

THESE

(258 pages)

[http://www.scd.uhp-nancy.fr/docnum/SCD T 2010 0139 ESNAULT.pdf](http://www.scd.uhp-nancy.fr/docnum/SCD_T_2010_0139_ESNAULT.pdf)

Présentée pour l'obtention du titre de
Docteur de l'Université de Nancy-Henri Poincaré
en Géoscience

par **Loïc Esnault**

Ecole doctorale : **Ressources Procédés Produits Environnement**

**Réactivité géomicrobiologique des matériaux et minéraux ferrifères :
conséquences sur l'évolution à long terme des matériaux d'un stockage de
déchets radioactifs en milieu argileux**

Soutenue publiquement le 09 Décembre 2010

EXTRAITS

analyse du CEDRA / janvier 2013

REMERCIEMENT

(...) le monde « vivant » des argiles

INTRODUCTION

Que ce soit lors des phases de creusement et d'exploitation du stockage ou bien au cours de son évolution à long terme, l'interaction des différents matériaux présents va libérer des espèces chimiques (fer, soufre, silicium, magnésium...) et gazeuses (CO₂, H₂...). Ces interactions, fluide/roche notamment, peuvent durablement modifier les conditions géochimiques du milieu et engendrer progressivement une altération des composants impliqués dans les différentes configurations de stockage. Ce processus d'altération pourrait remettre en cause les capacités de confinement des différentes enveloppes ouvragées et donc d'influer sur le relâchement et la migration des radionucléides. (*Page 11*)

L'existence de micro-organismes vivant profondément sous la surface de la terre est maintenant bien établie (...) Dans les environnements argileux profonds étudiés pour le stockage et malgré les conditions hostiles (faible hydratation, faible porosité), la présence de microorganismes endogènes a été démontrée par de multiples études récentes (*Page 11*)

CHAPITRE I : OBJECTIF ET CONTEXTE DE L'ETUDE

2.1. LES BARRIERES ARGILEUSES : PROCESSUS DE FORMATION, PHASES ET ELEMENTS CIBLES REACTIFS

Les smectites sont sans doute les phases minérales les plus réactives dans les argilites. Cependant, lors de l'excavation/fermeture des galeries, des transitoires d'oxydation-réduction du système argileux vont s'établir et des gradients vont modifier les équilibres chimiques des phases et entraîner une nouvelle réactivité des argilites. Ainsi l'étude des phases porteuses de fer (élément sensible au redox) dans ces environnements profonds est déterminante pour comprendre le potentiel réactif des argilites en condition de stockage. Cela constitue le cœur et le support de la réactivité physico-chimique étudiée dans ce travail. (p 22)

Après l'oxygène, le silicium et l'aluminium, le fer est le 4ème élément sur terre en termes d'abondance (4,7% en masse). Il est, d'autre part, un élément majeur dans les argilites et ses propriétés chimiques en font un élément particulièrement versatile dans les environnements continentaux. (p 22)

Lors du creusement d'un ouvrage souterrain tel que le stockage de déchets radioactifs, la mise à l'affleurement de sédiments naturels place les argiles dans des conditions différentes de celles de leur gisement et entraînent des modifications de leurs propriétés. Il se produit en particulier plusieurs changements importants dans les conditions physico-chimiques des barrières argileuses telles que : une variation de la teneur en eau, une variation de la composition chimique de l'eau interstitielle au contact de l'argile, un changement de l'environnement biologique et enfin, un changement des conditions d'oxydoréduction (p 24)

(...) cette perturbation oxydante peut modifier la nature des minéraux ferreux réducteurs par l'oxydation du Fe²⁺ structural en Fe³⁺ tels que la pyrite, la sidérite et les silicates de fer (p 24)

Bien que les argilites soient des environnements stables, gouvernés par des conditions réductrices, certaines phases telles que les smectites peuvent être des phases support de la réactivité via leur capacité importante d'interaction (échanges ioniques et gonflement) avec l'eau interstitielle du site. (p 25)

2.2. FER METALLIQUE : PROCESSUS DE CORROSION ET CONDITIONS PHYSICO-CHIMIQUES ASSOCIEES

le conteneur métallique contenant le colis primaire se retrouvera toujours en contact d'un milieu argileux totalement ou partiellement saturé. Sa corrosion au contact de l'eau interstitielle est donc inévitable. Ainsi, la perturbation anthropique due au stockage des déchets radioactifs au sein de la couche argileuse entraînera notamment, en phase réductrice saturée, une production significative d'hydrogène (par corrosion du fer ou radiolyse de l'eau) diffusant dans le milieu poral. D'autre part, il est probable que le système argileux se fissure ce qui va induire des circulations préférentielles de fluides accentuant la réactivité.

