

Soutenance de thèse

Institut de Chimie Séparative de Marcoule / CEA Marcoule
(UMR 5257, CEA, CNRS, Université Montpellier, ENSCM)

THANH-NGHI NGUYEN

soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Modélisation des solutions aqueuses concentrées d'éléments-f par une approche multi-échelle

Soutenance prévue le **vendredi 4 décembre 2015 à 14h00**

dans l'Auditorium de l'ICSM

Des simulations de dynamique moléculaire classique prenant en compte explicitement la polarisation ont été réalisées afin de déterminer les propriétés structurales et thermodynamiques de solutions binaires aqueuses de chlorure, perchlorate et nitrate d'uranyle (UO_2Cl_2 , $\text{UO}_2(\text{ClO}_4)_2$ et $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$). A partir d'une étude faite en fonction de la concentration en sels, les propriétés d'hydratation et les interactions ion-ion des solutions aqueuses concentrées de chlorure, perchlorate et nitrate d'uranyle ont été étudiées. Les simulations de dynamique moléculaire permettent de reproduire les propriétés de solvation de l'uranyle, du chlorure, du perchlorate et du nitrate en accord avec les données expérimentales. Les résultats ont montré les différents modes de coordination du chlorure et du perchlorate dans la deuxième sphère de coordination de l'uranyle et la présence de l'anion NO_3^- dans la première sphère de coordination à concentration élevée.

De plus, nous avons calculé les potentiels de force moyenne des paires ioniques à dilution infinie en fonction de la distance et de l'angle. Les propriétés thermodynamiques des solutions ont été calculées à partir des potentiels des paires ioniques en utilisant la théorie McMillan-Mayer et moléculaire. La constante d'association des complexes UO_2Cl^+ ($K_{\text{UO}_2\text{Cl}^+}^{\text{cal}} = 2,52 \text{ L mol}^{-1}$), $\text{UO}_2\text{ClO}_4^+$ ($K_{\text{UO}_2\text{ClO}_4^+}^{\text{cal}} = 2,34 \text{ L mol}^{-1}$) et UO_2NO_3^+ ($K_{\text{UO}_2\text{NO}_3^+}^{\text{cal}} = 3,02 \text{ L mol}^{-1}$) a été calculée et sont en accord avec les données expérimentales. A partir des potentiels effectifs de McMillan-Mayer et en utilisant une approche multi-échelle basée sur l'approximation MSA, nous avons également calculé les coefficients osmotiques.

Mots clés : Modélisation multi-échelle; Dynamique moléculaire; Uranyle; Electrolytes.

