

Université des Sciences et Technologies de Lille
U.F.R. des Sciences de la Terre

n° d'ordre : 3051

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Lille I

En : Dynamique et Environnement Sédimentaires

présentée et soutenue publiquement par

Sophie DENIMAL

Le : 20 Décembre 2001

Titre :

**Impact des terrils houillers du bassin minier
Nord-Pas-de-Calais sur la qualité des eaux de la
nappe de la Craie.**

Directeur de thèse : N. Tribovillard

JURY

L. Dever, Professeur	<i>Université Paris XI-Orsay</i>	Rapporteur
C. Dupuis, Professeur	<i>Faculté polytechnique de Mons</i>	Rapporteur
J-L. Bastien, Ingénieur	<i>Etablissement Public Foncier</i>	Examineur
H. Coulon, Docteur	<i>CETE-Nord-Pas-de-Calais</i>	Examineur
R. Guerin, Maître de Conférence	<i>Université Paris VI-Jussieu</i>	Examineur
J. Laversanne, Docteur ingénieur	<i>Charbonnages de France</i>	Examineur
F. Meilliez, Professeur	<i>Université de Lille 1</i>	Examineur
N. Tribovillard, Professeur	<i>Université de Lille 1</i>	Examineur

Résumé - L'exploitation du charbon dans le bassin minier Nord-Pas-de-Calais a engendré le dépôt sous forme de terrils d'importantes quantités de résidus. Le lessivage par les eaux météoriques de ces stériles, essentiellement constitués de schistes houillers, et l'oxydation de la pyrite contenue sont susceptibles de libérer non seulement des sulfates mais également des eaux acides, potentiellement riches en métaux. Cette étude a pour objectif de déterminer l'impact éventuel des terrils sur la qualité de la nappe de la craie qui constitue la principale ressource en eau de la région. Deux sites ont été choisis pour la réalisation de cette étude : le site 1 se trouve en zone de nappe libre, il n'est séparé de la craie senon-turonienne que par une mince couche de limons et le site 2 en zone de nappe semi-captive en est en partie séparé par les formations tertiaires (Argiles de Louvil et Sables d'Ostricourt).

Un départ de carbone et de soufre a pu être mis en évidence en subsurface des terrils, de même qu'une augmentation des teneurs en sulfates des eaux souterraines situées à l'aval. L'utilisation des isotopes du soufre comme marqueurs des différentes sources de sulfates a permis de confirmer l'hypothèse d'un apport par les terrils mais aussi d'identifier, sur le site 2, une autre source provenant du gypse contenu dans les Sables d'Ostricourt. Cette étude a également permis de constater, qu'en zone de nappe captive, il s'opère une réduction bactérienne des sulfates rendue possible par l'apport de carbone provenant des terrils sus-jacents. Aucun lessivage de métaux lourds sur les terrils et aucune trace de panache riche en métaux à l'aval des sites n'ont pu être mis en évidence. Les stériles étudiés ici provoquent la formation d'un drainage acide minier neutralisé par le milieu tampon que constitue la craie et dont les principaux témoins sont l'augmentation des teneurs en sulfates reconnue à l'aval des sites étudiés mais également l'augmentation en calcium, bicarbonate, magnésium et strontium résultant de la dissolution des carbonates en réaction à l'arrivée d'une eau légèrement acide.

Le deuxième volet de cette étude a été consacré à la détermination de l'existence éventuelle d'une infiltration des eaux météoriques au sein du terril du site 2. Cette étude a permis de montrer, grâce notamment à la réalisation d'une étude des variations de perméabilité en profondeur, à l'utilisation de la méthode Radiomagnéto-Tellurique et à la réalisation de panneaux électriques que l'infiltration des eaux en profondeur est très limitée. Cette faible infiltration est à relier au caractère très peu perméable de l'édifice et à l'existence en profondeur de nombreuses « barrières de perméabilité » qui, en limitant l'infiltration des eaux en profondeur, limitent également la quantité de sulfure potentiellement oxydable et donc la quantité de sulfates entraînée vers la nappe de la Craie.

Mots-clés : terril, pyrite, oxydation, sulfates, ^{34}S , drainage acide minier, bassin minier, Nord-Pas-de-Calais

Impact of Nord-Pas-de-Calais coal basin mine dumps on the quality of Chalk aquifer waters.

Abstract - In the Nord-Pas-de-Calais region (Northern France), mining activity related to coal extraction resulted in the presence of numerous mine tips. The weathering of those wastes leads to the oxidation of the pyrite contained in the Carboniferous shales and could thus release sulphate and acid waters, potentially enriched in heavy metals within the run-off waters down to the underlying aquifer, hosted by thick Cretaceous chalk formation. The aim of this study is to determine the possible role of the mine tips on the quality of the chalk aquifer, the first-order drinking water supply at the regional scale.

Two sites have been selected, according to their contrasted (hydro)geological setting : site 1 lies directly on the Senonian-Turonian chalk while site 2 lies on the sandy-clayey Tertiary formations (Argiles de Louvil and Sables d'Ostricourt) overlying the chalk formations. The chalk aquifer is a free water table excepted where the Tertiary formations make this table confined, as is the case for site 2. A release of carbon and sulphur from waste dumps surface has been evidenced. Analysis of groundwater sulphate content downstream and upstream of the two sites confirms the impact of the mine tips on the chalk waters. The use of sulphur isotopes as tracers for sulphate origin has permitted to identify two sources : a « mine dump » source on the two sites and a second source related to the gypsum of the « Sables d'Ostricourt » on site 2. This study has also evidenced, in the confined zone (site 2), a bacterial sulphate reduction allowed by the release of carbon from the mine spoils. No leaching of heavy metals on mine tips surface and no enrichment of the Chalk aquifer waters have been observed on the two sites. The mine spoils studied here cause an acid mine drainage (AMD) neutralised during the infiltration into the chalk aquifer. The only witnesses of this AMD are the enrichments in sulphate ions observed downstream of mine dumps and the increase in calcium, bicarbonate, magnesium and strontium contents resulting from the reaction between slightly acid waters and the carbonates of the Chalk aquifer.

In order to determine the capacity of rainwaters to seep through the waste dumps, permeability measurements, and geophysical technique such as radiomagnetotelluric investigations and electrical 2D imaging have also been used on site 2. The rainwater infiltration seems to be very limited because of the low permeability of the mine dumps and the existence of impermeable levels at depth which limit the rainwater seepage, the amount of sulphide mobilisable and then the amount of sulphates exported to the chalk aquifer.

Key-words : Mine dump, pyrite, oxydation, sulphate, ^{34}S , acid mine drainage, coal basin, Nord-Pas-de-Calais

SOMMAIRE

INTRODUCTION	5
CHAPITRE I : LE DRAINAGE ACIDE MINIER : ÉTAT DES CONNAISSANCES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
NON DÉFINI.	
1 - PRINCIPES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
2 - OXYDATION DES SULFURES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
3 - FACTEURS CONTRÔLANT LA PRODUCTION DU DRAINAGE ACIDE MINIER (AMD)	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
3.1 - L'activité bactérienne	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.2 - Effet du pH	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.3 - Effet de la surface spécifique, de la cristallinité de la pyrite et de l'épaisseur de la couche oxydée	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.4 - Effet de l'oxygène et de l'eau	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.5 - Effet des microenvironnements	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.6 - Effet de la température	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.7 - Durée des périodes sèches et des périodes humides	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.8 - L'altération physique	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
4 - LES MINÉRAUX SECONDAIRES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
5 - ÉLÉMENTS LIÉS AUX PRÉCIPITÉS DE FER ET MÉTAUX LOURDS	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
6 - NEUTRALISATION DU DRAINAGE ACIDE MINIER	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
7 - DÉTERMINATION DU POTENTIEL D'ACIDIFICATION ET DE NEUTRALISATION DES STÉRILES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
7.1 - Test de détermination des acides-bases	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
7.2 - Test de détermination modifiée des acides-bases	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
7.3 - Essai initial de B.C. Research	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
7.4 - Essai de production nette d'acide	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
7.5 - Essai d'établissement du ratio Soufre / Potentiel de production alcaline	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
7.6 - Mesure du potentiel de neutralisation par l'analyse des carbonates	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
CHAPITRE II : PRÉSENTATION DES SITES D'ÉTUDE	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
1 – DESCRIPTION, HISTORIQUE	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
1.1 - Site 1 (Fig. 2.2)	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
1.2 - Site 2 (Fig. 2.5 et 2.6)	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2 - CONTEXTE GÉOLOGIQUE	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
2.1 - Généralités : le bassin minier	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.2 - Les sites étudiés	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3 - CONTEXTE HYDROGÉOLOGIQUE	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.

- 3.1 - Les différents aquifères..... **Erreur! Signet non défini.**
 3.2 - La nappe de la Craie..... **Erreur! Signet non défini.**

CHAPITRE III : ALTÉRATION CHIMIQUE DES TERRILS ET TRANSFERT DE SULFATES VERS LA NAPPE DE LA CRAIE ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.

