



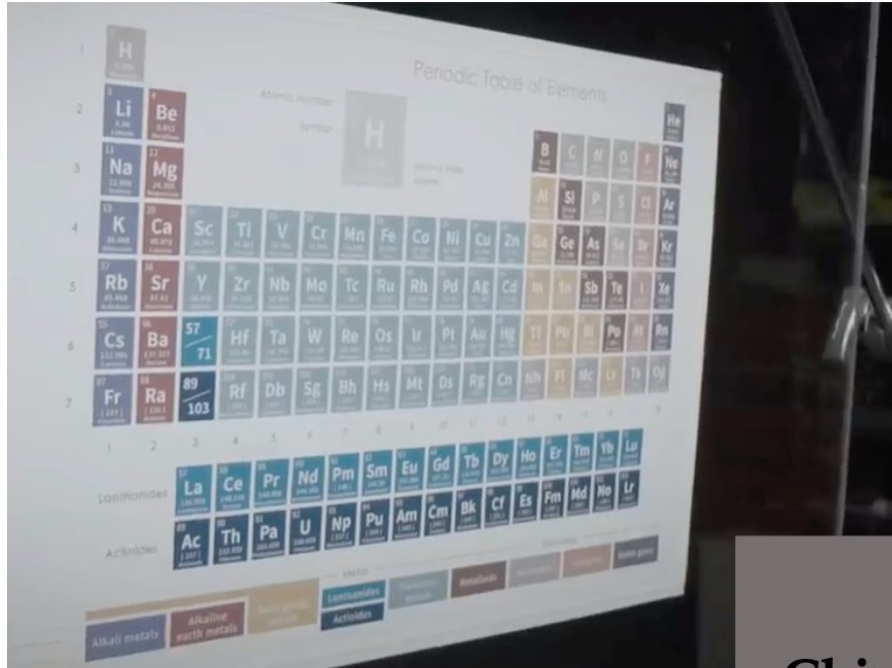
PEPR Science Amont Nucléaire de Fission (SCIAM)

Projet 3 : Radiochimie et chimie des actinides pour le cycle et
pour l'environnement

Christophe DEN AUWER (Univ. Côte d'Azur), Philippe GUILBAUD (CEA)

1. Quelles problématiques ?

La chimie moléculaire des actinides (et autres radionucléides) en questionnement



© LBNL Berkeley

Depuis les années 40, on sait déjà beaucoup !

➔ Mais certaines descriptions sont encore très lacunaires :

- Processus RedOx
- Eléments peu explorés
- Processus aux interfaces
- La question des homologues
- Chimie pondérable-impondérable

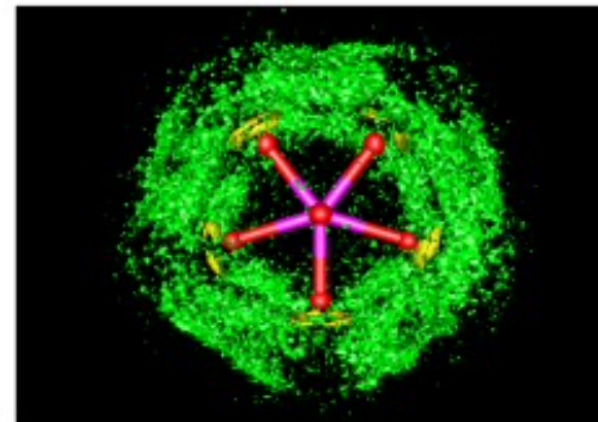
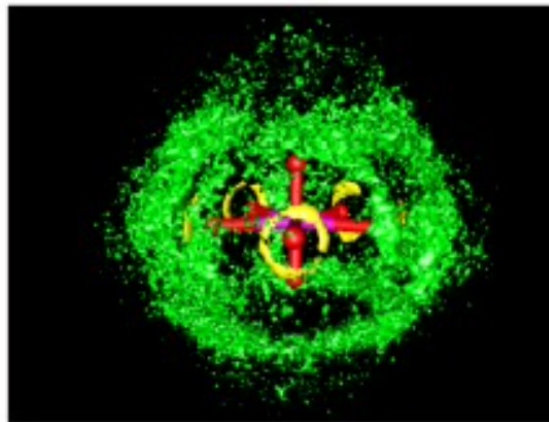
Chimie du Cycle

