier d'information Après-Mines France.
- Orano Mining, 2019. Les différentes méthodes de production de minerai.
- Ouangrawa, M., Aubertin, M., Molson, J.W., Bussière, B., Zagury, G.J., 2010. Preventing Acid Mine Drainage with an Elevated Water Table: Long-Term Column Experiments and Parameter Analysis. Water. Air. Soil Pollut. 213, 437–458. https://doi.org/10.1007/s11270-010-0397-x
- Oudin, L., Andréassian, V., Mathevet, T., Perrin, C., Michel, C., 2006. Dynamic averaging of rainfall-runoff model simulations from complementary model parameterizations. Water Resour. Res. 42. https://doi.org/10.1029/2005WR004636

- Oudin, L., Hervieu, F., Michel, C., Perrin, C., Andréassian, V., Anctil, F., Loumagne, C., 2005. Which potential evapotranspiration input for a lumped rainfall–runoff model? J. Hydrol. 303, 290–306. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2004.08.026
- Ouédraogo, A.A., Jost, A., Plagnes, V., L'Hermite, P., Blanc-Potard, I., Chautard, C., Descostes, M., 2022. Simulation of water flow in a tailings pile at the former uranium mine at Le Cellier (Lozère, France). Hydrogeol. J. 30, 2135–2152. https://doi.org/10.1007/s10040-022-02529-x
- Ouzeau, G., Soubeyroux, J.-M., Schneider, M., Vautard, R., Planton, S., 2016. Heat waves analysis over France in present and future climate: Application of a new method on the EURO-CORDEX ensemble. Clim. Serv. 4, 1–12. https://doi.org/10.1016/j.cliser.2016.09.002
- Pabst, T., Bussière, B., Aubertin, M., Molson, J., 2018. Comparative performance of cover systems to prevent acid mine drainage from pre-oxidized tailings: A numerical hydrogeochemical assessment. J. Contam. Hydrol. 214, 39–53. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2018.05.006
- Page, C., Christian, Terray, L., Laurent, Boé, Julien, 2009. dsclim: A software package to downscale climate scenarios at regional scale using a weather-typing based statistical methodology 58.
- Paktunc, A.D., 1999. Mineralogical constraints on the determination of neutralization potential and prediction of acid mine drainage. Environ. Geol. 39, 103–112. https://doi.org/10.1007/s002540050440
- Pearce, T.D., Ford, J.D., Prno, J., Duerden, F., Pittman, J., Beaumier, M., Berrang-Ford, L., Smit, B., 2011. Climate change and mining in Canada. Mitig. Adapt. Strateg. Glob. Change 16, 347–368. https://doi.org/10.1007/s11027-010-9269-3
- Pechlivanidis, I.G., Jackson, B.M., McIntyre, N.R., Wheater, H.S., 2011. Catchment scale hydrological modelling: A review of model types, calibration approaches and uncertainty analysis methods in the context of recent developments in technology and applications. Glob. NEST J. 13, 193–214. https://doi.org/10.30955/gnj.000778
- Perrin, C., Michel, C., Andréassian, V., 2003. Improvement of a parsimonious model for streamflow simulation. J. Hydrol. 279, 275–289. https://doi.org/10.1016/S0022-1694(03)00225-7
- Petpongpan, C., Ekkawatpanit, C., Visessri, S., Kositgittiwong, D., 2021. Projection of Hydro-Climatic Extreme Events under Climate Change in Yom and Nan River Basins, Thailand. Water 13, 665. https://doi.org/10.3390/w13050665
- Philip, J.R., 1968. The theory of absorption in aggregated media. Soil Res. 6, 1–19. https://doi.org/10.1071/sr9680001
- Phillips, J., 2016. Climate change and surface mining: A review of environment-human interactions & their spatial dynamics. Appl. Geogr. 74, 95–108. https://doi.org/10.1016/j.apgeog.2016.07.001
- Plagnes, V., Schmid, B., Mitchell, B., Judd-Henrey, I., 2017. Water balance modelling of a uranium mill effluent management system. J. Hydrol. 549, 741–753. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2017.03.051
- Portela, M., Santos, J., de Carvalho Studart, T., 2019. Effect of the Evapotranspiration of Thornthwaite and of Penman-Monteith in the Estimation of Monthly Streamflows Based on a Monthly Water Balance Model. https://doi.org/10.5772/intechopen.88441
- Prein, A.F., Gobiet, A., Truhetz, H., Keuler, K., Goergen, K., Teichmann, C., Fox Maule, C., van Meijgaard, E., Déqué, M., Nikulin, G., Vautard, R., Colette, A., Kjellström, E., Jacob, D., 2016. Precipitation in the EURO-CORDEX \$\$0.11^{\circ} }\$ and \$\$0.44^{\circ} }\$ simulations: high resolution, high benefits? Clim. Dyn. 46, 383–412. https://doi.org/10.1007/s00382-015-2589-y

- Puhlmann, T., Voss, C., Esper, J., Amaral, R.D., 2006. Development and operation of a water balance at Rio Paracatu Mineracao, Brazil. J. Am. Soc. Min. Reclam. 2006, 1632–1641. https://doi.org/10.21000/JASMR06021632
- QGIS Development Team, 2023. QGIS Geographic Information System. QGIS Association.
- Qu, S., Shi, Z., Wang, G., Han, J., 2021. Application of multiple approaches to investigate hydraulic connection in multiple aquifers system in coalfield. J. Hydrol. 595, 125673. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.125673
- Rapantova, N., Grmela, A., Vojtek, D., Halir, J., Michalek, B., 2007. Ground Water Flow Modelling Applications in Mining Hydrogeology. Mine Water Environ. 26, 264–270. https://doi.org/10.1007/s10230-007-0017-1
- Raymond, K.E., Seigneur, N., Su, D., Mayer, K.U., 2021. Investigating the Influence of Structure and Heterogeneity in Waste Rock Piles on Mass Loading Rates—A Reactive Transport Modeling Study. Front. Water 3.
- Renard, B., 2008. Détection et prise en compte d'éventuels impacts du changement climatique sur les extrêmes hydrologiques en France. Houille Blanche 109–117. https://doi.org/10.1051/lhb:2008012
- Ribes, A., Thao, S., Vautard, R., Dubuisson, B., Somot, S., Colin, J., Planton, S., Soubeyroux, J.-M., 2019. Observed increase in extreme daily rainfall in the French Mediterranean. Clim. Dyn. 52, 1095–1114. https://doi.org/10.1007/s00382-018-4179-2
- Richards, L.A., 1931. Capillary conduction of liquids through porous mediums. Physics 1, 318–333. https://doi.org/10.1063/1.1745010
- Roemer, G., Gabora, M., Hudson, A., Williamson, M., Levy, D., O'Brien, G., Krizek, D., 2012. Hydrogeologic and Geochemical Prediction of Rosemont Pit Lake Using Three Different Modeling Programs.
- Ronchi, B., Stassen, F., Drevet, J.-P., Frippiat, C.C., Berger, J.-L., Dingelstadt, C., Veschkens, M., 2018. Long-Term Time-Series Analysis to Understand Groundwater Flow in Abandoned Subsurface Mines with Application to a Coalfield in Liège, Belgium. Mine Water Environ. 37, 470–481. https://doi.org/10.1007/s10230-018-0528-y
- Sahu, P., López, D.L., Stoertz, M.W., 2009. Using Time Series Analysis of Coal Mine Hydrographs to Estimate Mine Storage, Retention Time, and Mine-pool Interconnection. Mine Water Environ. 28, 194–205. https://doi.org/10.1007/s10230-009-0076-6
- Santos, E.B., Lucio, P.S., Santos e Silva, C.M., 2016. Estimating return periods for daily precipitation extreme events over the Brazilian Amazon. Theor. Appl. Climatol. 126, 585–595. https://doi.org/10.1007/s00704-015-1605-9
- Schmitt, J.M., Lions, J., Ledoux, E., 2002. Réévaluation de l'évolution hydrogéologique et hydrochimique du site de Bertholène (Aveyron): modélisation prédictive intégrée de l'ensemble du site minier (No. LHM/RD/02/23). Ecole des mines de Paris.
- Schmitt, J.-M., Tardy, Y., 1986. Albitisation triasique, hydrothermalisme jurassique et altération supergène récente : métallogénie des gisements uranifères du Rouergue. Strasbourg 1.
- Seigneur, N., De Windt, L., Déjeant, A., Lagneau, V., Descostes, M., 2021. Long-Term Evolution of Uranium Mobility within Sulfated Mill Tailings in Arid Regions: A Reactive Transport Study. Minerals 11, 1201. https://doi.org/10.3390/min11111201
- Sen, P.K., 1968. Estimates of the Regression Coefficient Based on Kendall's Tau. J. Am. Stat. Assoc. 63, 1379–1389. https://doi.org/10.2307/2285891
- Sharma, V., 2017. Mining and Climate Change, in: O'Callaghan, T., Graetz, G. (Eds.), Mining in the Asia-Pacific, The Political Economy of the Asia Pacific. Springer International Publishing, Cham, pp. 301–320. https://doi.org/10.1007/978-3-319-61395-6_18

