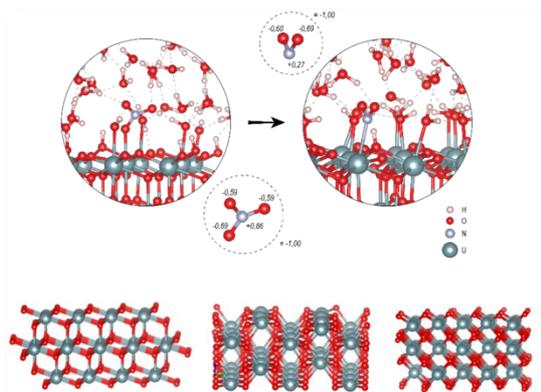


**Thèse de doctorat à
Institut de Chimie Séparative de Marcoule (ICSM), Bagnols-sur-Cèze, France
Ecole doctorale 459 Sciences Chimiques Balard (Université de Montpellier)**

Dynamique quantique pour la dissolution de l' UO_2

Date de début : Septembre 2023



La dissolution de UO_2 en milieu nitrique est étudiée depuis des décennies afin de comprendre, maîtriser et optimiser le recyclage du combustible nucléaire usagé. Les **mécanismes réactionnels** sont complexes à appréhender par des méthodes expérimentales et restent donc très hypothétiques encore aujourd'hui. Bien que les simulations atomistiques puissent apporter des réponses, la dissolution est un **processus physico-chimique complexe** et doit être traité en considérant les électrons – donc au **niveau quantique** – car les étapes cinétiquement déterminantes sont des réactions chimiques en surface.

Les moyens informatiques récents et l'avènement des HPC¹ rendent les simulations par dynamique moléculaire *ab initio* (AIMD) aptes à décrire des systèmes assez grands pour déterminer les **données thermodynamiques macroscopiques**. Les **simulations par AIMD** sont en pleine expansion depuis quelques années et s'appliquent maintenant couramment aux interfaces liquide/solide. Pour l'heure, très peu de publications traitant de dissolution d'espèces minérales par des méthodes atomistiques existent dans la littérature, et aucune sur UO_2 . Prouver, sur le cas de l' UO_2 , que l'AIMD est outil de routine pour la dissolution en général serait une **avancée méthodologique considérable**.

Des résultats préliminaires obtenus à l'ICSM ont permis d'observer la transformation spontanée, au cours de la simulation par AIMD, de l'ion nitrate en ion nitrite au contact de la surface de UO_2 . Il s'agira, pour le doctorant, **d'établir les mécanismes réactionnels, leurs équilibres et leurs cinétiques**. L'influence des orientations cristallines, des défauts de surface et des impuretés sur les mécanismes réactionnels sera explorée. Le travail consistera principalement en l'utilisation des **simulations par AIMD**, au moyen du code VASP, sur des grands calculateurs nationaux. Des simulations par AIMD biaisées, de type Blue-Moon ou Slow-Growth, seront nécessaires afin de **déterminer les grandeurs cinétiques et thermodynamiques en lien avec la dissolution**. Assurer l'**interface entre les simulations moléculaires et la thermodynamique** suppose que l'étudiant dispose de bonnes connaissances dans ces deux domaines. Il s'agit d'une thématique peu explorée, mais dont le développement scientifique et industriel dans les prochaines années est certain, apportant de nombreuses opportunités au futur diplômé.

Financement : La thèse est financée par le CEA DES (Direction des Energies).

Salaire net : ~1650 € / mois (Salaire brut : ~2100 € / mois)

Informations complémentaires : Le/La candidat(e) rejoindra le groupe LMCT de l'ICSM et sera inscrit(e) à l'école doctorale ED459 Sciences Chimiques Balard de l'Université de Montpellier (France). La thèse se fera en collaboration avec l'ENS Géologie Nancy.

Contact : Pour postuler, veuillez envoyer une lettre de motivation et un CV détaillé à Dr. Bertrand Siboulet (bertrand.siboulet@cea.fr) et Pr. Jean-François Dufrêche (jean-francois.dufreche@icsm.fr).

Laboratoire de Modélisation Mésoscopique
et Chimie Théorique (LMCT)
ICSM UMR 5257 – BP 17171
Site de Marcoule
F-30207 Bagnols sur Cèze
<http://www.icsm.fr/lmct.html>

¹ HPC : High Performance Computing