Chimie de
l'environnement

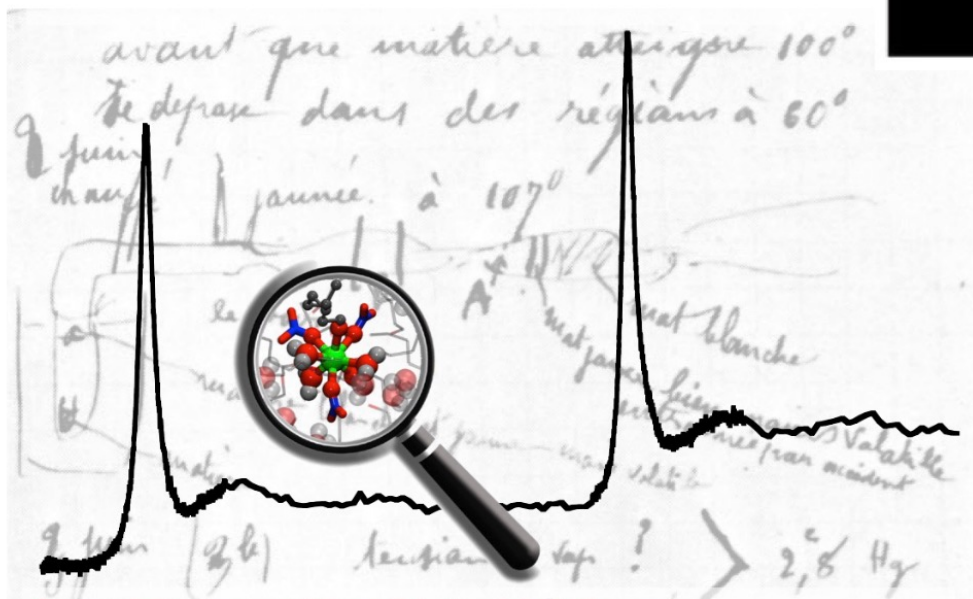
Combiner **chimie**, **Spectroscopie** et **modélisation** pour :

- ✓ Sonder la coordinence
- ✓ Sonder les électrons externes
- ✓ Sonder les degrés d'oxydation

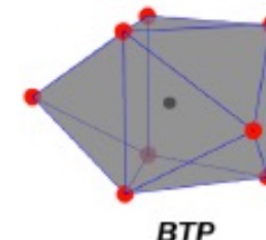
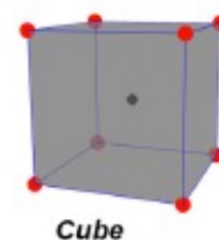
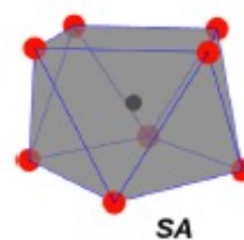
➔ Réactivité en milieux complexes



S. Pérez-Conesa et al. *J. Chem. Phys.* (2016), 145, 224502



8-fold coordination



N. Morales et al. *J. Phys. Chem. Lett.* (2016), 7, 4275

**Analyses
*operando***



**Déficits
analytiques**

**Milieus
complexes**

Modèles

**Comprendre -
prédire**

- ✓ Mécanismes et conditions de formation des colloïdes
- ✓ Chimie moléculaire à l'interface (liq-liq, liq-solide)
- ✓ Degrés d'oxydation ou processus RedOx métastables
- ✓ Eléments peu explorés (Pa, exploration de la chimie du Po)
- ✓ Modélisations en solution et aux interfaces
- ✓ Amélioration des modèles thermo et cinétique
- ✓ Chimie de l'impondérable *vs* pondérable

2. Présentation du projet

Objectifs : - Obtenir des données transversales aux objets d'études
- Permettre un incrément essentiel entre les systèmes modèles étudiés et les systèmes réels