- Sharma, V., 2013. Extractive resource development in a changing climate: learning the lessons from extreme weather events in Queensland, Australia (Report). National Climate Change Adaptation Research Facility.
- Shaw, S.B., Riha, S.J., 2011. Assessing temperature-based PET equations under a changing climate in temperate, deciduous forests. Hydrol. Process. 25, 1466–1478. https://doi.org/10.1002/hyp.7913
- Shen, H., Tolson, B.A., Mai, J., 2022. Time to Update the Split-Sample Approach in Hydrological Model Calibration. Water Resour. Res. 58, e2021WR031523. https://doi.org/10.1029/2021WR031523
- Šimůnek, J., Hopmans, J.W., 2009. Modeling compensated root water and nutrient uptake. Ecol. Model. 220, 505–521. https://doi.org/10.1016/j.ecolmodel.2008.11.004
- Šimůnek, J., Jarvis, N.J., van Genuchten, M., Gärdenäs, A., 2003. Review and comparison of models for describing non-equilibrium and preferential flow and transport in the vadose zone. J. Hydrol. 272, 14.
- Šimůnek, J., Köhne, M., Kodešová, R., Šejna, M., 2008a. Simulating nonequilibrium movement of water, solutes and particles using hydrus a review of recent applications. Soil Water Res. 3, S42–S51. https://doi.org/10.17221/1200-SWR
- Šimůnek, J., Saito, H., Sakai, M., van Genuchten, M., 2008b. The HYDRUS-1D Software Package for Simulating the One-Dimensional Movement of Water, Heat, and Multiple Solutes in Variably-Saturated Media.
- Šimůnek, J., van Genuchten, M.Th., 2008. Modeling Nonequilibrium Flow and Transport Processes Using HYDRUS. Vadose Zone J. 7, 782–797. https://doi.org/10.2136/vzj2007.0074
- Slimene, E.B., Lassabatere, L., Šimůnek, J., Winiarski, T., Gourdon, R., 2017. The role of heterogeneous lithology in a glaciofluvial deposit on unsaturated preferential flow – a numerical study. J. Hydrol. Hydromech. 65, 209–221. https://doi.org/10.1515/johh-2017-0004
- Song, X., Sun, W., Zhang, Y., Song, S., Li, J., Gao, Y., 2020. Using hydrological modelling and data-driven approaches to quantify mining activities impacts on centennial streamflow. J. Hydrol. 585, 124764. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.124764
- Soubeyroux, J.-M., Bernus, S., Corre, L., Drouin, A., Dubuisson, B., Etchevers, P., Gouget, V., Josse, P., Kerdoncuff, M., Samacoits, R., Tocquer, F., 2020. Les nouvelles projections climatiques de référence DRIAS 2020 pour la métropole. Météo France.
- SRK, 1989. Draft Acid Rock Drainage Technical Guide: Volume 1: British Columbia Acid Mine Drainage Task Force Report Prepared by Steffen, Robertson, Kirsten in Association with Norecol Environmental Consultants and Gormely Process Engineering. Province of British Columbia, Ministry of Energy Mines and Petroleum Resources.
- Stockwell, J., Smith, L., Jambor, J.L., Beckie, R., 2006. The relationship between fluid flow and mineral weathering in heterogeneous unsaturated porous media: A physical and geochemical characterization of a waste-rock pile. Appl. Geochem. 21, 1347–1361. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2006.03.015
- Sun, W., Song, X., Zhang, Y., Chiew, F., Post, D., Zheng, H., Song, S., 2020. Coal Mining Impacts on Baseflow Detected Using Paired Catchments. Water Resour. Res. 56, e2019WR025770. https://doi.org/10.1029/2019WR025770
- Sun, Y., Yang, Y., Huang, N., Zou, X., 2020. The impacts of climate change risks on financial performance of mining industry: Evidence from listed companies in China. Resour. Policy 69, 101828. https://doi.org/10.1016/j.resourpol.2020.101828
- Surinaidu, L., Rao, V.V.S.G., Rao, N.S., Srinu, S., 2014. Hydrogeological and groundwater modeling studies to estimate the groundwater inflows into the coal Mines at different

mine development stages using MODFLOW, Andhra Pradesh, India. Water Resour. Ind. 7–8, 49–65. https://doi.org/10.1016/j.wri.2014.10.002

- Szczepiński, J., 2019. The Significance of Groundwater Flow Modeling Study for Simulation of Opencast Mine Dewatering, Flooding, and the Environmental Impact. Water 11, 848. https://doi.org/10.3390/w11040848
- Tabelin, C.B., Igarashi, T., Villacorte-Tabelin, M., Park, I., Opiso, E.M., Ito, M., Hiroyoshi, N., 2018. Arsenic, selenium, boron, lead, cadmium, copper, and zinc in naturally contaminated rocks: A review of their sources, modes of enrichment, mechanisms of release, and mitigation strategies. Sci. Total Environ. 645, 1522–1553. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.07.103
- Tannor, S.J., Borgemeister, C., Addo–Danso, S.D., Greve, K., Tischbein, B., 2023. Climate variability and mining sustainability: exploring operations' perspectives on local effects and the willingness to adapt in Ghana. SN Bus. Econ. 3, 141. https://doi.org/10.1007/s43546-023-00515-3
- Tavakoli, S., Rasmussen, T.M., 2022. Geophysical tools to study the near-surface distribution of the tailings in the Smaltjärnen repository, south-central Sweden; a feasibility study. Acta Geophys. 70, 141–159. https://doi.org/10.1007/s11600-021-00697-0
- Terray, L., Boé, J., 2013. Quantifying 21st-century France climate change and related uncertainties. Comptes Rendus Geosci. 345, 136–149. https://doi.org/10.1016/j.crte.2013.02.003
- Thirel, G., Andréassian, V., Perrin, C., 2015. On the need to test hydrological models under changing conditions. Hydrol. Sci. J. 60, 1165–1173. https://doi.org/10.1080/02626667.2015.1050027
- Thornthwaite, C.W., 1948. An Approach toward a Rational Classification of Climate. Geogr. Rev. 38, 55. https://doi.org/10.2307/210739
- Tirogo, J., Jost, A., Biaou, A., Valdes-Lao, D., Koussoubé, Y., Ribstein, P., 2016. Climate Variability and Groundwater Response: A Case Study in Burkina Faso (West Africa). Water 8, 171. https://doi.org/10.3390/w8050171
- Tomiyama, S., Igarashi, T., Tabelin, C.B., Tangviroon, P., Ii, H., 2020. Modeling of the groundwater flow system in excavated areas of an abandoned mine. J. Contam. Hydrol. 230, 103617. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2020.103617
- Tramblay, Y., Neppel, L., Carreau, J., Sanchez-Gomez, E., 2012. Extreme value modelling of daily areal rainfall over Mediterranean catchments in a changing climate. Hydrol. Process. 26, 3934–3944. https://doi.org/10.1002/hyp.8417
- Tramblay, Y., Somot, S., 2018. Future evolution of extreme precipitation in the Mediterranean. Clim. Change 151, 289–302. https://doi.org/10.1007/s10584-018-2300-5
- Triganon, A., 2013. Modélisation hydrogéologique et géochimique du drainage acide minier du site de Bertholène – APS d'aménagement pour limiter les rejets du site (Prestation No. RBENSE0305- 03). BURGEAP.
- Tum, S., Matsumoto, S., Nishikata, M., Yasutaka, T., 2023. Assessment of seasonal changes in groundwater quality of waste rock dump in temperate continental climate, northern Japan. Chemosphere 327, 138482. https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2023.138482
- Tum, S., Toda, K., Matsui, T., Kikuchi, R., Kong, S., Meas, P., Ear, U., Ohtomo, Y., Otake, T., Sato, T., 2022. Seasonal effects of natural attenuation on drainage contamination from artisanal gold mining, Cambodia: Implication for passive treatment. Sci. Total Environ. 806, 150398. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150398
- USGS, 2022. Mineral commodity summaries 2022 (Report No. 2022), Mineral Commodity Summaries. Reston, VA. https://doi.org/10.3133/mcs2022

- Usher, B., Strand, R., Strachotta, C., Jackson, J., 2010. Linking fundamental geochemistry and empirical observations for water quality predictions using GoldSim. Mine Water Innov. Think. 4.
- van Genuchten, M., 1987. A Numerical Model for Water and Solute Movement in and Below the Root Zone. United States Department of Agriculture Agricultural Research Service U.S. Salinity Laboratory.
- van Genuchten, M., 1980. A Closed-form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. Soil Sci. Soc. Am. J. 44, 892–898. https://doi.org/10.2136/sssaj1980.03615995004400050002x
- van Genuchten, M., Leij, F., Yates, S., Williams, J., 1991. The RETC Code for Quantifying Hydraulic Functions of Unsaturated Soils. EPA6002-91065 RS 83.
- van Genuchten, M., Wierenga, P.J., 1976. Mass Transfer Studies in Sorbing Porous Media I. Analytical Solutions. Soil Sci. Soc. Am. J. 40, 473–480. https://doi.org/10.2136/sssaj1976.03615995004000040011x
- Varvaris, I., Børgesen, C.D., Kjærgaard, C., Iversen, B.V., 2018. Three Two-Dimensional Approaches for Simulating the Water Flow Dynamics in a Heterogeneous Tile-Drained Agricultural Field in Denmark. Soil Sci. Soc. Am. J. 82, 1367–1383. https://doi.org/10.2136/sssaj2018.05.0190
- Varvaris, I., Pittaki-Chrysodonta, Z., Duus Børgesen, C., Iversen, B.V., 2021. Parameterization of two-dimensional approaches in HYDRUS-2D: Part 1. Simulating water flow dynamics at the field scale. Soil Sci. Soc. Am. J. 85, 1578–1599. https://doi.org/10.1002/saj2.20307
- Vaze, J., Post, D.A., Chiew, F.H.S., Perraud, J.-M., Viney, N.R., Teng, J., 2010. Climate nonstationarity – Validity of calibrated rainfall–runoff models for use in climate change studies. J. Hydrol. 394, 447–457. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2010.09.018
- Verfaillie, D., Déqué, M., Morin, S., Lafaysse, M., 2017. The method ADAMONT v1.0 for statistical adjustment of climate projections applicable to energy balance land surface models. Geosci. Model Dev. 10, 4257–4283. https://doi.org/10.5194/gmd-10-4257-2017
- Vremec, M., Forstner, V., Herndl, M., Collenteur, R., Schaumberger, A., Birk, S., 2023. Sensitivity of evapotranspiration and seepage to elevated atmospheric CO2 from lysimeter experiments in a montane grassland. J. Hydrol. 617, 128875. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2022.128875
- Vrugt, J.A., Hopmans, J.W., Šimunek, J., 2001. Calibration of a Two-Dimensional Root Water Uptake Model. Soil Sci. Soc. Am. J. 65, 1027–1037. https://doi.org/10.2136/sssaj2001.6541027x
- Vukovic, M., Soro, A., 1992. Determination of Hydraulic Conductivity of Porous Media from Grain-size Composition. Water Resources Publications.
- Watari, T., Nansai, K., Nakajima, K., 2021. Major metals demand, supply, and environmental impacts to 2100: A critical review. Resour. Conserv. Recycl. 164, 105107. https://doi.org/10.1016/j.resconrec.2020.105107
- Watson, A., Midgley, G., Ray, P., Kralisch, S., Helmschrot, J., 2022. How Climate Extremes Influence Conceptual Rainfall-Runoff Model Performance and Uncertainty. Front. Clim. 4.
- Wels, C., Mackie, D., Scibek, J., 2012. Guidelines for Groundwater Modelling to Assess Impacts of Proposed Natural Resource Development Activities, British Columbia Ministry of Environment. ed.
- Whitman, S.K., Breitmeyer, R.J., 2019. Sensitivity of Percolation Estimates to Modeling Methodology: A Case Study at an Unlined Tailings Facility with Limited Monitoring Data. Mine Water Environ. 38, 294–309. https://doi.org/10.1007/s10230-019-00591-8