- 1 – PRÉLÈVEMENTS, MÉTHODES D'ÉTUDE ET RÉSULTATS..... **ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.**
- 1.1 - Prélèvements solides **Erreur! Signet non défini.**
- 1.1.1 - Terrils **Erreur! Signet non défini.**
- 1.1.2 - Bassins de décantation..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2 – Résultats des analyses menées sur la fraction solide..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.1 - Analyses minéralogiques (roche totale et argiles)..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.2 – MEB et micro-sonde..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.3 - Teneurs en soufre et carbone..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.4 - Analyses chimiques (éléments majeurs et éléments traces) ... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.5 - Analyses isotopiques (³⁴S)..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.2.6 - Calcimétrie **Erreur! Signet non défini.**
- 1.3 - Prélèvements liquides..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.3.1 - Eaux souterraines **Erreur! Signet non défini.**
- 1.3.2 – Autres prélèvements liquides effectués **Erreur! Signet non défini.**
- 1.4 – Résultats des analyses menées sur les prélèvements liquides **Erreur! Signet non défini.**
- 1.4.1 - Mesures *in situ* (eaux souterraines) **Erreur! Signet non défini.**
- 1.4.2 - Analyses chimiques (éléments majeurs et éléments traces) ... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.4.3 - Analyses isotopiques **Erreur! Signet non défini.**
- 1.5 – Variations qualitatives et quantitatives des précipitations à proximité des sites étudiés **Erreur! Signet non défini.**
- 1.5.1 – Calculs de Pluie efficace..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.5.2 – Variations du chimisme des eaux de pluie..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.6 - Essais de lixiviation et mesures du potentiel d'acidification et de neutralisation des stériles houillers..... **Erreur! Signet non défini.**
- 1.6.1 – Mise en contact des stériles houillers avec des solutions de pH basique à acide **Erreur!**
Signet non défini.
- 1.6.1.1 - Principes et protocole : **Erreur! Signet non défini.**
- 1.6.1.2 - Résultats : **Erreur! Signet non défini.**
- 1.6.2 - Essais en condition saturée / essais en condition saturée – non saturée **Erreur!**
Signet non défini.
- 1.6.2.1 - Principes et protocoles : **Erreur! Signet non défini.**
- 1.6.2.2 - Résultats **Erreur! Signet non défini.**

1.6.3 - Potentiel d'acidification et potentiel de neutralisation	Erreur! Signet non défini.
2 - INTERPRÉTATIONS	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
2.1 - Départ de carbone et de soufre en surface des terrils	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.2 - Chimie et minéralisation sulfatée	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.3 - Détermination des sources de sulfate	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.3.1 - Le $\delta^{34}\text{S}$: marqueur des sources de sulfates	Erreur! Signet non défini.
2.3.2 - L' ^{18}O des sulfates	Erreur! Signet non défini.
2.4 - Processus de réduction	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.5 - Variations de pH et variations du chimisme des eaux de la nappe de la Craie en aval des terrils	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.6 - Comportement des métaux	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.7 - Les minéraux secondaires : des témoins d'un drainage acide minier limité	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3 - CONCLUSION	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
CHAPITRE IV : COMPORTEMENT DES EAUX MÉTÉORIQUES, MODALITÉS DE DÉPLACEMENT : RUISSELLEMENT ? , INFILTRATION ?	
ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.	
1 - CARACTÉRISTIQUES HYDROGÉOLOGIQUES DES TERRILS ET CONSÉQUENCES SUR LA PRODUCTION D'AMD ET LA LIBÉRATION D'IONS SULFATES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
1.1 - Origine de l'hétérogénéité du matériau constitutif des terrils	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
1.2 - Facteurs influençant la circulation des eaux	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
1.2.1 - Lithologie et granulométrie	Erreur! Signet non défini.
1.2.2 - Le mode de « mise à terril »	Erreur! Signet non défini.
1.2.3 - Compaction et âge des résidus	Erreur! Signet non défini.
2 - MÉTHODES UTILISÉES ET RÉSULTATS	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
2.1 - La méthode Radiomagnéto-Tellurique	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.1.1 - Principe et méthode	Erreur! Signet non défini.
2.1.2 - Résultats	Erreur! Signet non défini.
2.2 - Panneaux électriques	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.2.1 - Principes et méthodes	Erreur! Signet non défini.
2.2.2 - Résultats	Erreur! Signet non défini.
2.2.2.1 - Prospection de Juillet 2000	Erreur! Signet non défini.
2.2.2.2 - Prospection de Février 2001	Erreur! Signet non défini.
2.3 - Cartographie électromagnétique Slingram (EM 31)	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.3.1 - Principe et méthode (Fig. 4.20)	Erreur! Signet non défini.
2.3.2 - Résultats	Erreur! Signet non défini.
2.4 - Essais Perméafor	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
2.4.1 - Principes et méthodes (Fig. 4.22)	Erreur! Signet non défini.
2.4.2 - Résultats	Erreur! Signet non défini.
2.5 - Sondages et analyses granulométriques	<i>Erreur! Signet non défini.</i>

2.5.1 - Méthode.....	Erreur! Signet non défini.
2.5.2 - Résultats	Erreur! Signet non défini.
3 - INTERPRÉTATIONS	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
3.1 – Détermination de zones d’infiltration préférentielle des eaux météoriques, apports de la Radiomagnéto-Tellurique.....	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.2 – Mise en évidence de barrières de perméabilité naturelles et impact sur la quantité de sulfate potentiellement exportable.....	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.3 - Panneaux électriques et cartographie électromagnétique	<i>Erreur! Signet non défini.</i>
3.3.1 - Panneaux électriques	Erreur! Signet non défini.
3.3.2 - Cartographie électromagnétique.....	Erreur! Signet non défini.
4 - CONCLUSION	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
CHAPITRE V : SYNTHÈSE ET CONCLUSION : LES TERRILS DU BASSIN MINIER NORD-PAS-DE-CALAIS, LE CAS D’UN DRAINAGE ACIDE MINIER NEUTRALISÉ..... 9	
1 - MISE EN ÉVIDENCE DE L’EXISTENCE D’UN DRAINAGE ACIDE MINIER LIMITÉ SUR LES SITES ÉTUDIÉS	10
1.1 – Le lessivage du soufre en surface des terrils	10
1.2 - Mise en évidence d’un panache sulfaté à l’aval des sites.....	10
1.3 – Confirmation du rôle joué par les terrils dans la minéralisation sulfatée de la nappe de la Craie.....	11
1.4 – Les stériles houillers étudiés sont une source potentielle d’acidification.....	11
1.5 – Présence de minéraux secondaires typiques des cas de drainage acide minier sur les deux sites.	12
2 - LIMITATIONS DU DRAINAGE ACIDE ISSU DES SITES ÉTUDIÉS	12
2.1 – La faible teneur en soufre des stériles mis à terril.....	210
2.2 – L’absence de lessivage des métaux.....	13
2.3 - L’apport d’oxygène et l’infiltration des eaux	14
2.4 – La perméabilité des terrils	15
2.5 – La neutralisation du drainage acide minier	16
2.6 – Variations du contexte géologique et hydrogéologique entre les sites 1 et 2	16
3 - CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	17
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
TABLE DES ILLUSTRATIONS.....	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.
ANNEXES.....	ERREUR! SIGNET NON DÉFINI.

INTRODUCTION

Le drainage acide minier a fait l'objet de nombreuses études dans la plupart des pays concernés par l'extraction des métaux mais également l'exploitation du charbon. Le drainage acide minier constitue en effet un danger potentiel notamment pour les écosystèmes mais également pour la qualité des ressources en eau. En effet, les sites miniers laissent, après extraction, de grandes quantités de déchets, souvent riches en sulfures. L'oxydation de ces sulfures engendre des eaux acides potentiellement riches en métaux, susceptibles de rejoindre les eaux de surface et les aquifères profonds.

L'exploitation du charbon a ainsi créé dans de nombreux pays (notamment les Etats-Unis, la Corée, l'Europe de l'Est, l'Angleterre ou encore la Belgique) de nombreux problèmes environnementaux. Les recherches sur le sujet se sont tout d'abord focalisées sur les ouvrages souterrains mais depuis quelques années l'intérêt a commencé à se porter sur les déchets abandonnés en surface à la fin de l'exploitation. C'est ainsi que des études se sont développées pour connaître l'impact des terrils sur la production de drainage acide minier. Les études menées en France sur l'impact environnemental des résidus d'exploitation charbonnière restent cependant relativement peu nombreuses.