1. Connaissance de la spéciation des actinides (de Th à Cm) en solutions complexes

2. Relations (chimie) entre séparation, conversion, fabrication et dissolution des combustibles

3. Acquisition, calcul et mesures de données de base thermodynamiques et cinétiques

1. Etude intégrée des mécanismes chimiques, biochimiques et géochimiques de transfert aux interfaces

2. Elaboration de marqueurs écologiques et environnementaux pertinents dans des écosystèmes naturels et modèles.

3. Etude des milieux ultra-dilués et réactivité à l'échelle des traces, hydrolyse.

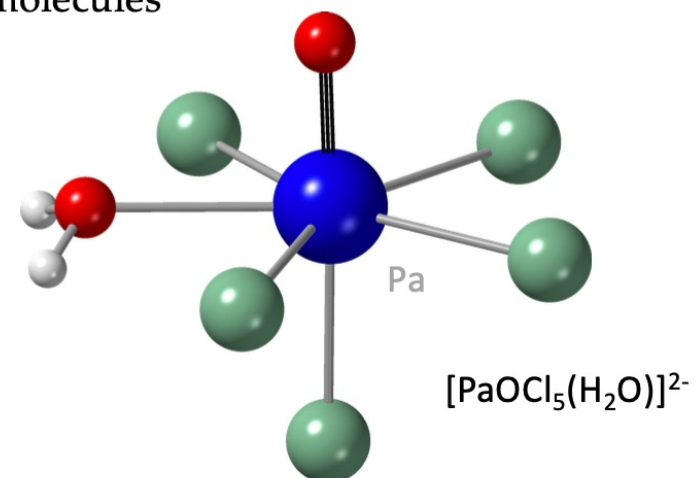
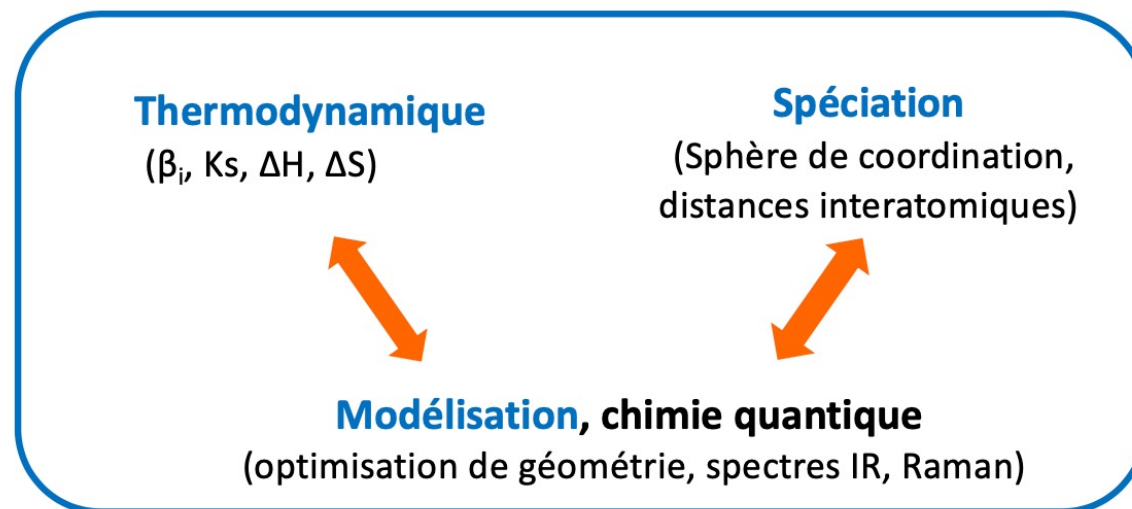
4. Prise en compte des équilibres dans les milieux complexes environnementaux.