De nombreuses études ont essayé de quantifier la production possible d'H₂ au cours du stockage géologique, ainsi que les paramètres géomécaniques (surpression du gaz au contact de l'argile, migration dans la porosité, fracturation des macroporosités...) et de sûreté qui pourraient intervenir (Talandier, 2005). Les quantités d'H₂ produites par alvéole lors du stockage, par exemple pour les colis C, sont très importantes, **supérieures à 106 moles d'H₂ / alvéole.** (p 27)

2.3. REACTIVITE FER/ARGILE : PRINCIPES ET PROCESSUS

(une réaction directe) entre le fer et l'argile en absence d'eau libre, le métal est oxydé au contact de la smectite par son « eau constitutive ». (p 30)

Ainsi, l'apport anthropique de colis de déchets radioactifs en formation de stockage profond tend à rendre le système argilite de plus en plus réactif. (p 32)

Un autre paramètre pourrait cependant intervenir dans la réactivité de ce système de Stockage (...) les activités bactériennes (...) (p 32)

3. ACTIVITE BACTERIENNE DANS LE STOCKAGE

3.1. PRESENCE MICROBIENNE DANS LES SITES DE STOCKAGE PROFOND

La question d'une activité bactérienne au sein d'un site de stockage reste encore largement ouverte. D'une part, l'activité des bactéries indigènes peut être indirectement stimulée par les perturbations physiques et hydriques engendrées par la mise en place des ouvrages (galeries, puits...) ou l'apport de nutriments par les matériaux employés. En effet, l'introduction de matériaux exogènes au sein d'un milieu argileux profond est susceptible de modifier significativement les conditions géochimiques de ce milieu réducteur et d'induire progressivement la libération de composés chimiques (comme l'hydrogène, le fer et des nutriments) pouvant initier ou modifier certaines activités microbiennes. D'autre part, les circulations non contrôlées d'engins de ventilation et d'hommes peuvent contribuer à l'apport de bactéries allochtones.

Ainsi, au sein de formations géologiques profondes (...) et malgré des conditions hostiles (...) la présence de microorganismes endogènes a été démontrée (p 34)

(...) dans le site du Callovo-Oxfordien de Meuse/Haute-Marne (...) peu de communautés microbiennes viables ont été retrouvées. Ceci est probablement dû à un métabolisme en « sommeil », en raison des restrictions d'espace et d'eau.

Cependant, des perturbations comme lors de l'excavation des galeries souterraines avec la formation d'une zone faillée (de 0, 5 à 1m de profondeur) nommée EDZ (Excavation Damaged Zone) autour des galeries et des alvéoles et lors de l'exploitation du stockage pourraient fournir de l'espace, de l'eau et des nutriments pour relancer l'activité des microorganismes (p 34)

(...) lors de l'excavation et de la mise en place des colis, des composés organiques -actuellement non quantifiable- [nutriments] vont être introduits dans le système à partir des colis de déchets HAVL et des poussières d'exploitation adhérentes aux parois des galeries.

(...) lors du stockage géologique des déchets radioactifs, une seconde et nouvelle source énergétique apparaît dans le système et peut permettre le développement bactérien à travers des réactions d'oxydo-réduction : l'hydrogène (H₂). Ce gaz, produit par corrosion aqueuse des colis métalliques ainsi que par radiolyse de l'eau, va pouvoir pénétrer dans la barrière argileuse, soit par diffusion soit par convection au travers des fractures des argillites produites de façon anthropique (...) cette source d'énergie est facilement utilisable par les bactéries, car sa diffusion à travers la membrane et le cytoplasme des cellules est purement passive (p 37)

La présence de microorganismes dans des sites radioactifs n'a été que récemment étudiée. (p 39)

la radioactivité de sites des déchets nucléaires n'est pas inhibitrice de la vie microbienne. Les produits de radiolyse peuvent être aussi une source énergétique de certaines espèces microbiennes (cas de bactéries hydrogénotrophes).