C'est dans ce cadre que le travail exposé dans ce mémoire a débuté : le projet « évolution physico-chimique des terrils du bassin minier Nord-Pas-de-Calais et impact environnemental » a fait l'objet d'une convention établie entre l'Université des Sciences et Technologies de Lille et l'Etablissement Public Foncier ainsi que d'un partenariat avec Charbonnages de France et le Centre d'Etudes Techniques de l'Équipement. En effet, dans le Nord-Pas-de-Calais comme dans tous les bassins houillers, l'activité minière liée à l'extraction du charbon se traduit notamment par l'existence de terrils, très nombreux et de taille souvent considérable. La plupart du temps, le choix de l'emplacement des terrils a obéi à des impératifs économiques qui ne prenaient en compte ni la nature du substratum, ni le risque potentiel de contamination des aquifères sous-jacents par des composés organiques et inorganiques susceptibles d'être libérés lors de la météorisation de ces édifices.

Ce travail a eu pour objectif de déterminer quels peuvent être les impacts des terrils du bassin minier Nord-Pas-de-Calais sur la qualité des eaux souterraines et notamment sur la nappe de la Craie sous-jacente qui constitue la principale ressource en eau de la région. Pour ce faire, deux sites ont été choisis en collaboration avec Charbonnages de France au vu de leur équipement piézométrique permettant un échantillonnage des eaux souterraines en amont et en aval hydraulique des terrils, et de leurs contextes géologique et hydrogéologique différents : le site 1 est disposé en zone de nappe libre,

au dessus de la craie Seno-Turonienne ; le second en zone de nappe semi-captive puisqu'il est séparé de la nappe de la Craie par les formations tertiaires (Argiles de Louvil et Sables d'Ostricourt). Dans cette étude il a été choisi d'utiliser le sulfate, comme marqueur d'un éventuel impact, puisqu'il s'agit d'un élément très mobile et qui peut être annonciateur de la libération de métaux lorsque des eaux très acides sont produites par oxydation des sulfures.

L'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers qui constituent les terrils n'est cependant pas l'unique source possible de sulfate dans le bassin minier. Les travaux antérieurs (Bernard, 1979 ; Droz, 1985) donnent ainsi également comme sources possibles d'apport :

→ la dissolution des minéraux évaporitiques présents dans la formation des Calcaires carbonifères et pouvant contaminer localement *per ascensum* la nappe de la Craie là où la nappe des Calcaires carbonifères est en charge ;

→ la mise en solution du gypse contenu dans les couches tertiaires (Argiles de Louvil et Sables d'Ostricourt) ;

→ les sulfates d'origine anthropique liés aux rejets d'eaux usées et/ou aux pratiques agricoles.

La géochimie isotopique et notamment l'utilisation des isotopes stables du soufre, marqueurs classiques des sources de sulfates, a été utilisée dans le but d'une part, de vérifier l'existence d'un apport de sulfates par les terrils vers la nappe de la Craie et d'autre part, de déterminer l'éventuelle existence d'une autre source sur les sites étudiés.

La quantité de sulfate potentiellement libérable à partir des terrils dépend de la quantité de sulfure lessivable et donc de la possibilité pour les eaux météoriques de s'infiltrer dans les terrils. Une étude du comportement (ruissellement ? infiltration ?) des eaux météoriques sur ces édifices a donc été menée, d'une part par l'étude des variations de perméabilité en profondeur sur l'un des sites, et d'autre part par l'utilisation de techniques géophysiques de subsurface (méthode Radiomagnétotellurique et panneaux électriques notamment) dans le but de déterminer une éventuelle infiltration des eaux météoriques en profondeur dans les édifices.

Cette étude est complétée par une approche expérimentale visant à étudier la libération en fonction du temps des ions sulfates, et le relargage potentiel de métaux éventuellement présents dans les schistes houillers.

Ce mémoire s'organise en cinq chapitres de la manière suivante :

- Le premier chapitre constitue une courte synthèse de l'état des connaissances sur les processus de drainage acide minier.
- Le second chapitre correspond à la présentation des sites étudiés, après un bref historique des activités menées sur ces sites ; leurs contextes géologique et hydrogéologique sont présentés.

- Le troisième chapitre rassemble les résultats et interprétations de l'étude géo- et hydro-chimique menée à la fois *in situ* (analyses des teneurs en carbone et soufre total des schistes houillers, analyses des teneurs en sulfates des eaux de la nappe de la Craie, analyses isotopiques et notamment recherche des sources de sulfates par l'utilisation des isotopes du soufre), et en laboratoire, par le biais des essais de lixiviation réalisés sur les stériles houillers.
- Le quatrième chapitre regroupe les résultats et interprétations des études, notamment de géophysique de subsurface, réalisées pour déterminer le comportement des eaux météoriques sur les terrils.
- Le cinquième chapitre est consacré à la synthèse des différents résultats acquis et à leur mise en perspective dans le cadre plus général des processus liés au drainage acide minier.

Une conclusion générale permet de faire le bilan du travail effectué et d'en tracer quelques perspectives.

CHAPITRE V :
SYNTHESE ET CONCLUSION :
LES TERRILS DU BASSIN MINIER NORD-PAS-DE-
CALAIS, LE CAS D'UN DRAINAGE ACIDE MINIER
NEUTRALISE

Cette étude a été réalisée dans le but d'évaluer l'impact potentiel des terrils du bassin minier Nord-Pas-de-Calais sur la qualité de la nappe de la Craie et s'est articulée suivant deux volets principaux : le premier correspond à une étude hydro-chimique de la minéralisation de la nappe de la Craie. Il a été choisi de baser cette réflexion sur le comportement des sulfates, très solubles, et qui peuvent être les témoins privilégiés de l'éventuelle existence d'un drainage acide minier dû à l'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers et pouvant entraîner une acidification du milieu conduisant à une éventuelle libération de métaux. Nous nous sommes attachés dans le deuxième volet à déterminer l'existence ou l'absence ainsi que les modalités d'une infiltration des eaux météoriques au sein des terrils. Pour réaliser cette étude, deux sites ont été choisis en collaboration avec Charbonnage de France en raison d'une part de leur bon équipement piézométrique permettant un échantillonnage des eaux de la nappe de la Craie en amont et en aval des terrils, et d'autre part de leurs contextes géologique et hydrogéologique différents puisque le site 1 est en domaine de nappe libre et le site 2 en domaine de nappe semi-captive puisqu'il est séparé de la craie Seno-Turonienne par les formations d'âge tertiaire (Argiles de Louvil et Sables d'Ostricourt).

1 - Mise en évidence de l'existence d'un drainage acide minier limité sur les sites étudiés (Fig. 5.1)

Comme nous avons pu le constater dans le chapitre III, le drainage acide minier, bien que limité sur les sites étudiés est prouvé :

1.1 – Le lessivage du soufre en surface des terrils

L'analyse des teneurs en soufre total des échantillons prélevés sur les terrils des deux sites montre que les échantillons de surface sont appauvris par rapport aux échantillons prélevés en profondeur. Ceci témoigne d'un lessivage de cet élément en subsurface des terrils étudiés. Il a également été possible de montrer un lessivage du carbone, concomitant de celui du soufre sur les deux sites.

1.2 - Mise en évidence d'un panache sulfaté à l'aval des sites

Les prélèvements effectués dans les mares temporaires présentent sur les sites et formées par l'accumulation des eaux de ruissellement, ont montré une concentration en sulfate élevée (1400 mg.l⁻¹). Ces teneurs importantes sont attribuées au fait que les eaux météoriques, au contact des stériles houillers entassés, se chargent en sulfate issu de l'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes. Les piézomètres situés en amont et en aval des sites ont permis un échantillonnage des eaux de la nappe de la Craie et une confirmation de l'impact des terrils sur sa minéralisation : nous avons en effet pu observer une augmentation significative des concentrations en sulfate mesurées entre l'amont et l'aval des sites. Le site 1 a notamment montré des concentrations en sulfate de l'ordre de 700 mg.l⁻¹ en aval (le piézomètre SHS3 (Fig. 3.17) est exclu de cette constatation car il s'agit d'un piézomètre creusé dans un bassin à cendres baigné par les eaux de la nappe de la Craie ce qui explique la concentration en sulfates de 1500 mg.l⁻¹ mesurée).

1.3 – Confirmation du rôle joué par les terrils dans la minéralisation sulfatée de la nappe de la Craie

L'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers des terrils ne constitue pas la seule source de sulfates dans le bassin minier Nord-Pas-de-Calais, on peut différencier d'autres sources potentielles (Bernard, 1979 ; Droz, 1985) : (i) la dissolution des minéraux évaporitiques présents dans les Calcaires carbonifères et pouvant contaminer localement *per ascensum* la nappe de la Craie ; (ii) la mise en solution du gypse contenu dans les couches tertiaires (Argiles de Louvil et Sables d'Ostricourt) ; (iii) les sulfates d'origine anthropique liés aux rejets d'eaux usées et/ou aux pratiques agricoles.