1. Caractérisation expérimentale et théorique de la spéciation du Pa

91	2
Pa	8
Protactinium	18
231,04	32
	20
	9
	2

Propriétés du Pa(V) en milieu non complexant et ligands d'intérêt environnemental

- ✓ Chimie fondamentale, évolution des degrés d'oxydation
- ✓ Complexation avec des ligands d'intérêt (phosphate, carbonate, silicate, acides (hydroxy)carboxyliques (aliphatiques&aromatiques), macromolécules)



[C. Le Naour, M. Maloubier, IJCLab
V. Vallet, PhLAM]

2. Transfert trophique en milieu marin, radioécologie (marine)

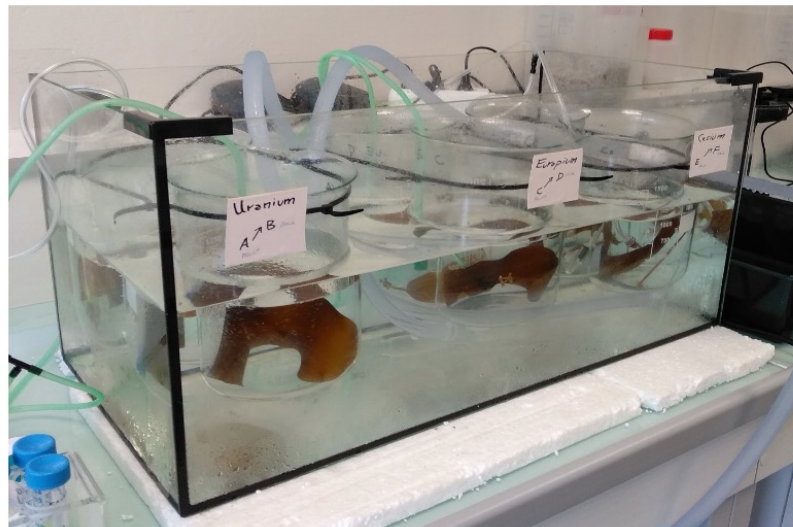
- ✓ Etude des mécanismes biochimiques de **transfert** des actinides :

Transfert trophique, spéciation chimique, réponses biologiques

- ✓ Prise en compte des mécanismes de compétition dans les **milieux complexes** environnementaux :

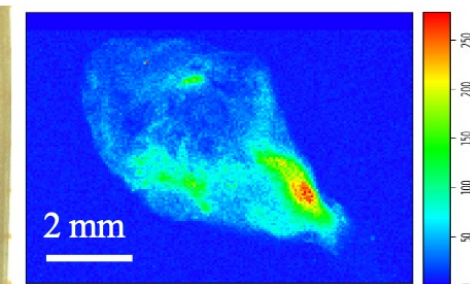
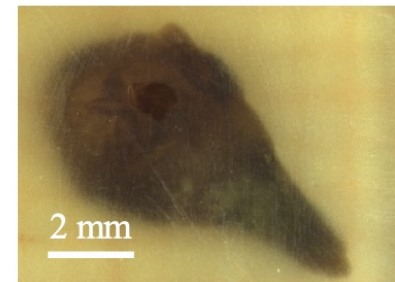
Biodisponibilité dans milieux marins complexes

92	2
U	8
	18
	32
Uranium	21
238,03	9
	2



[M. R. Beccia, C. Den Auwer, ICN]

Localisation, spéciation et quantification (ultra-traces) de radionucléides dans des matrices biologiques complexes



Algue *Ascophylum nodosum*

μ - XRF seuil L_{II} U (20 948 eV)

3. Bactéries, sidérophores, impact de radionucléides sur la population bactérienne

- **Stockage des déchets nucléaires** en couches géologiques profondes en France (à Bure, avec l'ANDRA) et en Suisse (au Mont Terri, avec la NAGRA).
- **Tranchée de sol contaminé** proche de Tchernobyl (Ukraine) avec ASNR.