- Wickham, M., Johnson, B., Johnson, D., 2004. Dynamic systems-modeling approach to evaluating hydrologic implications of backfill designs. Min. Eng. 56, 30–34.
- WMA, 2020. World Uranium Mining World Nuclear Association [WWW Document]. URL https://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/mining-of-uranium/world-uranium-mining-production.aspx (accessed 1.29.21).
- Wolkersdorfer, C., 2008. Water Management at Abandoned Flooded Underground Mines Fundamentals, Tracer Tests, Modelling, Water Treatment, Water Management at Abandoned Flooded Underground Mines: Fundamentals, Tracer Tests, Modelling, Water Treatment. https://doi.org/10.1007/978-3-540-77331-3
- Wolkersdorfer, C., Nordstrom, D.K., Beckie, R.D., Cicerone, D.S., Elliot, T., Edraki, M., Valente, T., França, S.C.A., Kumar, P., Lucero, R.A.O., Soler i Gil, A., 2020. Guidance for the Integrated Use of Hydrological, Geochemical, and Isotopic Tools in Mining Operations. Mine Water Environ. 39, 204–228. https://doi.org/10.1007/s10230-020-00666-x
- World Nuclear Association, 2023. Uranium Production | Uranium Output World Nuclear Association [WWW Document]. URL https://www.world-nuclear.org/information-library/facts-and-figures/uranium-production-figures.aspx (accessed 8.27.23).
- Yilmaz, E., Koohestani, B., Cao, S., 2023. Chapter 13 Recent practices in mine tailings' recycling and reuse, in: Qi, C., Benson, C.H. (Eds.), Managing Mining and Minerals Processing Wastes. Elsevier, pp. 271–304. https://doi.org/10.1016/B978-0-323-91283-9.00013-4
- Zhang, L., Dawes, W.R., Walker, G.R., 2001. Response of mean annual evapotranspiration to vegetation changes at catchment scale. Water Resour. Res. 37, 701–708. https://doi.org/10.1029/2000WR900325
- Zhang, L., Potter, N., Hickel, K., Zhang, Y., Shao, Q., 2008. Water balance modeling over variable time scales based on the Budyko framework – Model development and testing. J. Hydrol. 360, 117–131. https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2008.07.021
- Zhang, Y., Liu, H., Qi, J., Feng, P., Zhang, X., Liu, D.L., Marek, G.W., Srinivasan, R., Chen, Y., 2023. Assessing impacts of global climate change on water and food security in the black soil region of Northeast China using an improved SWAT-CO2 model. Sci. Total Environ. 857, 159482. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.159482
- Zhang, Z., Chen, Xi, Chen, Xunhong, Shi, P., 2013. Quantifying time lag of epikarst-spring hydrograph response to rainfall using correlation and spectral analyses. Hydrogeol. J. 21, 1619–1631. https://doi.org/10.1007/s10040-013-1041-9

Annexe

Article Ouédraogo et al. (2022)

REPORT



Simulation of water flow in a tailings pile at the former uranium mine at Le Cellier (Lozère, France)

Ahmeda Assann Ouédraogo¹ · Anne Jost¹ · Valérie Plagnes¹ · Pierre L'Hermite¹ · Isabelle Blanc-Potard² · Camille Chautard³ · Michael Descostes^{3,4}

Received: 4 February 2022 / Accepted: 5 August 2022 © The Author(s), under exclusive licence to International Association of Hydrogeologists 2022

Abstract

Water flow is an essential aspect in the long-term management of mine tailings. Flow through tailings piles deposited on the surface influence chemical reactions and the migration of pollutants into the environment. This study focuses on one of the tailings piles from the former Le Cellier mining site (Lozère, France) resulting from uranium heap leaching. The site is now decommissioned, and all seepage water is collected and treated before release into the environment, with monitoring on a daily or monthly basis since 1991. From the calculated water balance, it is noted that evapotranspiration corresponds to 45% of the precipitation and affects the hydrological behaviour of the pile in summer and autumn. Auto-correlation analyses suggest that the drain discharges have a low inertia with a memory effect of 2–3 months. The cross-correlations between the rainfall and the drain discharges indicate a quarterly to semiannual pattern, in which the flows react to rainfall and influence the chemical parameters. A hydrodynamic model was developed with the HYDRUS software package, which describes the expected average hydrologic behaviour of the pile according to the monthly observed discharge data (2010–2018). The homogeneous and the stochastic distributions of hydraulic conductivity produced simulations showing that the water distribution in the pile varies seasonally according to the wet and the dry periods. However, the water content (2.9–3.8%) remains low throughout the simulation period, suggesting a possible reactivity of the tailings and that, during rainfall events, leaching and dissolution of residual acid from sulphate-bearing minerals increase.

Keywords Mining · Water balance · Unsaturated zone · Modelling · France

Introduction

Mine tailings can be defined as deposits that result from mining and/or ore processing. These tailings may be natural (waste rock or mineralised products that are not of value in the mining process) or artificial products, more or

 Ahmeda Assann Ouédraogo oahmedaassann@gmail.com
 Anne Jost anne.jost@sorbonne-universite.fr
 Valérie Plagnes valerie.plagnes@sorbonne-universite.fr

Pierre L'Hermite pierre.lhermite@sorbonne-universite.fr

Isabelle Blanc-Potard isabelle.blanc-potard@orano.group

Camille Chautard cam.chautard@gmail.com

less processed, resulting from ore processing and enrichment phases containing possible chemical or organic additives (BRGM 1997). Tailings grains can be coarse or very fine, homogenous or not, but it appears from previous studies that tailings generally constitute a heterogeneous environment characterised by coarse materials. Depending

Michael Descostes michael.descostes@orano.group

- ¹ Sorbonne Université, CNRS, EPHE, METIS, F-75005 Paris, France
- ² AMF, Orano Mining, Châtillon, France
- ³ Environmental R&D Department, Orano Mining, Châtillon, France
- ⁴ Centre de Géosciences, MINES ParisTech, PSL University, 35 rue St Honoré, 77300 Fontainebleau, France

on the site, these mine materials are generally deposited in piles that are 10-150 m high and have a surface area of up to several square kilometres (Blowes 1997; Hajizadeh Namaghi et al. 2015). A common feature of all tailings is the increase in the exchange surfaces between the rock and water or air compared to the in-situ rock following the crushing, sorting and treatment of the rocks during the mining process. When stored on the surface, these more or less coarse-grained materials are in contact with the atmosphere and meteoric water, and form systems that react with their immediate environment. The environmental impact of these surface stockpiles of tailings depends mainly on storage methods, the location of the pile in the local environmental context and the specific characteristics of the mine-type of mined ore, size of the deposit, mineral and chemical composition of the mined ore and the treatment undergone by the tailings (Morin et al. 1991; Fala et al. 2005; Aubertin et al. 2009). Therefore, it is important to manage these tailings in order to minimise any damage they may cause to the environment.

In the case of reactive tailings piles, acid mine drainage (AMD) may be generated by the oxidation of sulphurous minerals remaining in the tailings (pyrite, pyrrhotite, etc.; Bussière et al. 2005). In order to achieve significant oxidation of pyrite, it is generally necessary for oxygen to be in a gaseous state. As oxygen solubility and diffusivity are low in water, pyrite oxidation is then strongly influenced by the degree of water saturation within the pile. Furthermore, in the case of acidic heap leaching, the concomitant dissolution of residual acid from sulphate bearing minerals, and the desorption of protons from the clay minerals' surfaces increase the release of acid from the tailings. Thus, predicting and controlling acid generation in tailings piles deposited on the surface requires detailed knowledge of the distribution and movement of water.

The distribution and movement of water in these heterogeneous materials can be represented mathematically with a classical porous medium approach, as described by the Richards equation (Richards 1931). However, preferential flows which are identified in mine waste rocks occur through macro-pores or other open spaces similar to fractures resulting in very high local hydraulic conductivities. These flows can reach several cubic metres per day (Broda et al. 2013), hence the need to include preferential flows in the conceptual approach. Water flow in mine tailings can thus be addressed by considering a double porosity approach (Blackmore et al. 2018). Fractures, which are randomly distributed according to their length, opening and orientation, are integrated into the conceptual models to represent preferential flows (Broda et al. 2013, 2015). Finally, another approach to this question of heterogeneity uses stochastic analysis (Fala et al. 2005, 2013; Broda et al. 2013; Ma et al. 2021) where it is considered that a stochastic process controls the spatial distribution of the parameters (water content, hydraulic conductivity, suction) of the medium.

Numerical models that allow a certain complexity to be integrated with a mechanistic description of the phenomena (Amos et al. 2015; Muniruzzaman et al. 2020) are a valuable tool for the study of the hydrological processes related to acidification of such environments. From the studies of experimental piles whose hydraulic characteristics were known, Aubertin et al. (2005), Fala et al. (2005), Aubertin et al. (2009) and Poaty et al. (2022) show that, assuming homogeneous conditions, the wetting front in the pile was deeper in the fine materials compared to the coarse materials and that the speed of advance of this front depends on the material granulometry, the initial conditions and the boundary conditions (precipitation, evapotranspiration and the initial state of humidity of the pile) of the model. Their studies also show that in a heterogeneous pile of sand and gravel layers, water can travel deeper and faster than in a homogeneous pile through preferential flow, and if the sand is mixed into the gravel (fine material elements mixed into a pile of coarse elements), the fine material is not effective to prevent the infiltration of water downwards and towards the centre of the pile. On the other hand, if the sand layer is inclined (at 5%), an accumulation of water in the sand layer (fine layer), an outward flow direction and a very low watercontent environment are noted. This last scenario, where the dense and finer-grained layers act as a barrier and divert water away from the pile, is appropriate for water management at mine sites as the interest is to isolate deeper tailings from air and water interactions and also to improve the quality of percolating water (Dawood and Aubertin 2014; Lahmira et al. 2017). An important factor to consider in the functioning for these capillary barrier covers is changes in climate, which could impact positively during wet periods (heavy rainfall) by maintaining moisture in the thin cover placed on top of the tailings and negatively during dry periods when temporal desaturation of the thin cover increases the potential for acid generation in the environment (Hotton et al. 2020).

Studies from the literature that deal with water flow and moisture in tailings mostly concern experimental sites in the field or in laboratories, and the studies sometimes pay particular attention to the capillary barriers (thin layer) that are supposed to isolate the tailings from water and improve pile management. Analyses of the hydraulic properties of the pile materials at different depths, sometimes accompanied by geophysical studies (Anterrieu et al. 2010; Dawood et al. 2011; Dimech et al. 2019; Wu et al. 2021), are used to develop models from regional input data (precipitation, evapotranspiration). However, there is a lack of hydrological studies carried out directly on real decommissioned mine sites where the tailings piles are directly exposed at the surface and based on a heterogeneous structure resulting from a complex historical site development. Such studies are important for estimating the spatial and temporal distribution of water content within the tailings piles, which has a direct impact on geochemical reactions and in particular on acidification processes. These studies rely on the availability of long-term hydrological observations. In this respect, the study reported here is based on a real tailings pile located at a former mine site in France which is currently under environmental monitoring. Standard climatic data, which were collected daily, in addition to tailings pile discharges measured monthly for 10 years, provide the long-term data required to constrain a water flow model of the site. This model aims to understand the complexity of the interactions between air, water and tailings under real conditions and to assess the impact of the heterogeneous nature of the waste deposits on these interactions. For this purpose, this study combined the available data at monthly intervals to describe the seasonal hydrodynamic behaviour of the pile. First, the water balance was computed and a correlation analysis was undertaken. Then, a two-dimensional (2D) flow model of the pile was developed using HYDRUS software in order to simulate discharges and water saturation conditions within the pile according to different representations of hydraulic property heterogeneity.

