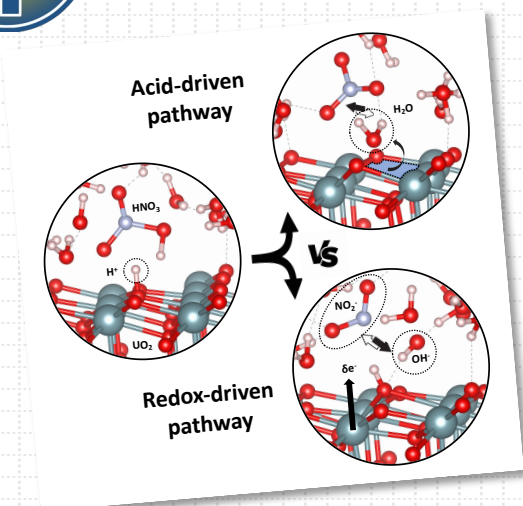




SOUTENANCE DE THÈSE



Geoffroy RODRIK

*Laboratoire Modélisation mésoscopique
et Chimie Théorique (LMCT)*

Etude de la dissolution de UO_2 par simulations en dynamique moléculaire *ab initio*



**Mardi 10
novembre
2026**



8h30



**Auditorium
ICSM**

La dissolution du dioxyde d'uranium (UO_2) dans l'acide nitrique constitue une étape clé du retraitement des combustibles nucléaires usés, mais les mécanismes élémentaires qui l'initient restent mal compris à l'échelle atomique. Cette thèse propose une description unifiée de ces premières étapes, fondée principalement sur des simulations de dynamique moléculaire *ab initio* dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). La caractérisation des interfaces hydratées des dioxydes d'actinides permet d'abord d'établir le rôle de l'hydratation et de la protonation dans leur réactivité. L'étude de la dissolution nitrique met ensuite en évidence deux voies coexistantes : une voie acido-basique générale, commune aux oxydes métalliques, et une voie redox propre à UO_2 , dans laquelle l'oxydation de l'uranium est couplée à la réduction de l'acide par un transfert électronique interfacial permis par les états 5f partiellement occupés de l'uranium. Les simulations montrent ainsi que $\text{NO}_2^\bullet$ peut accepter un électron de UO_2 pour former NO_2^- et U(V) , tandis que l'extraction conduit à une espèce uranyle(V) solvatée. Replacés dans les équilibres entre NO_2^- , HNO_2 et les NO_x , ces résultats permettent de proposer un mécanisme d'auto-accélération de la dissolution dans lequel $\text{NO}_2^\bullet$ constitue l'espèce catalytique active assurant la propagation du processus. Ils établissent ainsi un lien atomistique entre transferts électroniques interfaciaux et comportement catalytique observé expérimentalement.

Mots-clés : Dissolution ; Dioxyde d'uranium (UO_2) ; Dynamique moléculaire ab initio (AIMD) ; Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT) ; VASP



**NOUS VOUS
ATTENDONS
NOMBREUX !**



**UNIVERSITÉ DE
MONTPELLIER**