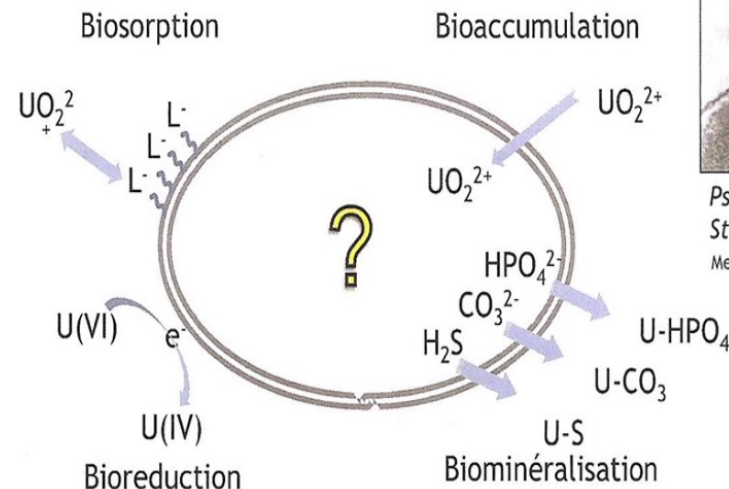
92	2
U	8
	18
	32
Uranium	21
238,03	9
	2



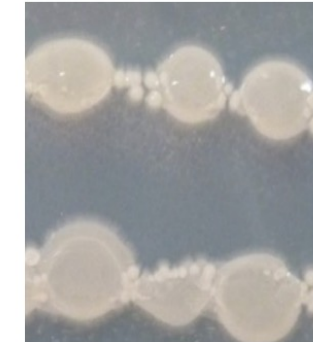
*Microbacterium
Bacillus*
Nedelkova et al., 2007



*Geobacter
Shewanella*
Cologgi et al., 2011



*Pseudomonas
Stenotrophomonas*
Merroun et Selenska-Pobell 2008



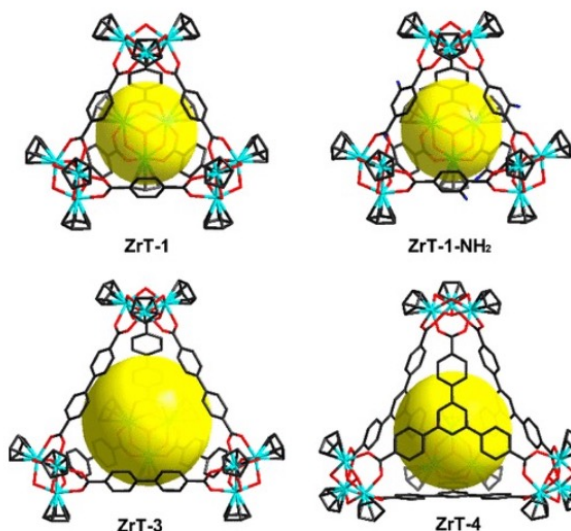
[C. Sergeant, LP2IB]

4. Ligands organiques inédits pour les actinides à bas degré d'oxydation

92	2
U	8
	18
	32
Uranium	21
238,03	9
	2

Réactivité des actinides à bas degrés d'oxydation (U^{III} ou U^{IV}) pour :

- ✓ La formation de polymères de coordination offrant des structures ouvertes.
- ✓ La formation cages métal-organique (type MOC).



Topologie connue avec Zr^{IV}
mais Th^{IV} ? U^{IV} / U^{III} ?

JACS 140 6231 (2018)

Focus sur la chimie de l' U^{III} (quasiment non explorée en présence de ligand O-donneur type carboxylate), avec la possibilité d'étendre ces systèmes chimiques à Pu^{III}

[T. Loiseau, UCCS]

5. Caractérisation expérimentale et théorique de clusters de Pu

Synthèse & Propriétés

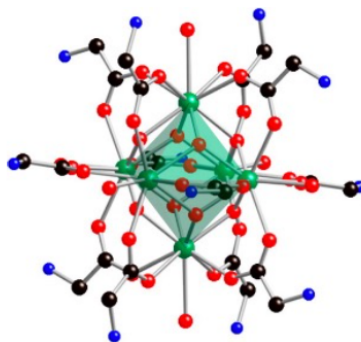
Caractérisation des propriétés structurales des NPs de PuO₂