Le destin des radionucléides dans l'environnement est dépendant des conditions physico-chimiques du milieu ainsi que de la présence des microorganismes. (p 30)

la migration des radionucléides dans les environnements proches d'un stockage de déchets nucléaires peut être fortement dépendante des microorganismes. (p 40)

l'augmentation de la température du site de stockage n'est pas un paramètre inhibant l'activité bactérienne, bien au contraire (p 41)

3.3. REVUE DES IMPACTS MICROBIENS SUR LA REACTIVITE IMPLIQUANT LES MATERIAUX

Des études récentes sur les Fe-smectites ont également montré que les bactéries peuvent induire des modifications, comme par exemple la dissolution partielle des particules d'argile (p 44)

La corrosion induite par les microorganismes ou bio-corrosion est un problème majeur qui peut représenter jusqu'à 10 % des coûts totaux de la corrosion (p 46)

4. ORGANISATION DE L'ETUDE

(...) ni la radioactivité, ni la température et ni les faibles porosités ne peuvent être des paramètres capables d'inhiber totalement le développement bactérien. (p 48)

Malgré les conditions difficiles d'un environnement de stockage profond, nous venons de voir qu'une activité bactérienne pouvait être pressentie au cours de l'évolution du stockage. En effet, ni la radioactivité, ni la température et ni les faibles porosités ne peuvent être des paramètres capables

d'inhiber totalement le développement bactérien. Un autre paramètre très important pour le développement de l'activité microbienne dans le stockage est la disponibilité des ressources nutritives et énergétiques. En effet, les argilites sont appauvries (environ 1%) en substrat carboné tel que la matière organique pouvant constituer une source énergétique et nutritive efficace pour la croissance bactérienne. Cependant il a été décrit précédemment que la genèse du stockage entraînerait la formation de nouveaux produits de corrosion tel que de l'H₂ et des oxydes de fer qui constituent des composés énergétiques. C'est le cas aussi d'autres éléments provenant de l'altération des colis et de la barrière argileuse et qui peuvent donc être potentiellement des substrats pour les activités bactériennes. D'autre part, l'augmentation de la température peut favoriser la disponibilité en substrat bactérien et augmenter les cinétiques d'altération ou microbiologiques. Ainsi l'environnement et les produits de dégradation de composants du stockage peuvent être considérés comme une source énergétique proprement dite pour favoriser les réactions microbiennes.

Un des objectifs de cette étude est de déterminer et de quantifier dans quelle mesure cette nouvelle source énergétique issue du stockage pourrait favoriser le développement microbien et quel impact les activités bactériennes pourraient engendrer sur l'évolution des matériaux. (p 48-49)

L'estimation de la diversité microbiologique (autochtone ou allochtone) pouvant se retrouver dans ces environnements modifiés est très difficile à obtenir (...) Il est donc plus facile d'admettre la présence d'une diversité bactérienne importante au sein du stockage, quelle que soit son origine. (p 49)

Dans ces conditions, le choix d'un modèle bactérien ferri-réducteur s'impose comme étant le plus adapté pour décrire la dynamique des conditions du stockage (anoxie, quantité importante en fer, présence de H₂, milieu argileux pouvant contenir du Fe(III) structural). (p 49)

CHAPITRE I I : MATERIELS ET METHODES

CHAPITRE I I I : CARACTERISATION DES NUTRIMENTS ET DU FE(I I I) STRUCTURAL DISPONIBLES EN CONDITION DE STOCKAGE

1. ELEMENTS NUTRITIFS ET ENERGETIQUES DANS LES ENVIRONNEMENTS ARGILEUX PROFONDS

Ainsi, les conditions énergétiques et nutritives du système argileux peuvent supporter le développement de bactéries ferriréductrices. (p 87)

Par ailleurs, ces conditions décrivent l'état initial du système de stockage. En présence de fer métallique, de nouvelles sources énergétiques et de nutriments peuvent apparaître, notamment la formation d'hydrogène et de magnétite. (p 87)