Study area

The Le Cellier site is located in the south of France in the region of Lozère (Fig. 1). Managed by the Orano Group, the site belongs to the Grandrieu mining concession, which covers 66.4 km². The climate of the region is subcontinental, cold and dry. The site is located at an elevation of 1,200 m above sea level on a granite plateau and the surroundings alternate between woods and pasture, sometimes swampy, with low slopes of 10 to 20%. The geology of the region is characterised by the crystalline massif of the Margeride.

The activities that took place on Le Cellier are summarised as follows (Mica-Environnement 2018): there was underground mining and open pit mining from 1956



Fig. 1 Situation of the study area: a map of France; b location of the Lozère region and c layout of the former mining site Le Cellier

to 1988, and mineral processing directly on site. As for ore treatment, two types could be distinguished: dynamic treatment at the plant for uranium-rich ores (>0.4%) and static pile treatment. This latter treatment combined part of the effluents from the dynamic treatment with poor ores (0.2%). Then, the acid was discharged via boreholes in the heaps to dissolve the remaining uranium and the resulting slurry was recovered by drains installed at the base of the pile. In 1990, mining activities stopped at Le Cellier and since then the mine tailings have been stored directly on the site, in particular in piles which underwent static leaching (piles 1, 3; see location in Fig. 1c). The piles are therefore the result of the post-mining management of the tailings on the site. During periods of rain, the residual acid (the acid previously used for static treatment) is dissolved back into solution leading to a discharge of acidic effluent; hence, the importance of understanding the water flows and water saturation conditions within the piles. This study is focused on pile 2.

Pile 2 is characterised by horizontal layers that were deposited during three distinct periods (Fig. 2), which correspond to zones A, B, C. The pile 2 structure is described as follows:

- Zone A (1982–1990): from the top of the pile to ~ 5 m of depth, a cover of waste rock and ore with little acid attack as the sulphuric acid was injected a few metres further down
- Zone B (1978–1982): from 5 to 22 m of depth, ores entering at 0.19 % uranium (U) leached under the cover by acid injection using a borehole. This layer rests on

an artificial settlement barrier made of compacted waste rock (red-dotted line at a depth of 22 m)

- Zone C (1975–1978): about 10 m thick, from 22 to 32 • m of depth, ores crushed and leached in a stall (at 0.4% incoming U) then leached by acid sprinkling
- Zone D: natural soil and granitic substrate

A drainage system collects the water that runs off and percolates through the pile.

Materials and methods

Description of the data

The data used in this study were collected by Mica-Environnement, a French consulting service. The rainfall data were recorded on a daily interval using a standard directreading rain gauge which consists of a conical upper part (23 cm in diameter) receiving the rainfall before it enters into the transparent lower part. The air temperature was also recorded on a daily basis using an external thermometer. Discharge was manually measured by using a stopwatch and a graduating bucket of water at the exit of each drain percolating the pile on a monthly interval from 2008 to 2018.

Precipitation and temperature

At Le Cellier, from 2008 to 2018, November was the wettest month with 117 mm rainfall on average, and March was the driest with 59 mm. Average interannual monthly rainfall is



negligible

around 74 mm, i.e., 880 mm/year. The high elevation of the site (1,200 m) makes snow an important component in the local climate and in the water budget. The average annual snowfall over the last 25 years has been approximately 1 m. The first snowfalls generally occur at the beginning of November and intensify from January to March. The last snowfalls may occur until the beginning of May. The number of days of snowfall varies between 6 and 30 days/year. At the Le Cellier site, minimum temperatures are recorded in winter (-1.7 °C in February with monthly interannual averages) and maximum temperatures in summer (14.3 °C in July with monthly interannual averages). At daily intervals, minimum and maximum temperatures can reach, respectively, -22 °C (4 February 2012) and 30 °C (19/07/2015).

Discharges

Pile 2 is drained by four principal drains (drains 41, 42, 49, 51) of which the most important in terms of drained volume is drain 51 (78%) (Fig. 2). Drain 51 collects water from both surface and deep percolation. Drain 41 (8%) receives water from surface percolation, and drain 42 (6%) and drain 49 (8%) collect deeper percolation. Surface runoff *R* is not observed on the site, except for some extreme events. At the outlet of the pile, the total flows Q_d is the sum of the flow rate of the four drains capturing the runoff and the infiltration water from the underground drains at the bottom of the pile. From 2008 to 2018, the annual average of the total discharge Q_d is estimated to 399 mm/year.

Methods for the data analysis

Water balance method

The annual water balance at the pile scale can be approximated as follows:

$$P = \mathrm{ET}_{\mathrm{a}} + I + R = \mathrm{ET}_{\mathrm{a}} + \mathrm{EXD} \tag{1}$$

where *P* is the rainfall in mm/year and includes the snow which is taken into account with a percentage of 15% of the rainfall (Mica-Environnement 2018), ET_a the actual evapotranspiration in mm/year, *I* the infiltration in mm/year, *R* is the surface runoff in mm/year. If the hydrological system is well defined, the term EXD (mm/year) in Eq. (1) should be equal to the outflow for a given impluvium. In this case study, EXD must be equal to the total flows Q_d (mm/year) observed at the outlet of the pile, if the drains collect all the meteoric water that runs off and percolates through the pile. EXD depends on ET_a , which is determined from the potential evapotranspiration PET, and from the available water capacity (AWC). Potential evapotranspiration (PET) was determined by the Oudin et al. (2005) formula:

$$PET = \begin{cases} \frac{R(\varphi,J)}{\gamma\rho} \left(\frac{T+5}{100}\right) & \text{if} \quad T \ge 5 \\ 0 \end{cases}$$
(2)

where *R* is the extra-terrestrial solar radiation (MJ m⁻²/d) given by the Julian day (*J*) and the latitude (φ), γ the latent heat flux (taken equal to 2.45 MJ.kg), ρ the density of water (kg/m³) and *T* the mean air temperature at a 2-m height (°C). The AWC is the amount of water that can be stored in the soil and removed by evaporation or absorbed by plants. This concept of AWC was introduced by Thornthwaite (1948) who fixed it uniformly at 100 mm, but studies later showed that the AWC could vary depending on the soil and reach up to 300 mm (Pédelaborde 1968). The total flow rates drained by the pile (drains 41, 42, 49, and 51) depend on the surface of its impluvium (135,000 m²).

Methods for correlation

Correlations are used here to describe the hydrodynamic behaviour of the system. The correlation analyses are applied to the monthly interval for rainfall and the discharges data. Firstly, autocorrelation provides an evaluation of the memory of the system over time, and secondly, the cross-correlations show the image of the impulse response and therefore the response time of the system.

The system's memory is a quantitative indicator of its inertia and represents the time lag that corresponds to 0.2 of the correlation function (Mangin 1984). This value of 0.2 was proposed by Mangin (1984) and has become the reference for inter-system comparison without necessarily having a physical meaning.

Autocorrelation function r(k) of time lag k:

$$r(k) = \frac{C(k)}{C(0)} \tag{3}$$

Cross-correlation function $r_{xy}(k)$ of time lag k:

$$r_{xy}(k) = \frac{C_{xy}(k)}{\sigma_x \sigma_y} \tag{4}$$

$$C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{t=1}^{n-k} (x_t - \bar{x}) (y_{t+k} - \bar{y})$$
(5)

where *C* is the covariance, σ_x and σ_y are the standard deviations of the series x_t and y_t , *n* is the number of observations in the series, x_t and y_t are the values of the time variables and \overline{x} or \overline{y} the mean values of these variables.

Numerical model

Flow simulation

To simulate water flows in mine tailings, a classical method is to solve the Richards equation (Richards 1931) that governs water transfers in variably saturated porous media:

$$\frac{\partial}{\partial x} \left[K_{\rm x}(h) \frac{\partial h}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[K_{\rm z}(h) \frac{\partial h}{\partial z} \right] - \frac{\partial K_{\rm z}(h)}{\partial z} = -\frac{\partial \theta}{\partial h} \frac{\partial h}{\partial t} \qquad (6)$$

where $\partial \theta / \partial h$ is the specific moisture capacity (m⁻¹), *h* the suction in m, θ the volumetric water content (m³/m³), *t* the time in s, and K_x and K_z the hydraulic conductivities in m/s in the horizontal and vertical directions, respectively.

The software package HYDRUS 3D was used, which numerically solves the Richards' equation using the finite element method for water flux in saturated or unsaturated media (Šimůnek et al. 2018). In this study, the stochastic and linear correlation concepts are used to represent the heterogeneous nature of the waste rock. In this probabilistic approach, a 2D stochastic process is considered to control the spatial distribution of variables and parameters (hydraulic conductivity). This process is stationary, isotropic and has an auto-correlation structure that allows the generation of the values $(A_{i,i})$ of the parameters. It is assumed that these values come from a normally distributed population N with mean μ_A and standard deviation σ_A . This approach is developed in Mejía and Rodríguez-Iturbe (1974), Freeze (1980) and El-Kadi (1986). Mathematically, it can be expressed as follows:

$$\rho_{\rm A}(I) = \exp\left(-\alpha_{\rm A}|I|\right) \tag{7}$$

where $\rho_A(I)$ is the autocorrelation coefficient at lag *I* and α_A (m⁻¹) the correlation length.

$$A_{i,j} = \mu_{\rm A} + \varepsilon_{i,j} \,\sigma_{\rm A} \tag{8}$$

with $\varepsilon_{i,i}$ representing the residuals.



The concept of linear variation of hydraulic properties (Miller and Miller 1956; Simmons et al. 1979a, b) allows the representation of the properties using independent scaling factors ($\alpha_{\rm K}$, α_{θ} , $\alpha_{\rm h}$), which relate the hydraulic characteristics of a given soil (K(h), $\theta(h)$) to a reference [$K^*(h^*)$, $\theta^*(h^*)$]. According to (Vogel et al. 1991), this concept can be expressed as:

$$K(h) = \alpha_{\rm K} K^*(h^*)$$

$$\theta(h) = \theta_{\rm r} + \alpha_{\theta} \left[\theta^*(h^*) - \theta_{\rm r}^* \right]$$

$$h = \alpha_{\rm h} h^*$$
(9)

where θ_r is the residual water content.

