
Champ de forces de nouvelle génération pour des simulations de complexes de lanthanides et d'actinides en solution

Aude Marjolin^{2,1}, Christophe Gourlaouen³, Carine Clavaguera^{*†4}, Pengyu Ren⁵,
Jean-Philip Piquemal^{‡6}, and Jean-Pierre Dognon^{*§2}

²Laboratoire de Chimie Moléculaire et de Catalyse pour l'Energie (LCMCE) – CEA – CEA Saclay, DSM/IRAMIS/NIMBE, Bât.125 91191 Gif sur Yvette cedex, France

¹Laboratoire de chimie théorique (LCT) – CNRS : UMR7616, Université Pierre et Marie Curie (UPMC) - Paris VI, Université Pierre et Marie Curie [UPMC] - Paris VI – Tour 12-13, 4ème étage, 4 place Jussieu, Case Courrier 137, 75252 PARIS, France

³Institut de Chimie de Strasbourg (ICS) – CNRS : FR2351, université de Strasbourg – 4, rue Blaise Pascal 67000 STRASBOURG, France

⁴Laboratoire de Chimie Moléculaire (LCM) – Ecole Polytechnique de Palaiseau, CNRS : UMR9168 – France

⁵Department of Biomedical engineering – University of Texas at Austin, Austin, Texas 78712-1062, États-Unis

⁶Laboratoire de Chimie Théorique (LCT) – CNRS : UMR7616 – 4 place Jussieu, CC-137, F-75252 Paris, France

Résumé

Depuis une quinzaine d'années, nous menons au CEA des études théoriques destinées à comprendre la solvatation et la complexation en milieu aqueux et organique des éléments lanthanides (Ln) et actinides (An) à différents degrés d'oxydation. Ces recherches sont menées au CEA pour des applications dans le domaine du retraitement du combustible nucléaire usé, de la toxicologie nucléaire et de l'imagerie médicale par résonance magnétique (IRM). Un des objectifs est de simuler quantitativement les phénomènes dynamiques impliqués (échanges de molécules d'eau, etc.) ainsi que les grandeurs thermodynamiques associées lors de la complexation d'ions Ln ou An avec des molécules organiques en solution. Nos travaux sont basés sur des simulations de dynamique moléculaire classique utilisant un champ de forces polarisable (AMOEBA). Compte tenu de la nature des éléments étudiés et de la nécessité d'avoir une démarche prédictive, les champs de forces "classiques" ne sont pas adaptés et des développements méthodologiques sont nécessaires. Notre approche est basée sur un nombre limité de paramètres transférables et dérivés à partir de calculs ab initio uniquement, sans inclure de données expérimentales. Les paramètres pour les éléments 4f et 5f sont obtenus à partir de données fondamentales de référence telles que les polarisabilités

*Intervenant

† Auteur correspondant:

‡ Auteur correspondant:

§ Auteur correspondant:

dipolaires atomiques et les courbes d'énergie potentielle pour des dimères ion-eau ou ion-ligand. Les problèmes spécifiques posés par les ions lanthanides et actinides et les solutions théoriques proposées seront présentés. Les résultats porteront sur la structure des couches d'hydratation, la dynamique et les enthalpies libres d'hydratation de cations lanthanides et actinides.

Ce projet collaboratif regroupe des équipes du CEA, de l'UPMC, de l'Université de Strasbourg, de l'Ecole Polytechnique et de l'Université d'Austin (USA).

Mots-Clés: lanthanide, actinide, champ de forces polarisable, dynamique moléculaire