2. APPORT DES COLIS DE DECHETS METALLIQUES POUR LE DEVELOPPEMENT MICROBIEN

Comme il a été décrit dans le paragraphe « métabolisme bactérien » du chapitre 1, les éléments essentiels pour la croissance bactérienne sont notamment le carbone, l'azote, le phosphore et le soufre. (p 88)

Les résultats du calcul montrent que, malgré leur faible teneur, les éléments nutritifs tels que le carbone, l'azote, le phosphore et le soufre sont relâchés par le colis avec un flux de l'ordre de la millimole par an, dans la solution interstitielle de l'argilite. En solution, les éléments du colis se retrouveront sous forme ionique, potentiellement assimilable pour les bactéries. La corrosion du colis entraîne également un flux important de fer et d'hydrogène (0,2 mol/an). (p 90)

Ainsi, la zone proche de l'interface semble être une zone très favorable aux développements microbiens, notamment des bactéries ferriréductrices. De plus, cette zone (EDZ) est considérée comme une zone particulière du stockage, car l'excavation de la roche brute peut entraîner des dommages importants notamment en termes de porosité avec la formation de fissures. Cette perturbation pourrait donc favoriser, non seulement la diffusion de nutriments mais aussi l'implantation et le développement de microorganismes. (p 91)

CHAPITRE IV : BIOREDUCTION DU FE(III) DANS LES MILIEUX ARGILEUX

(...) l'influence considérable de l'activité microbienne anaérobie dans les transformations minéralogiques des minéraux argileux présents dans des systèmes complexes de stockage en milieu géologique profond. (p 144)

CHAPITRE V : BIOCORROSION DES MATERIAUX METALLIQUES

Vis-à-vis de la sûreté du stockage, la pérennité des enveloppes métalliques assurant le confinement des déchets radioactifs est un enjeu primordial dans lequel la stabilité mécanique et chimique des conteneurs métalliques a un rôle essentiel. Quel que soit le processus de corrosion du fer des colis impliqués (aqueux ou argileux), la formation d'oxydes de Fe(III) cristallisés (goethite, magnétite, hématite) est toujours décrite dans la littérature (p 145)

Dans un contexte de stockage des déchets radioactifs, la dissolution des oxydes de Fe par les bactéries ferriréductrices, peut remobiliser les radionucléides piégés sur les oxydes et les libérer dans les aquifères proches, d'où l'importance de contraindre le phénomène. (p 145)

Dans les environnements géologiques profonds envisagés pour le stockage des déchets radioactifs, des conteneurs métalliques feront l'objet de processus de corrosion anaérobie. Dans ce contexte, la formation de produits de corrosion tels que la magnétite peut réduire la vitesse de corrosion par la formation d'une couche protectrice, dite couche de passivation. Cette étude vise à déterminer l'impact direct de l'activité des bactéries réductrices (IRB) du Fe(III) structural sur la stabilité des couches protectrices formées lors de la corrosion métallique. Des expériences en milieu fermé et à pression contrôlée ont été conduites pour caractériser les processus de corrosion du fer incluant la formation de magnétite secondaire et leurs modifications ultérieures suite à l'activité des bactéries réduisant le Fe(III) pour la respiration microbienne. Ces expériences tentent aussi de quantifier l'influence biologique sur le maintien d'un taux élevé de corrosion. Dans ces conditions d'expérimentation, les produits de corrosion formés comme la magnétite et l'hydrogène sont étudiés comme étant les seuls donneurs et accepteurs d'électrons efficaces pour les activités bactériennes ferriréductrices. Les résultats montrent que les bactéries ferriréductrices peuvent promouvoir la réactivation du processus de corrosion dans des environnements corrosifs en altérant la couche de passivation constituée d'oxydes de fer néoformés, stabilisée en conditions abiotiques. Ce phénomène pourrait avoir un impact majeur sur la stabilité à long terme des composés métalliques, matériaux impliqués dans le confinement des déchets radioactifs à vie longue. (p 150)

Dans les conditions de stockage, l'activité bactérienne ferriréductrice peut entraîner des phénomènes de bio-corrosion et accélérer l'altération des colis de stockage. (p 161)