Material properties

Sieve analysis was carried out on materials sampled at depths between 21 and 22 m during the borehole drilling in 2014 (Nos et al. 2013). In contrast to the other piles of the site, which are composed of fine materials and mud, pile 2 is largely composed of granite gravel and sand with a mixture of fine clay particles. The sieve analysis confirmed the predominance of gravel with nearly 60% of materials having a size greater than 2 mm (Fig. 3a). These results are in agreement with the heap leaching process. Waste rocks of metamorphic and volcanic origin are generally coarse (Fig. 3a, as is the case for Le Cellier waste rock) and their porosity often varies between 35 and 40% (Morin et al. 1991; Fala et al. 2005). Thus, this study assumes an a priori saturation porosity of 37% for the tailings of pile 2.

The *retention curve* of pile 2 was obtained from the modified Kovacs model using a formulation proposed by Mbonimpa et al. (2006). The d_{10} (200 µm) and d_{60} (10⁴ µm) parameters derived from the sieve size curve and the void ratio thus make it possible to represent the water content as a function of suction:



$$S_{\rm r} = \frac{\theta}{w} = 1 - \langle 1 - S_{\rm a} \rangle (1 - S_{\rm c}) \tag{10}$$

$$S_{\rm c} = 1 - \left[\left(h_{\rm co}/h \right)^2 + 1 \right]^{m_c} \exp\left[- m_c \left(h_{\rm co}/h \right)^2 \right]$$
(11)

$$S_{\rm a} = a_{\rm c} \left[1 - \frac{\ln\left(1 + \frac{h}{h_{\rm r}}\right)}{\ln\left(1 + \frac{h_{\rm o}}{h_{\rm r}}\right)} \right] \left(\frac{h_{\rm co}/h_{\rm w}}{e^{\frac{1}{3}} \left(\frac{h}{h_{\rm w}}\right)^{\frac{2}{3}}} \right)$$
(12)

where S_r is the total degree of saturation, θ the water content, w the total porosity, and S_c and S_a correspond respectively to the capillary and adhesion components of the total saturation. The Macauley brackets $\langle \rangle$ are defined as $\langle x \rangle = 0.5(x + |x|)$. In Eq. (11), h is the suction (cm), m_c is a dimensionless coefficient of pore size which can often be closely approximated by $m_c = 1/C_u$ with C_u the coefficient of uniformity ($C_u = d_{60}/d_{10}$), and h_{co} is the equivalent capillary rise in the porous medium (m) defined as:

$$h_{\rm co} = \frac{0.75 \cos \beta_{\rm d}}{e d_{10} 1.17 \log \left(C_{\rm u}\right) + 1} \tag{13}$$

where β_d corresponds to the contact angle (0 for dry conditions), *e* the void ratio, and h_w is a normalisation parameter for unit consistency ($h_w = 1$ cm when *h* and h_{co} are given in cm). In Eq. (12), the term in the brackets ([]) is a correction factor for total dryness, h_0 is the suction when the soil is completely dry ($h_0 = 107$ cm), a_c is the adhesion coefficient which is roughly constant ($a_c = 0.01$, when suctions are given in cm), and h_r is the residual suction (cm) calculated as:

$$h_{\rm r} = 0.86 \ h_{\rm co}^{1.2} \tag{14}$$

The obtained retention curve (Fig. 3b) is steep and the residual water content lower than 0.001. For a water content between 0 and 0.05, a small variation in water content leads to a large variation in suction. The air pressure at the inlet is 1 cm.

The *hydraulic conductivity curve* shows the ability of the porous medium to transmit water as a function of its saturation state which is measured by h or θ . It can be expressed in the model of van Genuchten (1980) by

$$K(\theta) = \begin{cases} K_{\rm s} S_{\rm e}^{l} \left[1 - \left(1 - S_{\rm e}^{\frac{1}{m}} \right)^{m} \right]^{2} \text{ if } h < 0 \\ K_{\rm s} & \text{ if } h \ge 0 \end{cases}$$
(15)

where $S_{\rm e} = \frac{\theta - \theta_{\rm r}}{\theta_{\rm s} - \theta_{\rm r}}$ is the effective saturation, $\theta_{\rm s}$ is the saturated water content, $K_{\rm s}$ is the saturated hydraulic conductivity in m/s, 1 is a pore connection coefficient equal to 0.5, a value

which is proposed by Mualem (1976), and m = 1 - 1/n with n a dimensionless shape parameter.

The saturated hydraulic conductivity K_s in cm/s was evaluated using the following formula (Bréard Lanoix et al. 2020):

$$K_{\rm s} = C_{\rm g} \cdot \frac{\gamma_{\rm w} \cdot e^{3+x}}{\mu_{\rm w}(1+e)} C_{\rm u}^{1/3} d_{10}^2 \tag{16}$$

where C_g (=0.1) and x (=2) are two constants for granular materials, $C_u = d_{60}/d_{10}$, *e* is the void ratio, μ_w is the dynamic viscosity of water (10⁻³ Pa.s at 20 °C) and γ_w is the specific gravity of water (9.807 kN/m³). The saturated hydraulic conductivity of the analysed pile sample is 8.7 · 10⁻² cm/s. The hydraulic conductivity versus suction curve is shown in Fig. 3c.

The retention curve from the modified Kovacs model was then fitted to the van Genuchten model using the RETC code (van Genuchten et al. 1991). As a first step, parameters for the van Genuchten flow model were obtained and are given in Table 1. These parameters are representative of the sample analysed at a depth of 21–22 m from the top of the pile.

Model geometry, boundary and initial conditions

Three steps were followed to obtain the 2D geometry of pile 2, as shown in Fig. 4. First, a digital elevation model (DEM) was generated using QGIS software by interpolating a topographic survey. It should be noted that the transverse profile was modelled in two dimensions (Fig. 1, section AB) because of its symmetry compared to the longitudinal profile (which is not shown here). Then, the topographic profile was extracted (Fig. 4a). Finally, by importing this profile into HYDRUS, the entire geometry of pile 2 was reproduced so as to have a height of 37 m from the top of the pile to its base (Fig. 4b). The pile's slopes vary from 15 to 20%.

An initial pressure condition h of -1.2 m was applied, which corresponds to a water content close to the residual water content. The analysis of the impact of the initial conditions on simulated discharge simulations (not presented here) showed that it took at least 2 years for the model to be in phase and to reproduce the observed flows (2008–2010).

Table 1 A priori hydraulic parameters	Parameter	Value
	$\overline{\theta_{\mathrm{r}}}$	0.001
	θ_{s}	0.37
	α (cm ⁻¹)	0.3
	n	3.3
	$K_{\rm s}$ (cm/s)	$8.7 \cdot 10^{-2}$
	l	0.5



Fig. 4 a Transverse topographic profile of pile 2 obtained from a digital elevation model (DEM) of the pile, and **b** the 2D numerical model geometry, mesh and boundary conditions of pile 2

To take into account these aspects, results are presented from September 2010 to August 2018.

The input data for the model are the precipitation collected at the site from September 2008 to August 2018 and the actual evapotranspiration. The simulations were conducted at daily intervals but with monthly rainfall and evapotranspiration values averaged over each day. The surface conditions were the atmospheric conditions, i.e., rainfall and evapotranspiration (Fig. 4b). These surface conditions require the specification of a minimum critical surface pressure h_{c-min} (0.63 m in this case) at a water content $\theta = 0.005 + \theta_r$ and a maximum surface pressure ($h_{c-max} = 0$ m) in case the evaporation and infiltration capacities are exceeded (Simunek et al. 2018). These values allow numerical instabilities to be reduced when a small variation in water content leads to a large variation in pressure.

The condition at the lower boundary is a free drainage condition, which is appropriate for the study of unsaturated media that are sufficiently far from the saturated zone (McCord 1991)

Simulation scenarios (homogeneous/stochastic)

Pile 2 is characterised by horizontal deposits and acid injections during static treatment. This treatment involved changes in the medium and thus in the hydraulic conductivity. Homogeneous (uncorrelated) and stochastic simulations with horizontal and mixed correlations of the hydraulic conductivity were run in order to assess the impact of a heterogeneous hydraulic conductivity field on the reproduction of the observed flow rates and on the distribution of the water content. The spatial distribution of the hydraulic conductivity (Fig. 5) is considered as a stochastic phenomenon and the principle of linear variation is applied to it. The input data are the logarithmic standard deviation of the hydraulic conductivity (0.25) and the correlation length (Table 2). The scaling factors generated depend on the standard deviation and correlation lengths used and the impact of the variation of these parameters on water content distribution and some chemical variables can be studied (Fala et al. 2013). In this case, the standard deviation (σ) and correlation lengths (in X and Y the horizontal and the vertical directions respectively) have been determined by retaining those which provide a better representation of the observed flows and which limit numerical instabilities.

Statistical criteria

The Nash and Sutcliffe (1970) efficiency criterion (NSE) was used to compare the simulation results with the observed flows. The closer the Nash-Sutcliffe values are to 1, the better the model is. NSE is expressed as follows:

NSE = 1 -
$$\frac{\sum_{1}^{n} (Q_{si} - Q_{oi})^{2}}{\sum_{1}^{n} (Q_{oi} - \overline{Q_{o}})^{2}}$$
 (17)

where *n* is the total number of data, Q_{si} is the simulated value, Q_{oi} is the observed value and \overline{Q}_{o} is the average of the observed data.

The total flow at the lower boundary of the model expressed in m^2/d was first converted to m^3/d by multiplying it by the pile's surface (135,000 m²) divided by its length and then compared with total flow (m^3/d) collected at the drains of pile 2.



Fig. 5 Scaling factors for a horizontal and $\mathbf{b}-\mathbf{c}$ mixed correlations, where $\alpha_{\rm K}$ and $\alpha_{\rm h}$ are respectively related to hydraulic conductivity and suction

Correlations	Correlation length (m)	Correlation length (m)		
	(Value in X direction)	(Value ir Y direc- tion)		
Mixed	100	90		
Horizontal	100	5		

Results

Data analysis

Water balance

Figure 6a shows the interannual monthly water balance for the site from 2008 to 2018. The average actual

Fig. 6 a Monthly and **b** annual water balances of pile 2 between 2008 and 2018. Q_d is the flow rate of drains capturing runoff and infiltration water at the bottom of the pile. ETa is actual evapotranspiration determined from potential evapotranspiration (PET), and EXD the difference between precipitation (*P*) and actual evapotranspiration (*P*–ETa)



evapotranspiration represents 45% of the precipitation. From September to May, a surplus of water can be observed, illustrating a significant rainfall in comparison with evapotranspiration. The months of June, July, August and September are marked by a water deficit due to a decrease in rainfall and an increase in actual evapotranspiration.