La géochimie isotopique et notamment l'utilisation des isotopes stables du soufre, marqueurs classiques des sources de sulfates, a été utilisée dans le but d'une part, de vérifier l'existence d'un apport de sulfates par les terrils vers la nappe de la Craie et d'autre part, de déterminer l'éventuelle existence d'une autre source sur les sites étudiés. Ainsi, cette étude a permis de montrer que les concentrations en sulfates présentes dans la nappe de la Craie à l'aval des sites étaient, au moins en partie, attribuables à l'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers formant les terrils. Des valeurs faiblement négatives ont ainsi été reconnues, notamment à l'aval du site 1 et sont caractéristiques d'une oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers. Une autre source correspondant au gypse contenu dans les Sables d'Ostricourt a également été mise en évidence sur le site 2 grâce à la signature isotopique caractéristique de ces niveaux ($\delta^{34}\text{S} = -20 \text{ ‰}$) reconnue dans les eaux prélevées dans l'un des piézomètres.

1.4 – Les stériles houillers étudiés sont une source potentielle d'acidification

Le potentiel net de neutralisation des stériles houillers mis à terril et des résidus de bassin de décantation, c'est-à-dire la différence entre leur potentiel de neutralisation et leur potentiel d'acidification s'est révélé négatif dans de nombreux cas, ce qui signifie que les stériles entassés sur les sites 1 et 2 sont potentiellement générateurs d'acide.

1.5 – Présence de minéraux secondaires typiques des cas de drainage acide minier sur les deux sites.

Nous avons pu observer à de nombreuses reprises au cours des différents échantillonnages sur les deux sites, la présence en profondeur de taches de couleur jaune ocre de taille restreinte (le plus souvent centimétrique), présentant parfois une forme noduleuse ou une forme pulvérulente, sorte de couronne d'altération autour de grains de pyrite. Les analyses par diffraction des rayons X et les analyses au MEB-EDS ont montré qu'il s'agissait de jarosite et de natrojarosite qui sont tous deux des minéraux secondaires caractéristiques d'une oxydation de sulfure et qui sont bien connus pour être présents dans les cas de drainage acide minier.

Les terrils étudiés dans ce mémoire peuvent donc vraisemblablement être à l'origine d'un drainage acide minier limité par différents facteurs comme nous allons le voir dans la suite de cette partie.

2 - Limitations du drainage acide issu des sites étudiés

Comme nous venons de le voir, le drainage acide minier résultant de l'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers des deux terrils étudiés est avéré mais ses conséquences sont très limitées puisque les seuls témoins de cet AMD sont d'une part la présence d'un lessivage superficiel du soufre sur les terrils, ceci est combiné à la fois aux concentrations élevées en sulfates des eaux prélevées dans les mares temporaires et des eaux souterraines situées à l'aval des terrils, et d'autre part, la présence au sein des terrils de minéraux secondaires tels que la jarosite, la natrojarosite ou encore la ferrihydrite, qui, même s'ils sont présents en petite quantité, témoignent tout de même d'une oxydation des sulfures et donc de la possibilité d'un drainage acide minier.

Face au volume conséquent des terrils étudiés (2,8 millions de m³ pour le site 1 et 15 millions de m³ pour le site 2), une question essentielle se pose : pourquoi ce drainage acide minier n'est-il pas plus « sévère » ?

Une combinaison de phénomènes mis en évidence grâce au travail réalisé permet de répondre, au moins en partie, à cette interrogation :

2.1 – La faible teneur en soufre des stériles mis à terril

La teneur en soufre des échantillons prélevés sur les terrils est relativement faible. La concentration moyenne en soufre total des stériles du site 1 est de 0,2 %, de 0,3 % pour le site 2 et de 0,5 % pour les résidus de bassin de décantation du même site. Or, plus la quantité de pyrite présente dans les stériles est importante et plus le drainage acide minier généré est important. Cependant, si le volume total des terrils était concerné par les phénomènes d'oxydation de la pyrite, la quantité de matériau étant considérable, l'impact de ces édifices, notamment sur la qualité des eaux serait loin d'être négligeable. Comme nous l'avons vu, il existe bien un lessivage du soufre sur les terrils étudiés mais ce lessivage ne semble concerner que la subsurface : les analyses réalisées sur les stériles montrent en effet un départ de soufre dans les premiers centimètres sur les terrils mais ce lessivage n'a pas été mis en évidence pour les échantillons prélevés dans le bassin de décantation C du site 2. Il ne semble pas exister de phénomène de lessivage dans ces bassins qui représentent pourtant en théorie, un risque conséquent en raison de leur teneur moyenne en soufre total plus élevée que celle des stériles mis à terril mais également en raison de la taille des particules entreposées : leur caractère fin permet en théorie une plus grande surface de contact avec l'air et l'eau et donc une optimisation des processus d'oxydation.

La faible teneur en pyrite reconnue globalement dans les schistes houillers étudiés ne doit pas masquer le fait qu'il s'agit de matériau hétérogène et qu'il peut exister par endroit ce que l'on nomme des micro-environnements, plus riches en pyrite et dont l'oxydation peut entraîner une acidification du milieu.

2.2 – L'absence de lessivage des métaux

Les analyses d'éléments majeurs et d'éléments traces réalisés sur les solides prélevés sur les deux sites n'ont montré aucun lessivage de métaux, à la fois pour les échantillons profonds (jusque 2,5 m pour le site 1, 12 m pour le site 2) comme pour les échantillons prélevés à haute résolution dans le premier mètre sur les deux terrils. Aucun lessivage de ces éléments n'a pu être mis en évidence dans le bassin de décantation C du site 2. Il n'a également été reconnu aucun panache de forte concentration en métaux lourds à l'aval des sites.

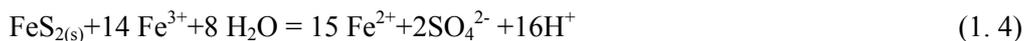
Les résultats des tests de lixiviation réalisés de pH basique à pH acide sur les deux types d'échantillons (stériles mis à terril et résidus de bassin de décantation) prélevés sur le site 2 ont de plus confirmé que la plupart des métaux présents étaient solubles à pH bas voire très bas ($\text{pH} < 2$) et que les

quantités relâchées pour ces valeurs de pH étaient relativement faibles. Or comme nous venons de le rappeler dans le paragraphe précédent, il n'existe pas d'acidification « massive » des terrils puisque le lessivage du soufre ne se fait qu'en surface.

L'oxydation de la pyrite se fait suivant la réaction exothermique suivante :



qui peut être divisée en plusieurs réactions :



On reconnaît donc deux agents oxydants : l'oxygène et le Fe^{3+} . Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, Kleinmann *et al.* (1981) et Nordstrom (1982) déterminent trois étapes dans la production d'AMD :

- 1- à pH proche de la neutralité ou faiblement acide, il y a oxydation par la réaction (1. 2),
- 2- à pH situé entre 4 et 5 l'oxydation se fait par une combinaison des réactions (1. 2) et (1. 4),
- 3- à pH inférieur à 3, la concentration en Fe^{3+} est suffisante pour que la réaction (1.4) domine et donc qu'il y ait plus d'acide généré (16 H^+ dans la réaction 1.4 contre 2 H^+ dans la réaction 1.2).

Les analyses isotopiques de l' ^{18}O des sulfates présents dans la nappe de la Craie à l'aval des sites a permis de montrer que l'oxydation de la pyrite par la réaction (1.2) dominait nettement celle qui était due à la réaction (1.4). Il apparaît donc que la concentration en Fe^{3+} du système n'est pas suffisante pour que la réaction (1.4) devienne le principal mécanisme de production acide. Au vu des résultats obtenus dans l'analyse de l' ^{18}O des sulfates, il semble que le processus d'oxydation actuel corresponde à un stade intermédiaire entre les étapes 1 et 2. Dans ce cas, la production acide est relativement lente, de plus, le pH n'atteint pas de valeurs extrêmement basses (il est de toute façon supérieur à 4), ce qui permet également d'expliquer pourquoi les métaux ne peuvent pas être solubilisés.

2.3 - L'apport d'oxygène et l'infiltration des eaux

L'apport d'oxygène atmosphérique est nécessaire soit à l'oxydation directe de la pyrite, soit à l'oxydation de Fe^{2+} en Fe^{3+} suivant la réaction (1.3). L'oxydation n'est donc possible que si l'oxygène peut pénétrer dans le terril. Ce transport se fait soit par diffusion, soit par advection (cf. chapitre 1) et ces deux modes sont liés notamment à la granulométrie des stériles mis à terril. Dans les sites étudiés, la taille des particules mais aussi leur nature (les stériles sont très majoritairement constitués de schistes relativement friables), leur agencement ainsi que le tassement qu'ils ont subi sous leur propre

pois sont autant d'indices permettant de penser que le processus essentiel qui permettrait d'amener l'oxygène en profondeur est la diffusion. Dans ce cas, d'après Rose et Cravotta (1998), l'épaisseur de stériles concernée par l'oxydation est bien inférieure à celle pouvant être atteinte par advection, et demeure restreinte aux premiers mètres superficiels.