CHAPITRE VI : MECANISMES DE (BIO) - REDUCTION DU FE(III) EN MILIEU POREUX

En milieu naturel, ce serait donc l'action combinée des protons et des agents réducteurs qui, non seulement provoque l'altération des matériaux ferrifères, mais pourra aussi affecter indirectement celle des ciments carbonatés présents dans les argilites. (p 169)

Dans les milieux argileux poreux, tel que les barrières ouvragés, l'accessibilité au Fe(III) structural est essentiel pour la viabilité bactérienne (...) Ces résultats [de l'étude décrite] démontrent la biodisponibilité du Fe(III) structural dans les systèmes argileux poreux. (p 193)

Une réduction microbienne du Fe(III) couplée à une production de protons ou d'acides organiques peut conduire à :

- **une déstabilisation de la structure cristalline initiale des minéraux argileux,**
- **une modification des paramètres de transport, notamment de diffusion au sein de la porosité,**
- **un changement du comportement mécanique de la barrière argileuse avec des phénomènes de gonflement/rétraction du milieu argileux poreux (simulé et quantifié dans le cas du GIH-nontronite).**

Ces données, seulement qualitatives à ce jour, montrent la dynamique des processus bactériens ferriréducteurs à l'échelle d'un milieu poreux. (P 193)

Dans le cas du stockage géologique profond, l'apport de sources d'énergies, comme l'hydrogène provenant du colis, au sein de la porosité argileuse, peut favoriser l'activité enzymatique bactérienne et entraîner des processus de réduction du Fe(III) structural des minéraux argileux ferrifères. (p 193)

CHAPITRE VI I : CONTROLE DE L'ACTIVITE FERRI -REDUCTRICE PAR LES PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX

Hydrogène > genèse (p 197)

Comme démontré dans le chapitre précédent, les bactéries ferriréductrices sont capables d'accéder au Fe(III) structural des matériaux (argileux ou oxydes) à plus ou moins longue distance afin de pouvoir réaliser leur métabolisme de respiration par transfert d'électrons excédentaires au Fe(III) (...) Cependant le couplage H₂/ Fe(III) sera le moteur potentiel du développement bactérien ferriréducteur au sein du stockage de part les propriétés énergétiques de la réaction d'oxydation de l'H₂ qui a un rendement plus favorable qu'en présence de matière organique et d'accessibilité via la diffusion de l'H₂ dans la roche hôte argileuse (p 199)

Dans le cas de la corrosion métallique l'apport d'H₂ permet aux activités des IRB d'altérer les couches de passivation formées par les oxydes de fer de type magnétite (chapitre 5) qui ont tendance à diminuer les vitesses de corrosion. On observe alors une reprise de la corrosion (mécanisme indirect) et la formation de sidérite comme minéral ferreux secondaire et majoritaire qui est connu pour avoir des propriétés moins passivantes (p 199)

Cependant au sein du stockage en profondeur des colis de déchets radioactifs en milieu argileux, la réactivité globale du système sera la résultante d'une somme de réactions entre le fer métallique - l'eau du site - l'argilite et l'activité microbiologique sous un gradient thermique et de pression. (p 199)

Grâce à ces expériences, du point de vue chimique ou métabolique, nous démontrons que la présence de fer métal n'inhibe pas la bio-réduction du Fe(III) structural des smectites. L'activité bactérienne pourrait aussi avoir un impact sur la réactivité globale du système fer / Argile. (p 204)

En conclusion, l'activité bactérienne a été observée et mesurée en milieu fer/argile et semble significative au regard des autres réactions. L'argile sert à la fois de substrat, niche écologique nutritif et énergétique, au monde microbien. Ceci a pour conséquence de permettre aux activités ferriréductrices de se développer et d'altérer les phases minérales contrôlant la corrosion des métaux. Un effet synergique réactionnel apparaît dans le système, augmentant ainsi la réactivité globale du système fer/argile et donc sa vulnérabilité et son altérabilité. (p 205)

La température (60°C) ne sera donc pas un facteur limitant pour ce processus fonctionnel et par conséquent pour le développement bactérien de souche en stockage profond. (p 207)

Ces résultats d'expériences à pression variable de gaz (1- 45 bars) n'ont montré aucune limite fonctionnelle pour le développement bactérien dans la gamme de pression étudiée. (p 208)