Figure 6a and b respectively, show the monthly and annual changes of the flows monitored from pile 2 $(Q_{\rm d})$ and the term EXD calculated from the water balance. EXD for different values of AWC (50, 100, 120 and 150 mm) were calculated and an AWC of 120 mm was retained in order to complete the interannual water balance. Considering all years based on the annual average, the overall water balance is acceptable and the difference between the means of EXD and Q_d is reduced to a minimum for AWC equal to 120 mm. At annual intervals, it was noticed that the budget is not resolved for some of the years. At the monthly intervals, the observed discharges are lower than the EXD term during autumn and winter and higher than the EXD term during spring. In summer, EXD is zero. Water drainage in the pile allows for maintaining a continuous drain flow during summer (June, July and August).

Correlations

The autocorrelation function for the daily interval data of precipitation (not shown) decreases very rapidly, as rain does not have inertia and is therefore random. The discharge graphs show autocorrelation functions that decrease synchronously on all drains (Fig. 7a). The memory effect of the system (pile 2) is between 1.7 and 2.5 months, which suggests that the system has a low inertia and is therefore reactive. The flow at drain 41 is different with a short memory effect (<2 months) but pile 2 in general has a memory effect less than 2.5 months.

The cross-correlation between rainfall (P) and each drain flow (Q) is shown in Fig. 7b. All the drains that collect the water leaving the pile show a correlation function which is significant (>0.2) at a time lag equal to 1 month, suggesting that heavy (above-average) rainfall can result in high discharge the following month. A second correlation peak appears at 5–6 months and a third at around 11 months. These observations suggest a semiannual cycle between rainfall and flow rates, in keeping with the time lag already observed between the calculated EXD and observed Q_d (Fig. 6a). The other point that can be derived from these correlation analyses is the fact that all the different drains of pile 2 show the same dynamics and the same reaction towards the rain.



Fig. 7 a Autocorrelations of drain discharges (Q-drain) and **b** Cross-correlation between precipitation (*P*) and drain discharges (*Q*)

Fig. 8 Evolution of simulated discharges with a variation of parameters **a** n and **b** θ_s



Simulated flow

Sensitivity analysis and inverse resolution

The hydraulic parameters given in Table 1 are valid on the basis of the following assumptions:

- The sample taken at a depth of 21–22 m is representative of the materials in pile 2.
- The values of d_{10} and d_{60} are assessed from the granulometric retention curve.
- The saturated water content is taken from the literature.

Because of these assumptions, the sensitivity of the simulated discharge to the main parameters was first evaluated using two different approaches before running the model. First, a sensitivity analysis to the a priori parameters was performed to identify those which impacted the simulated discharge the most. Secondly, an inverse resolution was carried out from the observed flows.

The saturated water content θ_s and *n*, which is a shape parameter in the van Genuchten model, are the main parameters that influence the simulated flows. Parameter *n* influences the amplitude of the flow curve (Fig. 8a). The saturated water content also has an influence on the flow simulation (Fig. 8b). A small temporal shift and a larger peak flow in high and low water periods can be seen when the saturated-water-content decreases. By comparing the simulated flows based on a priori parameters (Table 1) with those observed, higher Nash-Sutcliffe criteria were obtained for the lowest saturated water content and the highest *n* value

Table 3 Nash-Sutcliffe criterion (NSE) evolution with the variation of parameters n and θ_s

Sensitivity analysis	Parameter values	NSE
Sensitivity of the parameter <i>n</i>	n = 3.4	0.42
	n = 3.3	0.42
	n = 2.8	0.26
	n = 2.5	0.14
	n = 2.0	-0.18
Sensitivity of the parameter $\theta_{\rm s}$	$\theta_{\rm s} = 0.4$	0.35
	$\theta_{\rm s} = 0.38$	0.39
	$\theta_{\rm s} = 0.37$	0.42
	$\theta_{\rm s} = 0.35$	0.47
	$\theta_{\rm s} = 0.28$	0.53

Table 4Hydraulic parametersfrom inverse solution	Parameter	Value
	$\theta_{\rm r}$	0
	$\theta_{\rm s}$	0.28
	α (cm ⁻¹)	0.3
	n	3.4
	$K_{\rm s}$ (cm/s)	$8.7\cdot10^{-2}$
	l	0.5

tested (Table 3). The boundaries of the tested *n* and θ_s values were chosen considering the numerical instabilities. Using the a priori hydraulic parameters and using the outflow data observed at pile 2, an inverse single-layer scenario was performed with HYDRUS (Table 4). Thus, the parameters

obtained allow us to simulate the global flow in pile 2 with the best statistical criterion when it is represented as a single layer for a homogeneous simulation.

Simulated flow

The observed and simulated monthly drain flows for pile 2 are shown in Fig. 9 for September 2010 to August 2018. It can be seen that the flow dynamics are well reproduced by the models but the seasonal amplitudes are not simulated very well. The models have difficulty in representing flood and low flow periods throughout the simulation run. Some low-flow periods (2011, 2014, and 2017) and high-flow periods (2010, 2016, 2017, and 2018) are nonetheless better represented than others. The simulated annual flows are, on average, 24% higher than those observed for the three configurations of hydraulic conductivity.

Despite the inadequacies of the models, it is important to note that the adjusted hydraulic parameters and stochastic correlations enable us to correctly describe the average behaviour of the system. The simulated flows generally follow the trend of the observed flows. Nash and Sutcliffe's criterion for drain discharge ranges from 0.6 to 0.64, suggesting an acceptable simulation compared to the observations (Harmel et al. 2018). The simulations with a homogeneous and horizontally correlated hydraulic conductivity give the best score (0.64).

Water content in the pile

The homogeneous and stochastic (horizontal and vertical) simulation results of the volumetric water content in pile 2 are shown in Figs. 10, 11, and 12. In each figure, the simulated water content distribution (part a) is presented for two periods, high flow (March) and low flow (September) for the 2013–2014 and 2017–2018 hydrological years, for which the calculated water balance and simulated flows are acceptable. The vertical profiles of water content with

depth (part b) are also illustrated. The same observations can be made for each of the hydrological years.

In all simulations, the water content is generally low and increases from the surface towards the centre of the pile, except for some months when heavy rainfalls can lead to high surface moisture. The water content fluctuates more horizontally than vertically. In the homogeneous simulation, the maximum water content is 2.9% over the simulation period. During low-water periods, a maximum of 1.5% is simulated and from one hydrological year to another, the water content distribution is the same. In the stochastic simulation with horizontal correlation, the maximum water content in the pile is 3.2%, and differences in the water content distribution from one hydrological year to another appear during the high-water period. The upper part of the pile is wetter (during high flow periods) compared to the homogeneous simulation. Even when using contrasting correlations of hydraulic conductivity, it has been observed that the general flow in the pile remains vertical (according to velocity profiles which are not shown here). In the mixed stochastic simulation, the maximum water content (3.8%) is higher than in the other simulations. Similar to the previous heterogeneous case, the moisture patterns in the dry period for both years (and applicable for each year) are nearly the same, whereas the high-water periods exhibit contrasting patterns when the surface of the pile is wetter (1.5-2%) compared to other simulations.

From the vertical water content profiles (BB') in all simulations, it can be observed that, from May to December, the atmospheric conditions (precipitation, evapotranspiration) have low impact on the water content at depths greater than 15 m. Below this depth (>15 m), the water content remains stable and around 1%. From January to April, the simulated water content is more variable all along the profiles. The variation of water content in this central vertical section can reach 2.5%, especially for stochastic simulation and during heavy rainfall events.







Fig. 10 a Simulated water content in pile 2 during low (September) and high (March) water periods for the homogeneous case and b the monthly water content profiles for vertical section B'B" for the hydrological years 2013–2014 and 2017–2018

Discussion

The 2D hydrodynamic model of pile 2, using the adjusted hydraulic parameters of a representative sample of the pile, generally simulates the observed discharges of the pile correctly. The Nash Sutcliffe criterion (0.6–0.64) obtained for the simulations (homogeneous and stochastic) is acceptable. As the hydrodynamic model represents the overall functioning of the pile it was possible to link the simulated water content distribution in the pile during high and low flows to the monitored discharges.

The simulated moisture distribution in mine tailings materials depends on the surface boundary conditions (Aubertin et al. 2005). Therefore, the differences in the simulated water content distribution within the pile in March (high flow) and September (low flow) could be related to the variable intensity of drainage, itself dependent on rainfall and evapotranspiration ($P-\text{ET}_a$). No interannual differences in the water content distribution are simulated for the homogeneous case. In the stochastic simulations, the small differences (in water content and simulated flow) between

the same periods of different years could be due to the antecedent moisture in the pile. Liu et al. (2019) analysed water dynamics and the response of deep percolation in the vadose zone to rainfall and antecedent moisture in periods of summer maize and winter wheat. They showed that antecedent moisture conditions could influence actual moisture conditions. They also confirmed that rainfall (and irrigation in their study) and evapotranspiration have a great influence on surface water content essentially because of plant roots. Indeed, the vertical profiles of water content for section B'B" (Figs. 10, 11b and 12b) show in this case that the impacts of precipitation and evapotranspiration mainly affect the water content at the surface (0–15 m). At Le Cellier, the piles are covered by coniferous vegetation whose effect on surface water content may then be considered in future studies. The study of Liu et al. (2019) finally shows that antecedent moisture conditions could influence deep percolation. Although the cross-correlation analysis showed a possible impact of rainfall on discharges, a link between the antecedent water content and the discharges was not clearly identified, in all the simulations.



Fig. 11 a Simulated water content during low (September) and high (March) water periods in the stochastic simulations with horizontal correlation and **b** the monthly water content profiles for vertical section B'B'' for the hydrological years 2013–1014 and 2017–2018

Such low water contents as simulated in this study have also been experienced in similar settings (Fala et al. 2005, 2013; Hajizadeh Namaghi et al. 2015; Bao et al. 2020). These previous studies also reported that heterogeneous tailings result in preferential flows, with more water stored in the medium compared to homogeneous materials. Fine tailings materials would favour the accumulation of water in the system (Fala et al. 2005) and the flow through the fine matrix materials could be the dominant flow mechanism (Bao et al. 2020). This is in line with the higher water content achieved in the stochastic simulations compared to the homogeneous case and with what could be expected at the former mine at Le Cellier, where heterogeneity results from the horizontal layers of the tailings pile. Such an approach could be different for mill tailings generated from dynamic treatment in mills where ore is finely ground.