Dans les cas étudiés ici, l'épaisseur concernée par les processus d'oxydation de la pyrite ou de transport des produits d'oxydation est encore plus faible. Les méthodes géophysiques ainsi que les essais Permeafor réalisés sur le site 2 permettent d'expliquer ce phénomène.

2.4 – La perméabilité des terrils

Nous avons pu mettre en évidence l'existence, grâce à la réalisation d'essais Permeafor sur le site 2 que le terril était globalement très peu perméable et qu'il existait également en profondeur des niveaux imperméables d'épaisseur variable. Ce caractère très peu perméable des terrils est responsable du ralentissement, voire de l'absence d'infiltration des eaux météoriques en profondeur et les barrières de perméabilité soulignent l'impossibilité pour ces eaux, si elles parviennent à une certaine profondeur, de poursuivre leur chemin plus bas.

L'étude granulométrique des stériles prélevés aux points Permeafor réalisés met en évidence deux origines possibles pour ces barrières de perméabilité :

→ Les barrières présentant une quantité de fines importante peuvent être le résultat de l'altération mécanique entraînant une diminution de la taille des particules schisteuses avec le temps. Leur présence en profondeur peut résulter de deux processus principaux : soit une altération en surface suivie d'une migration des fines à un moment où le terril ne présentait pas le tassement actuel, ces fines bouchant à terme la porosité initiale et accentuant ainsi encore les effets du tassement sur l'infiltration ; soit une création de ces barrières de perméabilité au moment du dépôt, toujours par une altération mécanique, ceci étant possible si les stériles sont restés suffisamment longtemps sous l'influence des agents météoriques pour qu'une diminution de la taille des grains puisse prendre place.

→ Les barrières qui ne présentent pas de teneur plus élevée en particules fines ont été attribuées à un agencement particulier des stériles, dans lequel une fois encore, le tassement doit jouer un rôle important, mais qu'il n'est pas possible de préciser à l'heure actuelle, sans la réalisation d'une étude de l'organisation de ces particules et de la porosité, étude de porosité qui s'avère extrêmement difficile dans ce type d'environnement non consolidé.

Les barrières de perméabilité mises en évidence ne sont bien sûr pas corrélables entre elles en raison du caractère granulométrique hétérogène et du mode de mise en place des schistes houillers. Cependant, il est important de constater que ces barrières ont été identifiées en grand nombre en chaque point testé sur le terril du site 2.

Il n'est toutefois pas possible d'exclure l'existence de petites infiltrations d'eaux météoriques dans le terril, notamment si des zones riches en matériau de compétence plus importante que les schistes existent : la présence de niveaux riches en grès pourrait ainsi permettre une meilleure infiltration des eaux de pluie en certains endroits. Cependant, étant donnée la prédominance du matériau schisteux sur les grès et la très faible perméabilité du terril, il est vraisemblable que le transfert de ces eaux vers l'extérieur du système ne soit rendu très difficile. Il n'a d'ailleurs pas été observé sur le site de résurgence importante d'eau vers l'extérieur, ce qui confirme bien qu'une infiltration massive d'eau en profondeur est exclue pour le site étudié.

La présence en profondeur dans les terrils de minéraux secondaires (jarosite notamment) ne résulte pas, au vu du caractère très peu perméable de l'édifice, d'un processus d'oxydation actuel mais plutôt d'une oxydation ayant eu lieu soit au moment de l'exploitation (dans les galeries de mines, sur le front de taille), soit au moment du dépôt lorsque le terril n'avait pas encore atteint la compaction qu'il présente aujourd'hui et que l'eau et l'oxygène pouvaient pénétrer en profondeur.

Ces minéraux secondaires présentent de toute façon une extension limitée qui témoigne également du fait que les phénomènes de drainage acide sont extrêmement limités sur les sites étudiés.

2.5 – La neutralisation du drainage acide minier

L'oxydation de la pyrite contenue dans les schistes houillers se fait en surface des terrils et permet l'exportation de sulfates mais aussi en toute logique d'eaux plus acides vers la nappe de la Craie. Cette dernière, de part sa nature carbonatée, permet de tamponner ces eaux, ce qui explique l'augmentation en calcium, magnésium, bicarbonate et strontium visible à l'aval des terrils.

Le fer issu de l'oxydation et pour lequel aucune augmentation de concentration n'est visible à l'aval des sites, peut être immobilisé soit *in situ* sous la forme de minéraux secondaires, soit précipiter une fois que la nappe de la Craie est atteinte, sous forme d'hydroxyde par exemple.

2.6 – Variations du contexte géologique et hydrogéologique entre les sites 1 et 2

Les conséquences sur la qualité de l'eau du drainage minier sont différentes d'un site à l'autre en raison de leur contexte géologique et hydrogéologique : la présence en aval du site 2 des formations tertiaires et notamment des Argiles de Louvil qui rendent à cet endroit la nappe de la Craie semi-captive, permettent d'expliquer le caractère réducteur des eaux, reconnu à l'aval de ce site, et ce fait, combiné à la mise en évidence par la diminution de l'activité ^{14}C mesurées dans les eaux de la nappe de la Craie entre l'amont et l'aval des terrils, d'un lessivage du carbone concomitant de celui du soufre sur les sites permet d'expliquer les concentrations plus basses en sulfate des eaux souterraines situées à l'aval du terril du site 2.

3 - Conclusions et perspectives

Les terrils étudiés ici exportent vers la nappe de la Craie des sulfates qui constituent le principal témoin d'un drainage acide minier neutralisé. Cette contribution des terrils à la minéralisation sulfatée a été confirmée par l'étude du $\delta^{34}\text{S}$ des sulfates présents dans les eaux souterraines et qui en constitue un excellent marqueur.

Aucune trace de lessivage de métaux lourds n'a pu être mise en évidence sur les sites et parallèlement aucun panache riche en métaux n'a été détecté à l'aval des terrils.

Les schistes houillers entassés contiennent peu de pyrite et son oxydation se fait essentiellement dans la partie superficielle des terrils. Aucune trace d'oxydation de pyrite n'a pu être mise en évidence dans le bassin de décantation du site 2 étudié.

L'oxydation de la pyrite sur les terrils ne permet pas *a priori* d'atteindre des valeurs de pH très basses et dans ces conditions, les métaux présents ne peuvent pas être solubilisés. La réalisation d'essais de lixiviation en milieu basique et acide a d'autre part montré que même à pH bas, la quantité de métaux solubilisés était très faible.

L'un des principaux facteurs limitants du drainage acide minier sur le site 2 correspond à la faible perméabilité d'ensemble de l'édifice et à l'existence en profondeur de barrières de perméabilité qui limitent l'infiltration des eaux météoriques et l'oxydation de la pyrite en profondeur ainsi que le transport des produits d'oxydation éventuellement présents.

Cette étude apporte des réponses aux questions posées mais d'autres investigations pourraient permettre de les affiner :

→ la réalisation d'un suivi des concentrations en sulfate des eaux de la nappe de la Craie à l'aval des sites pourrait permettre d'observer les variations saisonnières de cet élément. En effet, d'autres études ont montré qu'une pluviosité importante faisant suite à une période sèche entraînait une libération importante de sulfate tandis qu'une pluviosité mieux répartie dans le temps provoquait une libération graduelle des sulfates.

→ la réalisation de panneaux électriques disposés aux mêmes endroits, à intervalles de temps réguliers pourrait permettre de distinguer quelles variations de résistivité sont dues à la lithologie et quelles sont celles qui sont éventuellement attribuables à une infiltration d'eaux minéralisées.

- la réalisation de mesures de teneur en oxygène en profondeur dans les terrils et les bassins de décantation pourrait également permettre de connaître quelle épaisseur exacte de stériles peut être concernée par les processus d'oxydation de la pyrite.
- la réalisation d'autres tests de lixiviation dits « statiques » et leur comparaison avec les calculs de potentiel net de neutralisation effectués dans cette étude pourrait apporter une confirmation du pouvoir d'acidification des stériles étudiés. De même, la réalisation d'essais de lixiviation en colonnes, plus proches des réalités de terrain pourraient permettre d'aborder de manière fine la cinétique de libération des sulfates.

Cette étude de l'impact des terrils sur la qualité des eaux de la nappe de la Craie a été réalisée sur deux sites et ne peut pas, en conséquence, être généralisée à l'ensemble des terrils houillers du bassin minier Nord-Pas-de-Calais. En effet, d'autres terrils pourraient présenter une teneur en pyrite ou encore une granulométrie différentes et montrer une perméabilité plus importante permettant un apport d'oxygène et d'eau en profondeur, une oxydation de pyrite sur une épaisseur conséquente et donc un drainage acide minier plus sévère. Cependant, si les produits d'oxydation de la pyrite parvenaient dans ces zones à la nappe de la Craie, ce milieu tampon pourrait entraîner une neutralisation de l'acidité produite et une immobilisation des métaux lourds éventuellement présents.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

A

Aglave, S. (2000). Etude de la diagenèse précoce de dépôts miniers : les terrils. Mémoire de DEA, Université de Lille1. 51 p.