Nous avons ainsi démontré que l'hydrogène joue un rôle moteur pour le développement bactérien en milieu réducteur profond et permet les activités biologiques altérantes sur les matériaux du stockage. (p 210)

Ces résultats permettent de déterminer un seuil de carence en Fe de 0.1µM. En extrapolant, cette valeur peut être généralisée à notre étude concernant le niveau de viabilité bactérienne en fer dans les environnements naturels. En effet, une concentration en fer de l'ordre de 0.5 à 1µM est une valeur facilement atteinte dans les eaux percolantes ou dès les premières étapes de réduction du Fe(III) structural des argiles (dissolution du fer dans le milieu). Ces conditions ne devraient pas favoriser un état de carence pour le monde microbien. (p 212)

L'ajout de fer(II) dans le milieu semble donc modifier le mécanisme d'assimilation de l'hydrogène par la bactérie et l'activité hydrogénase. Il a donc un impact sur le développement microbien ainsi que le potentiel de bio-réduction des argiles. (p 217)

Bien qu'en conditions de stockage les paramètres pouvant influencer le développement bactérien soient nombreux (pH, [H₂], [fer]), la réduction du Fe(III) par les bactéries est démontrée ici comme étant possible en formations géologiques profondes. Cette réduction du Fe(III) entraîne inévitablement l'altération et la dégradation des matériaux ferrifères présents dans le stockage (corrosion des matériaux métalliques et altération des phases argileuses). (p 221)

DISCUSSION (p 223 > p 230)

Dans les milieux argileux profonds, les données de la littérature mentionnant des analyses par génotypage ont permis d'identifier différentes espèces de microorganismes. Ces études ont mis en évidence une diversité importante d'espèces bactériennes (p 223)

L'objectif de ce travail était de déterminer l'influence des processus microbiologiques, notamment ferri-réducteurs, sur la réactivité des matériaux impliqués dans la conception d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs. Ces processus microbiologiques sont regardés principalement vis-à-vis de l'évolution des propriétés de confinement des matériaux métalliques et des barrières argileuses, naturelles comme ouvragées. Les enjeux de cette thèse étaient donc de déterminer la potentialité d'une telle activité bactérienne en milieu géologique, d'en définir les critères de développement dans le cadre des concepts de stockage géologique de déchets radioactifs et d'en identifier les mécanismes qui soutiennent le développement bactérien, notamment en milieu argileux. Dans les milieux argileux profonds, les données de la littérature mentionnant des analyses par génotypage ont permis d'identifier différentes espèces de microorganismes. Ces études ont mis en évidence une diversité importante d'espèces bactériennes, notamment la présence de bactéries Gram-négative et d'espèces sulfatoréductrices, ferriréductrices et dénitrifiantes. Ces études montrent, malgré une quantité suffisante d'éléments nutritifs pour soutenir la croissance des communautés autochtones comme allochtones dans ces environnements, que peu de communautés microbiennes viables ont été retrouvées. Il a été ainsi montré qu'un métabolisme, dit en « sommeil », limitait les activités en raison des restrictions d'espace et de teneur en *eau ainsi que de la faible disponibilité des ressources énergétiques naturelles dans ces environnements profonds.*

La question d'une activité bactérienne au sein d'une installation de stockage reste encore largement ouverte. Cependant, l'ensemble des perturbations physiques comme chimiques du milieu profond engendré par le creusement et l'exploitation, ainsi que l'apport, sous des formes multiples, de nutriments nouveaux (matériaux, produits chimiques) va considérablement modifier le système profond et notamment réactiver les bactéries indigènes. Par ailleurs, des souches microbiennes exogènes seront introduites et c'est l'ensemble de ces phénomènes qui décidera des activités microbiennes qui se développeront au cours de la vie du futur stockage.

L'approche utilisée ici s'est portée sur l'activité des bactéries ferriréductrices spécifiques des conditions géochimiques du stockage. Ces bactéries, peu importe leur origine, sont susceptibles d'impacter la réactivité globale en milieu profond. (p 223)

Nous sommes donc, dans le cas du stockage profond, dans la gamme de concentration en fer favorable aux activités bactériennes.