As anticipated (Fala et al. 2005; Hajizadeh Namaghi et al. 2015), low rainfall and high evapotranspiration lead to the front drying during dry periods. These dry fronts cause a further desaturation of the medium which could have potential geochemical implications. Indeed, when the water content

decreases, oxygen diffusivity increases in the environment (Mbonimpa et al. 2011). In these conditions, acidification reactions are favoured in the presence of other factors, the most important being the availability of sulphurous minerals. In the present case, the simulated water content is always low in the medium and if it is confirmed by future field observations, it will be important to reach an understanding of the geochemical aspects linked to this low saturation.

The numerical simulations which are conducted here can be improved in certain aspects. First, monthly intervals of the input data are a limitation in properly describing the hydrodynamic behaviour of the system. Using daily data would be a more refined approach allowing occasional events such as heavy rainfall or higher water content to be represented. This could also help in a better simulation of minimum and maximum flow rates and water contents. According to some studies which do not concern mine tailings, the average daily data from a monthly interval used in the study could have an impact on the distribution of water in the pile. Indeed, Batalha et al. (2018), by using the HYDRUS-1D software to assess the sensitivity of groundwater recharge



Fig. 12 a Simulated water content during low (September) and high (March) water periods in the stochastic simulation with a mixed correlation and **b** the monthly water content profiles for vertical section B'B" for hydrological years 2013–1014 and 2017–2018

with meteorological time series of different temporal resolutions (hourly, daily, weekly, monthly and yearly averaged precipitation and potential evaporation rates) at three sites in Brazil, show that temporal averaging limits the ability of simulations to predict the deep penetration of moisture in response to precipitation. Furthermore, as runoff will occur when the precipitation rate is higher than the soil infiltration capacity and depending on the initial soil moisture conditions, long-term data averaging will smooth the precipitation data to rates that could always be lower than saturated hydraulic conductivity. However, in this case study, runoff was not observed on the site. It is therefore not possible to establish a link between the absence of runoff throughout the simulation and the input averaged daily data.

Analysing the transport process in experimental waste rock piles with tracers, Blackmore et al. (2018) suggested considering different types of porosity for the conceptual models, in particular a porosity associated with fast-flow channels, activated under strong recharge events and a porosity associated with a slower-flow matrix material, activated or controlled by natural rainfall events. The former is not considered in this study. Indeed, the difficulties in simulating the observed discharges may also be due to the modelling approach, which may not adequately represent the inner structure of the pile. Broda et al. (2013) noted a difficulty in the classical approach of using porous media to simulate flows in periods of high drainage caused by macropores. They showed that using a random-fracture approach improved model accuracy in terms of reproducing the beginning of the observed drainage periods and the total cumulated volumes observed in a laboratory experiment based on samples of tailings. In this study, using horizontal and mixed stochastic correlations of the hydraulic conductivity did not significantly improve the flow simulations. This is not surprising since the sensitivity analysis showed that the simulated discharges were more sensitive to the shape parameter *n* and to the saturated water content (θ_s) than to the saturated hydraulic conductivity. An initial path to improvement would be to introduce a vertical heterogeneity of the porosity, in accordance with the multilayered structure of the pile. The single-layer representation of the pile is indeed another simplification of the problem. As described in other studies (Fala et al. 2005; Aubertin et al. 2009), several layers can lead either to different water content profiles with changes in flow direction or to water accumulation.

Conclusion

This work aimed to understand the hydrological behaviour of a tailings pile in the former Le Cellier mine by using topographic, granulometric, and meteorological and hydrological data (rainfall, temperature and measured flows) collected from the site over a decade (2008-2018). From the calculated water balance, it is noted that evapotranspiration, which corresponds to 45% of the precipitation, strongly affects the hydrological behaviour of the pile in summer and autumn. Despite the negative balance $(P - ET_a < 0)$, June, July and August are nonetheless marked by a weak flow of the drains which persists into early autumn. This delay is related to the seasonal response time of the pile, which is 5–6 months. The autocorrelation analysis suggests that the flow has low inertia with a memory effect of 2-3 months. The cross-correlation between rainfall and observed drain flows indicates that there is a slight seasonal pattern in which flows react to rainfall and influence chemical parameters such as pH and sulphate concentrations (not presented here).

The observed discharges were well reproduced with HYDRUS, demonstrating that a hydrodynamic model based on a porous media concept can represent the observed flow rates on a monthly basis. The use of horizontal and heterogeneous stochastic correlations did not significantly improve the simulation of the flows but led to a heterogeneous distribution of the water content in the pile which may be realistic compared to the homogeneous case, and which could have geochemical implications.

An even better knowledge of water flows through this pile will help to develop sustainable management practices at the Le Cellier site, as well as other tailings piles at other sites. For this purpose, flow measurements are now being carried out on the Le Cellier site on a daily basis, and geophysical investigations, supplemented by a sieve analysis at different depths, are in progress to enable a better description of the internal structure of the pile. Future numerical studies on this site will attempt to integrate the concepts of dual or fissure porosity in modelling the discharges.

Acknowledgements The authors are grateful to Orano Mining Après-Mines France who facilitated the access to the site and provided all data. We also thank Bastien Bonhomme and MICA Environment for monitoring the site.

Funding This work was funded by the NEEDS (Nuclear, Energy, Environment, Waste Society) programme of the CNRS (the French National Centre for Scientific Research).

Declarations

Conflicts of interest On behalf of all authors, the corresponding author states that there is no conflict of interest.

References

- Amos RT, Blowes DW, Bailey BL, Sego DC, Smith L, Ritchie AIM (2015) Waste-rock hydrogeology and geochemistry. Appl Geochem 57:140–156. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2014.06. 020
- Anterrieu O, Chouteau M, Aubertin M (2010) Geophysical characterization of the large-scale internal structure of a waste rock pile from a hard rock mine. Bull Eng Geol Environ 69:533–548. https://doi.org/10.1007/s10064-010-0264-4
- Aubertin M, Fala O, Molson J, Gamache-Rochette A, Lahmira B, Martin V, Lefebvre R, Bussière B, Chapuis R, Chouteau M (2005) Evaluation of the hydrogeological and geochemical behaviour of waste rock piles. In: Symposium Rouyn-Noranda: L'Environnement et les Mines, Canadian Institute of Mining, Metallurgy and Petroleum (CIM), Montréal pp 15–18
- Aubertin M, Cifuentes E, Apithy SA, Bussière B, Molson J, Chapuis R (2009) Analyses of water diversion along inclined covers with capillary barrier effects. Can Geotech J 46:1146–1164. https:// doi.org/10.1139/T09-050
- Bao Z, Blowes DW, Ptacek CJ, Bain J, Holland SP, Wilson D, Wilson W, Mackenzie P (2020) Faro Waste Rock Project: characterizing variably saturated flow behavior through full-scale waste-rock dumps in the continental subarctic region of northern Canada using field measurements and stable isotopes of water. Water Resour Res 56:e2019WR026374. https://doi.org/10.1029/2019W R026374
- Batalha MS, Barbosa MC, Faybishenko B, van Genuchten MT (2018) Effect of temporal averaging of meteorological data on predictions of groundwater recharge. J Hydrol Hydromech 66:143–152. https://doi.org/10.1515/johh-2017-0051
- Blackmore S, Pedretti D, Mayer KU, Smith L, Beckie RD (2018) Evaluation of single- and dual-porosity models for reproducing the release of external and internal tracers from heterogeneous waste-rock piles. J Contam Hydrol 214:65–74. https://doi.org/10. 1016/j.jconhyd.2018.05.007
- Blowes DW (1997) The environmental effects of mine wastes. In: Gubins AG (ed) Proceedings of Exploration 97: fourth decennial international conference on mineral exploration. Prospectors and Developers Association of Canada, Toronto, pp 887–892
- Bréard Lanoix M-L, Pabst T, Aubertin M (2020) Field determination of the hydraulic conductivity of a compacted sand layer controlling water flow on an experimental mine waste rock pile. Hydrogeol J 28:1503–1515. https://doi.org/10.1007/s10040-020-02129-7
- BRGM (1997) French mine tailings: typology and main potential environmental impacts. Report 39503, 83 pp. http://infoterre.brgm.fr/ rapports/RR-39503-FR.pdf. Accessed August 2022
- Broda S, Blessent D, Aubertin M (2013) Conceptual model suitability for reproducing preferential flow in waste rock. In: Proceedings of the IASTED international conference, Modelling, Identification and Control (MIC 2013), Innsbruck, Austria, 11–13 February 2013. https://doi.org/10.2316/P.2013.794-040
- Broda S, Aubertin M, Blessent D, Hirthe E, Graf T (2015) Improving control of contamination from waste rock piles. Environ Geotech 4:274–283. https://doi.org/10.1680/envgeo.14.00023
- Bussière B, Aubertin M, Zagury GJ, Potvin R, Benzaazoua M (2005) Main challenges and solutions for the rehabilitation of abandoned waste rocks storage areas. In: Proceedings of the