Aljoe, W.W. et Hawkins, J.W. (1994). Application of aquifer testing in surface and underground coal mines. *In: 5th International Mine Water Congress*, Nottingham, 3-21.

Aristodemou, E. et Betts, A.T. (2000). DC resistivity and induced polarisation investigations at a waste disposal site and its environments. *J. Appl. Geophys.*, **44**, 275-302.

B

Bain, J.G., Blowes, D.W., Robertson, W.D. et Frind, E.O. (2000). Modelling of sulfide oxidation with reactive transport at a mine drainage site. *Journal of Contaminant Hydrology*, **41**, 23-47.

Beckelynck, J., Bosch, B. et Talbot, A. (1981). Etude des possibilités d'exploitation d'eau chaude dans le hainaut, analyse du réservoir. 81SGN868NPC, BRGM.

Bell, F.G. et Bullock, S.E.T. (1996). The problem of acid mine drainage, with an illustrative case history. *Env. Eng. Geoscience*, **2**, 369-392.

Berger, A.C., Bethke, C.M. et Krumhansl, J.L. (2000). A process model of natural attenuation in drainage from a historic mining district. *Appl. Geochem.*, **15**, 655-666.

Berger, W., Börner, F.D. et Petzold, H. (2001). Consecutive geoelectric measurements reveal the downward movement of an oxidation zone. *Waste management*, **21**, 117-125.

Bernard, D. (1979). Contribution à l'étude hydrogéochimique de la nappe de la craie dans le Nord de la France. Etat et acquisition du chimisme de l'eau. Thèse, Université de Lille1, 179 p.

Bernard, D. (1998). Les eaux souterraines dans le Bassin Minier du Nord Pas-de-Calais. *In: Colloque sur l'après charbon*, Lille.

Bigham, J.M., Schwertmann, U., Traina, S.J., Winland, R.L. et Wolf, M. (1996). Schwertmannite and the chemical modeling of iron in acid sulfate waters. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **60**, 12, 2111-2121.

Bouroz, A., Chalard, J., Dalinval, A. et Stievenard, M. (1962). La structure du Bassin Houiller du nord de la région de Douai à la frontière belge. *Ann. Soc. Géol. Nord*, **LXXXI**, 173-200.

Bouroz, A., Chalard, J., Dalinval, A. et Stievenard, M. (1963). Carte des zones stratigraphiques à la côte -300 du Bassin Houiller du Nord de la France. *Institut Géographique National Ed.*

Bouroz, A. (1969). Le carbonifère du nord de la France. *Ann. Soc. Géol. Nord*, **LXXXIX**, 47-65.

Bradley, J. et Herman, J.S. (1989). Sulfate adsorption onto iron and aluminium hydroxides. *Eos*, **70**, 326.

Brady, K.B.C. et Smith, M.W. (1990). Pyritic sulfur analyses for coal overburden : differences between laboratories. *In: 1990 National Symposium on Mining*, University of Kentucky, Lexington, 53-58.

Bullock, S.E.T., Bell, F.G. et Marsh, C.A. (1997). The environmental impacts associated with a coal mine in the witbank coalfield, Republic of South Africa. *In: Engineering Geology and the Environment*, Athens, Greece, The Greek National Group of IAEG, 2327-2333.

C

Cammaer, C. (1998). Coal mining and groundwater in Flanders (Belgium). *Aard. Meded.*, **9**, 83-96.

Campbell, R.N., Lindsay, P. et Clemens, A.H. (2001). Acid generating potential of waste rock and coal ash in New Zealand coal mines. *Int. J. Coal Geol.*, **45**, 163-179.

Carlier, S. (1989). Remontées de la nappe de la craie dans le bassin minier Nord-Pas-de-Calais. Thèse, Université de Lille1, 339 p.

Cathles, L.M. et Apps, J.A. (1975). A model of the dump leaching processing that incorporates oxygen balance, heat balance, and convection. *Metallurgical Transactions*, **6B**, 617-624.

Caulier, P. (1974). Etude des faciès de la craie et de leurs caractéristiques hydrauliques dans la région du Nord. Thèse, Université de Lille1, 136 p.

Celet, P., Bernard, D., Fievet, J. et Maillot, H. (1990). Vulnérabilité de la nappe de la craie dans le Nord de la France. *Ann. Soc. Géol. Nord*, **CIX**, 93-100.

CETE-Nord (1998). Plaquette de présentation de la méthode Radiomagnéto-tellurique.

CETE-Est (2000). Le Permeafor : Fiche technique.

CETE-Est (2001). Le Permeafor : guide technique - prescriptions techniques du besoin - principes d'interprétation - applications. document provisoire, 20 p.

Chalard, J. (1960). Les Horizons à Goniatis du Namurien du Nord de la France. *In: IVème congrès pour l'avancement des études de stratigraphie et de géologie du Carbonifère*, Heerlen.

Chapman, B.M., Jones, D.R. et Jung, R.F. (1983). Processes controlling metal ion attenuation in acid mine drainage streams. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **47**, 1957-1973.

Charlier, F., Jacquemin, C., Veschkens, M. et Goemare, E. (1998). Contribution à l'étude de l'impact sur l'environnement des stériles charbonniers. Rapport n° 1998/2294/MV, Institut Scientifique de Service Public, 103 p.

Chaudy, C. (1997). Méthodologie de reconstitution 3D de la structure géologique du bassin minier Nord-Pas-de-Calais. DSR, Université de Lille1, 141 p.

Claypool, G.E., Holser, W.T., Kaplan, I.R., Sakai, M. et Zak, I. (1980). The age curves of sulfur and oxygen isotopes in marine sulfate and their mutual interpretation. *Chem. Geol.*, **28**, 199-260.

COASTECH Research Inc (1989). Investigation of prediction techniques for acid mine drainage. MEND Project 1.16.1a, Mine environment neutral drainage (MEND) program, 60 p.

COASTECH Research Inc (1991). Acid rock drainage prediction manual. MEND Project 1.16.1b, Mine environment neutral drainage (MEND) program.

Colbeaux, J.P., Dupuis, C., Robaszynski, F., Aufret, J.P., Haesaetrts, P. et Somme, J. (1980). Le détroit du Pas-de-Calais, un élément de la tectonique de blocs de l'Europe Nord-Occidentale. *Bull. Inf. Géol. Bass. Paris*, **17**, 4, 41-54.

Coleman, M.L., Sheperd, T.J., Durham, J.J., Rouse, J.E. et Moore, G.R. (1982). Reduction of water with zinc for hydrogen isotope analysis. *Anal. Chem.*, **54**, 993-995.

Cottez, S. et Dassonville, G. (1965). Carte de la surface piézométrique de la nappe de la craie dans la région du Nord. BRGM, Service géologique régional du Nord et du Pas-de-Calais, Service d'hydrogéologie.

Couteau, N. (1995). Etude géologique et hydrogéologique d'une zone test dans le bassin minier Nord-Pas-de-Calais ; modélisation des écoulements. Mémoire de DEA, Université de Lille1, 73 p.

D

Dever, L. (1985). Approches chimiques et isotopiques des interactions fluides - matrice en zone non saturée carbonatée. Thèse d'état, Université Paris-Sud, 181p.

Doremus, C. (1978). Les craies du nord de la France : corrélations entre la lithostratigraphie, la microstructure et les propriétés mécaniques. Thèse de 3ème cycle, Université de Lille1, 132 p.

DRIRE (1988 à 1996). La pollution atmosphérique dans la région Nord-Pas-de-Calais.

Droz, B. (1985). Influence de la structure et de la nature des terrains du Valenciennois sur la qualité de la nappe de la Craie (Nord de la France). Apport du krigeage à l'hydrochimie régionale et gestion qualitative des eaux souterraines. Thèse, Université de Lille1, 205 p.

Duchesne, C. (1999). Impacts des activités humaines sur le milieu naturel d'une zone centrale du bassin minier Nord-Pas-de-Calais. Thèse, Université de Lille1, 315 p.

Dupis, A., Choquier, A. et Bossuet, G. (1995). La radio magnéto-tellurique : une nouvelle méthode de la géophysique appliquée. *Bull. Soc. Géol. France*, **66**, 2, 231-242.

E

E.P.A (1994). Acid Mine Drainage Prediction. Rapport n° 530-R-94-036, 48 p.

Edwards, K.J., Bond, P.L., Druschel, G.K., McGuire, M.M., Hamers, R.J. et Banfield, J.F. (2000). Geochemical and biological aspects of sulfide mineral dissolution : lessons from Iron Mountain, California. *Chem. Geol.*, **169**, 383-397.