La présence de fer dissous lors de la corrosion métallique des conteneurs n'inhibera donc pas les activités bactériennes. (p 223)

Ces études de sensibilité de l'activité bactérienne en conditions simulant des environnements argileux profonds n'ont pas mis en évidence de critères limitant l'activité microbienne. (p 225)

Les différents paramètres physiques et chimiques tels que la température, la pression, l'H₂, la porosité la concentration en fer dissous existant en profondeur, n'entraînent pas d'inhibition irréversible de l'activité microbiologique. (p 225)

Par ailleurs, la réactivité du système argileux est accentuée par l'apport de matériaux métalliques qui engendre des perturbations *via* des processus de corrosion aqueuse et argileuse, et de réactivité fer/argile. (p 227)

(...) processus de corrosion métallique entraîne la formation de produits secondaires tels que le Fe²⁺, l'H₂ et des phases minérales comme la magnétite. Certains de ces produits de corrosion, comme la magnétite, sont souvent retrouvés sous forme de couches superficielles à la surface des métaux. Dans certains cas bien précis, ces couches peuvent être protectrices vis-à-vis de la corrosion et appelées ainsi couches de passivation. Les études de réactivité bactéries - produits de corrosion, ont démontré **le caractère « réservoir énergétique » et « moteur » de ces produits pour le développement bactérien ferriréducteur.**

La réduction/dissolution des oxydes de Fe tels que la magnétite ou l'hématite est favorisée par l'activité des bactéries ferriréductrices. (p 227)

L'argile sert à la fois de substrat physique, de niche écologique ainsi que de substrat nutritif et énergétique au monde microbien aux travers des processus de bioréduction du Fe(III) structural.

Ceci a pour conséquence de permettre aux activités ferri-réductrices de se développer en milieu argileux et d'altérer *a posteriori* les phases minérales contrôlant les processus de corrosion des

métaux. **Un couplage réactionnel global apparaît dans le système, augmentant ainsi la réactivité et l'altération des argiles, ainsi que la corrosion du fer métallique.**

L'activité bactérienne intervient ici comme **un oxydant supplémentaire dans le système géologique profond** (p 228)

Ces expériences ont permis de mettre en évidence **un mécanisme de respiration bactérienne efficace à distance.** (p 228)

P 229 > bouchon bentonite

En effet en plus de pouvoir favoriser les processus de corrosion *via* une augmentation des vitesses de corrosion des matériaux métalliques et donc de jouer directement un rôle sur la durée de vie de ces matériaux, elle peut altérer la fonction de confinement des argiles, **notamment du bouchon argileux, composé principalement de phases argileuses de type smectite.** Ce bouchon qui est actuellement envisagé selon les concepts à l'étude dans différents scénarios de stockage par l'Andra, est composé de bentonite gonflante, principalement de la montmorillonite (MX80). (p 229)

CONCLUSION ET PERSPECTIVES (p 231 > p 253)

Il faut noter que nos expériences ont permis de visualiser pour la première fois un mécanisme de respiration bactérienne à distance totalement original qui repousse encore plus les limites de l'activité microbienne *via* une extension de la disponibilité d'éléments essentiels, ici le Fe(III). (p 231)

La stratégie très transverse mise en place au début de la thèse, dans l'objectif de déterminer la dynamique de la réactivité géomicrobiologique à l'échelle d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs, a été fructueuse. Ces résultats démontrent clairement l'impact du facteur microbiologique sur la réactivité des matériaux et la prédiction de leur comportement à long-terme. En effet, ces résultats phénoménologiques explorent les processus majeurs de la réactivité microbiologique sur les matériaux argileux et métalliques tout en s'appuyant sur des paramètres de contrôle de l'activité bactérienne. La pertinence de la prise en compte de ce paramètre « activité bactérienne » dans le cas des évaluations de sûreté d'un stockage est ainsi établie. (p 232)

RESUME (p 254)

En conclusion, ces résultats ont clairement démontré l'impact du facteur microbiologique sur la réactivité des matériaux argileux et métalliques tout en s'appuyant sur des paramètres de contrôle de l'activité bactérienne. La pertinence de la prise en compte de ces activités microbiologiques dans le cas des évaluations de sûreté d'un stockage est ainsi établie