2005 Symposium on Environment and Mining, Prospectors and Developers Association of Canada, Toronto, pp 1–29

- Dawood I, Aubertin M (2014) Effect of dense material layers on unsaturated water flow inside a large waste rock pile: a numerical investigation. Mine Water Environ 33:24–38. https://doi.org/ 10.1007/s10230-013-0251-7
- Dawood I, Aubertin M, Intissar R, Chouteau M (2011) A combined hydrogeological–geophysical approach to evaluate unsaturated flow in a large waste rock pile. In: Pan-Am CGS Geotechnical Conference, Toronto, October 2011
- Dimech A, Chouteau M, Aubertin M, Bussière B, Martin V, Plante B (2019) Three-dimensional time-lapse geoelectrical monitoring of water infiltration in an experimental mine waste rock pile. Vadose Zone J 18:180098. https://doi.org/10.2136/vzj20 18.05.0098
- El-Kadi AI (1986) A computer program for generating two-dimensional fields of autocorrelated parameters. Groundwater 24:663– 667. https://doi.org/10.1111/j.1745-6584.1986.tb03715.x
- Fala O, Molson J, Aubertin M, Bussière B (2005) Numerical modelling of flow and capillary barrier effects in unsaturated waste rock piles. Mine Water Environ 24:172–185. https://doi.org/10. 1007/s10230-005-0093-z
- Fala O, Molson J, Aubertin M, Dawood I, Bussière B, Chapuis RP (2013) A numerical modelling approach to assess long-term unsaturated flow and geochemical transport in a waste rock pile. Int J Min Reclam Environ 27:38–55. https://doi.org/10.1080/ 17480930.2011.644473
- Freeze RA (1980) A stochastic-conceptual analysis of rainfall-runoff processes on a hillslope. Water Resour Res 16:391–408. https:// doi.org/10.1029/WR016i002p00391
- Hajizadeh Namaghi H, Li S, Jiang L (2015) Numerical simulation of water flow in a large waste rock pile, Haizhou coal mine, China. Model Earth Syst Environ 1:5. https://doi.org/10.1007/ s40808-015-0007-4
- Harmel RD, Baffaut C, Douglas-Mankin K (2018) Review and development of ASABE engineering practice 621: guidelines for calibrating, validating, and evaluating hydrologic and wwater quality models. Trans ASABE 61:1393–1401. https://doi.org/ 10.13031/trans.12806
- Hotton G, Bussière B, Pabst T, Bresson E, Roy P (2020) Influence of climate change on the ability of a cover with capillary barrier effects to control acid generation. Hydrogeol J 28:763–779. https://doi.org/10.1007/s10040-019-02084-y
- Lahmira B, Lefebvre R, Aubertin M, Bussière B (2017) Effect of material variability and compacted layers on transfer processes in heterogeneous waste rock piles. J Contam Hydrol 204:66–78. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2017.07.004
- Liu X, Gao W, Sun S, Hu A, He Y, He S (2019) Responses of soil water dynamic processes and groundwater recharge to irrigation intensity and antecedent moisture in the vadose zone. Hydrol Process 33:849–863. https://doi.org/10.1002/hyp.13368
- Ma L, Huang C, Liu Z-S, Morin KA, Aziz M, Meints C (2021) Prediction of acid rock drainage in waste rock piles, part 2: water flow patterns and leaching process. J Contam Hydrol 242:103862. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2021.103862
- Mangin A (1984) The use of autocorrelation and spectral analyses to obtain a better understanding of hydrological systems. J Hydrol 67:25–43. https://doi.org/10.1016/0022-1694(84)90230-0
- Mbonimpa M, Aubertin M, Maqsoud A, Bussière B (2006) Predictive model for the water retention curve of deformable clayey soils. J Geotech Geoenviron Eng 132:1121–1132. https://doi. org/10.1061/(ASCE)1090-0241(2006)132:9(1121)
- Mbonimpa M, Aubertin M, Aachib M, Bussière B (2011) Diffusion and consumption of oxygen in unsaturated cover materials. Can Geotech J. https://doi.org/10.1139/t03-040

- McCord JT (1991) Application of second-type boundaries in unsaturated flow modeling. Water Resour Res 27:3257–3260. https://doi. org/10.1029/91WR02158
- Mejía JM, Rodríguez-Iturbe I (1974) On the synthesis of random field sampling from the spectrum: an application to the generation of hydrologic spatial processes. Water Resour Res 10:705–711. https://doi.org/10.1029/WR010i004p00705
- Mica-Environnement (2018) Letter of declaration of the cessation of mining activities and assessment of the effects of mining activities on water. Report, Mica-Environment, Shelton, CT
- Miller EE, Miller RD (1956) Physical theory for capillary flow phenomena. J Appl Phys 27:324–332. https://doi.org/10.1063/1. 1722370
- Morin KA, Gerencher E, Jones CE, Konasewich DE (1991) Critical literature review of acid drainage from waste rock. MEND report 1.11.1, Canada Centre for Mineral and Energy Technology, Ottawa, 175 pp
- Mualem Y (1976) A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. Water Resour Res 12:513–522. https://doi.org/10.1029/WR012i003p00513
- Muniruzzaman M, Karlsson T, Ahmadi N, Rolle M (2020) Multiphase and multicomponent simulation of acid mine drainage in unsaturated mine waste: modeling approach, benchmarks and application examples. Appl Geochem 120:104677. https://doi.org/10.1016/j. apgeochem.2020.104677
- Nash JE, Sutcliffe JV (1970) River flow forecasting through conceptual models, part I: a discussion of principles. J Hydrol 10:282–290. https://doi.org/10.1016/0022-1694(70)90255-6
- Nos J, Boizard A, Peiffert C, Phrommavanh V, Cathelineau M, Descostes M (2013) Geochemical characterization of uranium mill tailings. Mineral Mag 77:1863. https://doi.org/10.1180/minmag. 2013.077.5.14
- Oudin L, Hervieu F, Michel C, Perrin C, Andréassian V, Anctil F, Loumagne C (2005) Which potential evapotranspiration input for a lumped rainfall-runoff model?: part 2, towards a simple and efficient potential evapotranspiration model for rainfall-runoff modelling. J Hydrol 303:290–306. https://doi.org/10.1016/j.jhydr ol.2004.08.026
- Pédelaborde P (1968) Les bilans hydriques [Water balances]. Cah Géogr Qué 12:5–23
- Poaty B, Plante B, Bussière B, Benzaazoua M (2022) Assessment of hydrogeochemical behavior of layered waste rock stockpiles: a meso-scale laboratory experiment. Appl Geochem 136:105154. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2021.105154
- Richards LA (1931) Capillary conduction of liquids through porous mediums. Physics 1:318–333. https://doi.org/10.1063/1.1745010
- Simmons C, Nielsen D, Biggar J (1979a) Scaling of field-measured soil-water properties: I. methodology. Hilgardia 47:75–102. https://doi.org/10.3733/hilg.v47n04p075
- Simmons C, Nielsen D, Biggar J (1979b) Scaling of field-measured soil-water properties: II. hydraulic conductivity and flux. Hilgardia 47:103–174. https://doi.org/10.3733/hilg.v47n04p103
- Šimůnek J, van Genuchten MT, Šejna M (2018) The HYDRUS software package for simulating two- and three-dimensional movement of water, heat, and multiple solutes in variably-saturated media. Tech Man Version 3:241
- Thornthwaite CW (1948) An approach toward a rational classification of climate. Geogr Rev 38:55–94. https://doi.org/10.2307/210739
- van Genuchten MT (1980) A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci Soc Am J 44:892–898. https://doi.org/10.2136/sssaj1980.036159950044000 50002x
- van Genuchten M van, Leij FJ, Yates SR (1991) The RETC code for quantifying the hydraulic functions of unsaturated soils. EPA/600/2-91/065 (NTIS 92-119668), US Environmental Protection Agency, Washington, DC

- Vogel T, Cislerova M, Hopmans JW (1991) Porous media with linearly variable hydraulic properties. Water Resour Res 27:2735–2741. https://doi.org/10.1029/91WR01676
- Wu R, Martin V, McKenzie JM, Broda S, Bussière B, Selker J, Aubertin M (2021) Fiber optic measurements of soil moisture in a waste rock pile. Groundwater 59:549–561. https://doi.org/10.1111/gwat. 13075

Publisher's note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Springer Nature or its licensor holds exclusive rights to this article under a publishing agreement with the author(s) or other rightsholder(s); author self-archiving of the accepted manuscript version of this article is solely governed by the terms of such publishing agreement and applicable law.

Résumé :

L'exploitation minière dans le monde présente des enjeux financiers et sociétaux importants notamment avec la demande croissante en métaux aujourd'hui et dans les années à venir. L'exploitation des métaux génère des quantités importantes de stériles et de résidus miniers issus des traitements qui peuvent avoir de nombreuses conséquences sur l'environnement : drainage minier acide, rejets d'effluents concentrés en métaux et dans le cas spécifique des mines d'uranium, la migration/émanation des descendants radioactifs de l'uranium. Une gestion responsable de ces sites est donc un enjeu important pour limiter leur impact environnemental et sanitaire et repose nécessairement sur une bonne connaissance de leur fonctionnement. L'objectif de la thèse est de caractériser le fonctionnement hydrogéologique des sites de stockages de résidus de traitement de minerais d'uranium, aujourd'hui et sur plusieurs dizaines d'années à venir, pour contribuer à cette gestion responsable. Ce travail s'intéresse à trois anciennes mines d'uranium localisées en France dans lesquelles sont stockés des résidus issus du traitement minier. Ces sites ont été sélectionnés pour représenter les principaux types de stockage et les différentes modalités d'écoulement au sein des résidus. Ces sites sont actuellement gérés par l'Après-mines France d'ORANO et font l'objet d'une surveillance environnementale (air, eau, sol, chaîne alimentaire) démontrant l'absence d'impact radiologique et sanitaire. La méthodologie appliquée dans cette thèse se décompose en trois parties. La première concerne la collecte de données historiques issues du suivi environnemental ainsi que l'acquisition et l'analyse de nouvelles données sur les sites. La deuxième partie porte sur la modélisation hydrogéologique qui est un outil permettant de quantifier et de prédire les écoulements souterrains dans ces sites de stockage de résidus. L'approche de modélisation a été adaptée au type de stockage et d'écoulement existant sur les sites. La dernière partie concerne l'étude du changement climatique à travers l'évolution des termes du bilan hydrologique, la variabilité saisonnière et l'analyse de l'intensité et de la fréquence des évènements extrêmes jusqu'en 2100. Ces travaux aident à comprendre le fonctionnement hydrogéologique actuel des trois sites de stockages de résidus miniers. L'étude du changement climatique montre que la gestion actuelle des sites devrait rester valable dans le futur.

Mots clés : [Stockage de résidus, Analyse de données de terrain, Modélisation hydrogéologique, Gestion de l'eau, Changement climatique, Evènements extrêmes]

[Flow modelling in mine tailings storage sites]

Abstract:

In the world, mining presents major financial and social challenges, particularly with the growing demand for metals today and in the future. Mining produces large quantities of waste rock and mine tailings and can lead to many environmental issues such as: acid mine drainage, release of effluent with high metal concentration and in the specific case of uranium mine, the migration/emanation of uranium's radioactive descendants. Responsible management of these sites is fundamental to avoid environmental and health impacts and relies on a good knowledge of their functioning. The aim of this thesis is to characterize the hydrogeological functioning of the tailings storage sites, today and over several decades to come, to ensure responsible management. This thesis focuses on three former uranium mines in France where tailings are stored. These sites have been chosen to represent the main storage types and the different water flow types in the tailings. These sites are managed by ORANO AMF department (After-Mines France) and are under environmental monitoring (air, water, soil, food chain) that demonstrates the absence of any radiological or health impact. The methodology applied in this thesis is divided into three parts. The first part concerns the historical data collection coming from environmental monitoring, the implementation of a new monitoring on the sites and the data analysis. The second part is about the hydrogeological modeling used to quantify and predict the groundwater or surface flows in the tailings storage sites. The modeling approach has been adapted to the type of storage and flow on sites. The last part concerns the study of the climate change up to 2100 through the evolution of water balance variables, the seasonal variation and the frequency and intensity analyses of extreme events. In this thesis we proposed a methodology to understand the current hydrogeological functioning of 3 tailings storage sites. The climate change study shows that the current site management should remain sustainable in the future.

Keywords: [Tailings storage facilities, Field data analysis, Hydrogeological modeling, Water management, Climate change, Extreme events]