Epstein, S. et Mayeda, T. (1953). Variation of ^{18}O content of waters from natural sources. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **4**, 213-224.

F

Ferry, B. (1992). Parts des transformations chimiques naturelles et provoquées dans la nappe de la craie du nord de la France. Mémoire de DEA, Université de Lille1, 57 p.

Finkelman, R.B. et Griffin, D.E. (1986). Hydrogen peroxide oxidation : an improved method for rapidly assessing acid generating potential of sediments and sedimentary rocks. *Recr. Reveget. Res.*, **5**, 521-534.

Foos, A. (1997). Geochemical modeling of coal mine drainage, Summit County, Ohio. *Env. Geol.*, **31**, 205-210.

G

Geldenhuis, S. et Bell, F.G. (1998). Acid mine drainage at a coal mine in the eastern Transvaal, South Africa. *Env. Geol.*, **34**, 2/3,234-242.

Gerke, H.H., Molson, J.W. et Frind, E.O. (1998). Modelling the effect of chemical heterogeneity on acidification and solute leaching in overburden mine spoils. *J. Hydrology*, **209**, 166-185.

Gosselet, J. (1908). Note sur quelques failles communes aux terrains crétaciques et houiller de l'Artois. *Ann. Soc. Géol. Nord*, **XXXVII**, 81-109.

Guerin, R., Panissod, C., Benderitter, Y., Bouzid, N., Tabbagh, A., Thiry, M. et Huet-Taillanter, S. (2001). Méthodologie d'étude géophysique non destructive des sites industriels abandonnés. Cas du site pollué de Mortagne du Nord. In: Schmitt, J.M., Thiry, M. & Van Oort, F. (Eds.), *Industrie minérale et environnement : Aspects géochimiques, hydrogéochimiques, biogéochimiques*, Ecole des Mines de Paris, Soc. Géol. France, 85-88.

Guérin, R., Panissod, C., Thiry, M., Benderitter, Y., Tabbagh, A. et Huet-Taillanter, S. (en cours). La friche industrielle de Mortagne-du-Nord (59) : -III- Approche méthodologique d'étude géophysique non destructive des sites pollués par des eaux fortement minéralisées. *Bull. Soc. Géol. France*.

Guo, W., Parizek, R.R. et Rose, A.W. (1994). The role of thermal convection in resupplying O_2 to strip coal-mine spoil. *Soil Sci.*, **158**, 47-55.

H

Hawkins, J.W. (1998). Hydrogeologic characteristics of surface-mine spoil. *In* : The Pennsylvania Department of Environmental Protection (Ed.), Coal mine drainage prediction and pollution prevention in Pennsylvania, 3-1, 3-11.

Hawkins, J.W. et Aljoe, W.W. (1992). Pseudokarst groundwater hydrologic characteristics of a mine spoil aquifer. *Mine Water and the environment*, **11**, 2, 37-52.

Heard, I. et Senftle, F.E. (1984). Chemical oxidation of anthracite with hydrogen peroxide via the Fenton reaction. *Fuel*, **63**, 221-226.

Hedin, R.S. et Erickson, P.M. (1988). Relationships between the initial geochemistry and leachate chemistry of weathering of overburden samples. *In: Mine drainage and surface mine reclamation : Mine water and mine waste*, Pittsburgh, 21-28.

Holser, W.T. et Kaplan, I.R. (1966). Isotope geochemistry of sedimentary sulphates. *Chem. Geol.*, **1**, 93-135.

Holtzapffel, T. (1985). Les minéraux argileux, préparation, analyse diffractométrique et détermination. *Soc. Géol. Nord*, 12, 136 p.

I

INERIS (1995). Etude historique du site de Sainte-Henriette d'Henin-Beaumont (62). 23 p.

J

Johnson, R.H., Blowes, D.W., Robertson, W.D. et Jambor, J.L. (2000). The hydrogeochemistry of the nickel Rim mine tailings impoundment. *J. Contam. Hydrol*, **41**, 49-80.

K

Kania, T. (1998). Laboratory methods for Acid-Base-Accounting : an update. *In* : The Pennsylvania Department of Environmental Protection (Ed.), Coal mine drainage prediction and pollution prevention in Pennsylvania, 6/1-6/9.

Kleinmann, R.L.P., Crerar, D.A. et Pacelli, R.R. (1981). Biogeochemistry of acid mine drainage and a method to control acid formation. *Mining Eng.*, **33**, 300-305.

Kölling, M. (1990). Modellierung geochemischer Prozesse im Sickerwasser und Grundwasser. Ber Fachbereich Geowiss. Thesis, University of Bremen, 135 p.

Kwong, Y.T.J. (1993). Prediction and prevention of acid rock drainage from a geological and mineralogical perspective. MEND Project 1.32.1, Mine environment neutral drainage (MEND) program, 47 p.

L

Lawrence, R.W. et Scheske, M. (1997). A method to calculate the neutralization potential of mining wastes. *Env. Geol.*, **32**, 2,100-106.

Lawrence, R.W. et Wang, Y. (1996). Determination of neutralization potential for acid rock drainage prediction. MEND Project 1.16.3, Mine environment neutral drainage (MEND) program, 38 p.

Loke, M.H. (1999). Electrical imaging surveys for environmental and engineering studies : a practical guide to 2-D and 3-D surveys. 57 p.

LRPC-ANTEA (1995). Plateforme logistique d'intérêt européen de Dourges : étude de faisabilité technique. 52 p.

Lu, N. et Zhang, Y. (non daté). Thermally induced gas convection in mine wastes. Disposal safety Inc., Washington DC.

M

Mania, J. (1971). Contribution à l'étude de la nappe des sables landéniens en Flandres franco-belges et dans le bassin d'Orchies. Thèse de 3ème cycle, Université de Lille1, 182 p.

Mania, J. (1978). Gestion des systèmes aquifères : application au nord de la France. Mém. Soc. Geol. Nord, **15**, 228 p.

McCarthy, M.D.B., Newton, R.J. et Bottrell, S.H. (1998). Oxygen isotopic compositions of sulphate from coals : implications for primary sulphate sources and secondary weathering processes. *Fuel*, **77**, 677-682.

McCrea, J. (1950). On the isotope chemistry of carbonates and paleotemperature scales. *J. Chem. Phys.*, **18**, 849-857.

McKibben, M.A. et Barnes, H.L. (1986). Oxidation of pyrite in low temperature acidic solutions - Rate laws and surface texture. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **50**, 1509-1520.

Meilliez, F. (1989). Pre-orogenic shallow stretching tectonism within the Namurian Beds in the northern France. *Bull. Soc. belge Géologie*, **98(2)**, 231-234.

- Michelot, J.L. (1988).** Hydrologie isotopique des circulations lentes en milieu cristallin fracturé : essai méthodologique. Thèse 180 p.
- Monterroso, C. et Macias, F. (1998a).** Drainage waters affected by pyrite oxidation in a coal mine in Galicia (NW Spain) : Composition and mineral stability. *The science of the total environment*, **216**, 121-132.
- Monterroso, C. et Macias, F. (1998b).** Prediction of the acid generating potential of coal mining spoils. *International Journal of Surface Mining, Reclamation and Environment*, **12**, 5-9.
- Moore, D.M. et Reynolds, R.C. (1989).** X-ray diffraction and the identification and analysis of clay minerals. Oxford University Press, 322 p.
- Moses, C.O. et Herman, J.S. (1991).** Pyrite oxidation at circumneutral pH. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **55**, 471-482.
- Moses, C.O., Nordstrom, D.K., Herman, J.S. et Mills, A.L. (1987).** Aqueous pyrite oxidation by dissolved oxygen and by ferric iron. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **51**, 1561-1571.
- Mothes, J.L., Faure, B. et Boutonnet, M. (1973).** Quelques caractéristiques de l'hiver en France. *Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées*, **68**, 7-12.

N

- Nicholson, R.V., Gillham, R.W. et Reardon, E.J. (1990).** Pyrite oxidation in carbonate-buffered solution :2. Rate control by oxide coatings. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**, 395-402.
- Nordstrom, D.K. (1982).** Aqueous pyrite oxidation and the consequent formation of secondary iron minerals. *In* : Kittrick, J.A., Fanning, D.S. & Hossner, L.R. (Eds.), Acid Sulfate weathering, Soil Science Society of America, 37-63.

P

- Paktunc, A.D. (1999a).** Discussion of "A method to calculate the neutralization potential of mining wastes" by Lawrence and Scheske. *Env. Geol.*, **38**, 1, 82-84.
- Paktunc, A.D. (1999b).** Mineralogical constraints on the determination of neutralization potential and prediction of acid mine drainage. *Env. Geol.*, **39**, 2, 103-112.
- Paproth, E., Conil, R., Bless, M.J.M., Boonen, P., Bouckaert, J., Carpentier, N., Coen, M., Delcambre, B., Deprijck, C., Deuzon, S., Dreesen, R., Groessens, E., Hance, L., Hennebert, M., Hibo, D., Hahn, G.R., Hilaire, O., Kasig, W., Laloux, M., Lauwers, A., Leess, A., Lys, M. (1983a).** Bio- and lithostratigraphic subdivisions of the Dinantian in Belgium : a review. *Ann. Soc.*

Géol. Belgique, **106**, 185-239.

Paproth, E., Dusar, M., Bless, M.J.M., Bouckaert, J., Delmer, A., Fairon-Demaret, M., Houlebergs, E., Laloux, M., Perard, P., Somers, Y. et Streel, M. (1983b). Bio- and lithostratigraphical subdivisions of the Silesian in Belgium : a review. *Ann. Soc. Géol. Belgique*, **106**, 241-283.

Perry, E.F. (1998). Interpretation of Acid-Base Accounting. *In* : The Pennsylvania Department of Environmental Protection (Ed.), Coal mine drainage prediction and pollution prevention in Pennsylvania, 11/1-11/18.

Petit, D. (1980). La végétation des terrils du Nord de la France : écologie, phytosociologie, dynamisme. Thèse, Université de Lille1, 250 p.

Pierre, C., Rouchy, J.-M., Laumondais, A. et Groessens, E. (1984). Sédimentologie et géochimie isotopique (^{18}O , ^{34}S) des sulfates évaporitiques givétiens et dinantiens du Nord de la France et de la Belgique ; importance pour la stratigraphie et la reconstitution des paléomilieus de dépôt. *C. R. Acad. Sci.*, **t. 299, série II, n° 1**, 21-26.

Plummer, N., Wigley, T.M.L. et Parkhurst, D.L. (1978). The kinetics of calcite dissolution in CO_2 water systems 5° to 60° and 0.0 to 1.0 atm CO_2 . *Amer. J. Sci.*, **278**, 179-216.

Price, M. (1997). Multi-porosity behaviour in the chalk aquifer. *Ann. Soc. Geol. Nord*, **5**, 289-294.

R

Robaszynski, F. (1987). Du Boulonnais au Bassin de Mons : le Paléozoïque et les héritages varisques dans la couverture. Aspect et évolution géologiques du Bassin parisien. C. L. in CAVELIER, J., coord. Paris. *Bull. Inf; géol. Bas. Paris, mém. h-s. n° 6*, 69-86.

Rose, A.W. et Cravotta III, C.A. (1998). Geochemistry of coal mine drainage. *In* : The Pennsylvania Department of Environmental Protection (Ed.), Coal mine drainage prediction and pollution prevention in Pennsylvania, 1-22.

Rose, S. et Elliot, W.C. (2000). The effects of pH regulation upon the release of sulfate from ferric precipitates formed in acid mine drainage. *Appl. Geochem.*, **15**, 27-34.

Rose, S. et Ghazi, A.M. (1997). Release of sorbed sulfate from iron oxyhydroxides precipitated from acid mine drainage with coal mining. *Env. Sci. Techn.*, **31**, 7, 2136-2140.

Rose, S. et Ghazi, A.M. (1998). Experimental study of the stability of metals associated with iron oxyhydroxides precipitated in acid mine drainage. *Env. Geol.*, **36**, 3-4, 364-370.

S

- Schnaitman, C.A., Korczynski, M.S. et Lundgren, D.G. (1969).** Kinetic studies of iron oxidation by whole cells of *Ferrobacillus ferrooxidans*. *J. Bacteriology*, **99**, 552-557.
- Schüring, J., Kölling, M. et Schulz, H.D. (1997).** The potential formation of acid mine drainage in pyrite-bearing hard-coal tailings under water-saturated conditions : an experimental approach. *Env. Geol.*, **31**, 59-65.
- Sevin, I. (2000).** Détection de cavités souterraines par imagerie radar et électrique. Rapport de DESS, Université de Lille1, 46 p.
- Shakur, A. (1982).** ^{34}S and ^{18}O variations in terrestrial sulphates. Thesis, University of Calgary, 229 p.
- Silverman, M.P. et Lundgren D.G. (1959).** Studies of the chemautotrophic bacterium *Ferrobacillus ferrooxidans* II. Manometric studies. *J. Bacteriology*, **78**, 326-331.
- Singer, P.C. et Stumm, W. (1970).** Acidic mine drainage - the rate determining step. *Science*, **167**, 1121-1123.
- Sobek, A.A., Schuller, W.A., Freeman, J.R. et Smith, R.M. (1978).** Field and laboratory methods applicable to overburdens and minesoils. EPA-600/2-78-054, U.S. Environmental Protection Agency, 38 p.
- Stumm, W. et Morgan, J.J. (1981).** Aquatic chemistry. Wiley Interscience, 470 p.
- Sverdrup, H.U. (1990).** The kinetics of base cation release due to chemical weathering. Lund University Press.

T

- Taylor, B.E., Wheeler, M.C. et Nordstrom, D.K. (1984a).** Stable isotope geochemistry of acid mine drainage : experimental oxidation of pyrite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **48**, 2669-2678.
- Taylor, B.E., Wheeler, M.C. et Nordstrom, D.K. (1984b).** Isotope composition of sulphate in acid mine drainage as measure of bacterial oxidation. *Nature*, **308**, 538-541.
- Tezkan, B., Goldman, M., Greinwald, S., Hördt, A., Müller, I., Neubauer, F.M. et Zacher, G. (1996).** A joint application of radiomagnetotellurics and transient electromagnetics to the investigation of a waste deposit in Cologne (Germany). *Appl. Geoph.*, **34**, 199-212.
- Thode, H.G., Monster, J. et Dunford, H.B. (1961).** Sulphur isotope geochemistry. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **25**, 159-174.
- Tribovillard, N., Barbecot, F. et Denimal, S. (1998).** Traçage chimique et isotopique des eaux souterraines en relation avec les eaux de lixiviation de terrils. Charbonnages de France, 16 p.

V

- Vachier, P., Cambier, P. et Prost., R. (1979).** Structure d'un milieu poreux : la craie. *Ann. Agro*, **30** (3), 247-263.
- Vachier, P., Dever, L. et Fontes, J.C. (1987).** Mouvements de l'eau dans la zone non saturée et alimentation de la nappe de la craie de champagne (France) : Approches isotopique et chimique. *In: Int. Symp. on Isotope Hydrology, I.A.E.A.*, Vienne.
- VanDonkelaar, C., Hutcheon, I.E. et Krouse, H.R. (1995).** $\delta^{34}\text{S}$, $\delta^{18}\text{O}$, δD in shallow groundwater : tracing anthropogenic sulfate and accompanying groundwater/rock interactions. *Water, Air and Soil Pollution*, **79**, 279-298.
- VanEverdingen, R.O. et Krouse, H.R. (1985).** Isotope composition of sulphates generated by bacterial and biological oxidation. *Nature*, **315**, 395-396.

W

- Waterlot, M. (1960a).** Sur quelques aspects des eaux salées du terrain houiller du Nord de la France. *Ann. Soc. Geol. Nord*, **LXXX**, 3, 141-146.
- Waterlot, M. (1960b).** Matériaux pour l'étude des eaux du terrain houiller du Nord de la France. Diplôme d'études supérieures, Université de Lille1, 100 p.
- Webb, J.A. et Sasowsky, I.D. (1994).** The interaction of acid mine drainage with a carbonate terrane : evidence from the Obey River, north-central Tennessee. *J. of Hydrology*, **161**, 327-346.
- Wedepohl, K.H. (1991).** The composition of the upper earth's crust and the natural cycles of selected metals. *In* : Merian, E. (Ed.), *Metals and their compounds in the environment*, VCH-Verlagsgesellschaft, 3-17.
- Williams, T.M. et Smith, B. (2000).** Hydrochemical characterization of acute acid mine drainage at Iron Duke mine, Mazowe, Zimbabwe. *Env. Geol.*, **39**, 3-4.
- Williamson, M.A. et Rimstidt, J.D. (1994).** The kinetics and electrochemical rate determining step of aqueous pyrite oxidation. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 5443-5454.
- Wisotzky, F. et Obermann, P. (2001).** Acid mine groundwater in lignite overburden dumps and its prevention - the Rhineland lignite mining area (Germany). *Ecological Engineering*, **17**, 115-123.

Y

Yaramanci, U. (2000). Geoelectric exploration and monitoring in rock salt for the safety assessment of underground waste disposal sites. *J. Appl. Geoph.*, **44**, 181-196.

Yu, J.-Y. (1996). Pollution of Osheepcheon Creek by abandoned coal mine drainage in Dogyae area, eastern part of Samcheok coal field, Kangwon-Do, Korea. *Env. Geol.*, **27**, 286-299.

Z

Zhixun, L. et Herbert, R.B.J. (1997). Heavy metal retention in secondary precipitates from a mine rock dump and underlying soil, Dalarna, Sweden. *Env. Geol.*, **33**, 1,1-12.