Rationalisation des étapes de nucléation & croissance des nanoparticules

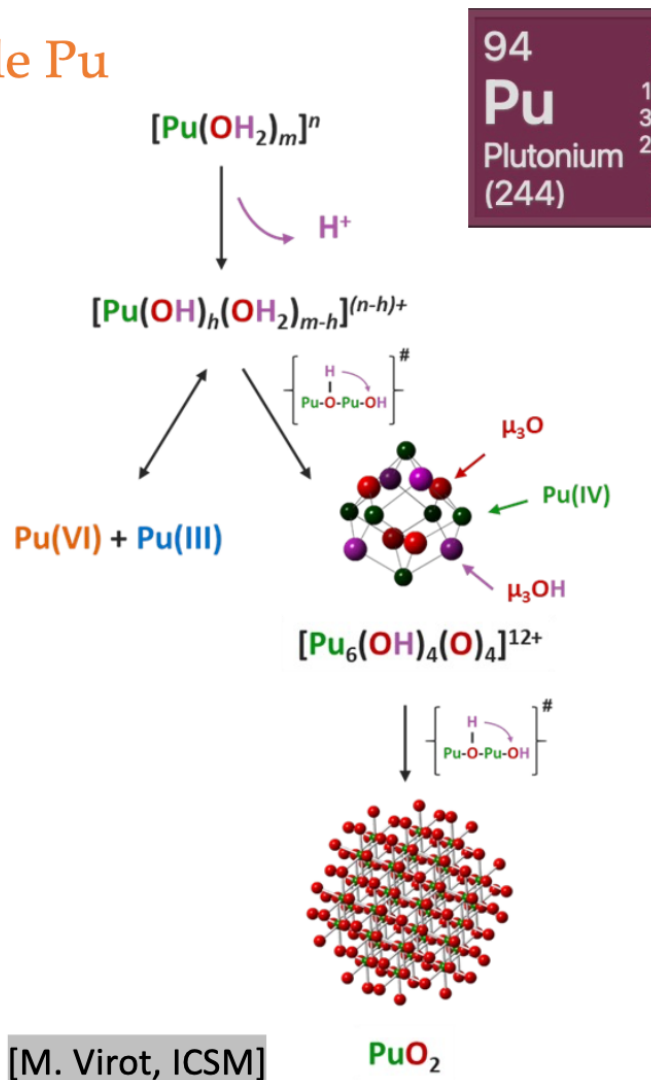
Mécanismes de formation

Rôle & Réactivité des structures polynucléaires

Vers la nano-engineering des nanoparticules d'oxydes mixtes

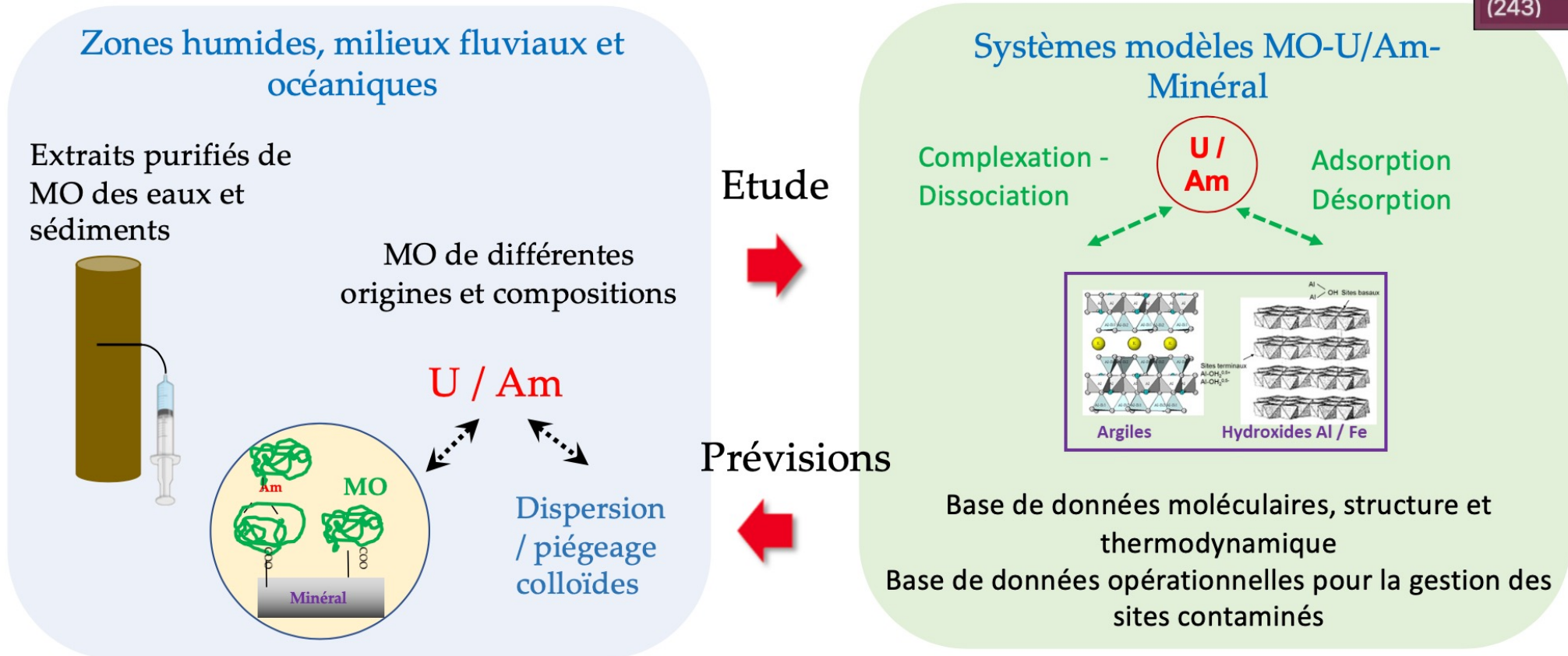


[C. Tamain, ISEC]



6. Etude multi-échelle de systèmes modèles U/Am – Matière Organique (MO)

95	2
Am	8
Américium	18
(243)	32
	25
	8
	2



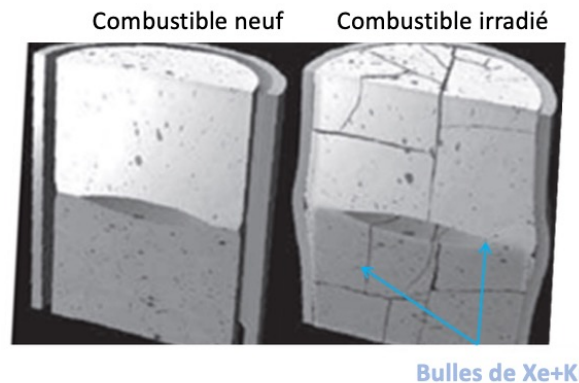
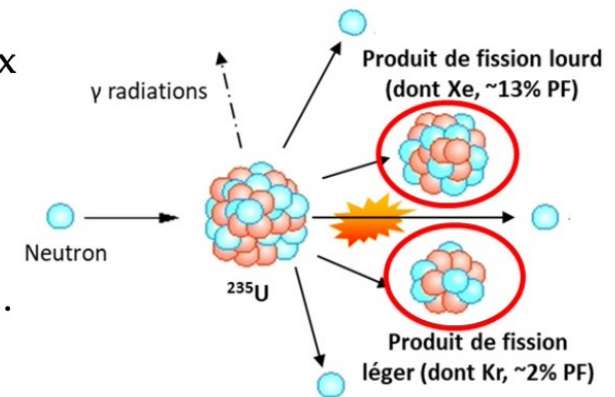
[G. Montavon, M. Del Nero, Subatech]

7. Diffusion des produits de fission dans les combustibles

54	2
Xe	8
Xénon	18
131,29	18
	8

Comportement des gaz rares (hélium, krypton, xénon)

- ✓ Le xénon et le krypton représentent les principaux produits de fission gazeux des combustibles de fission.
- ✓ L'hélium, produit des réacteurs de fusion & produit de la radioactivité α
Accumulation par irradiations dans les matériaux structuraux des réacteurs.....



 **Comportement et diffusion** de He, Kr et Xe dans les matériaux du nucléaire

[D. Horlais, LP2IB]

3. Le projet en quelques points

Chimie des actinides

Comprendre et modéliser

Milieus complexes

Ressources Humaines

Personnel permanent

436 pers.mois

Personnel non-permanent



252 pers.mois

Total : 688 pers.mois

Budget & Moyens (PEPR)

2074 k€ (dont 28% RH)

- **Ligne MARS (SOLEIL)**
 - Instrumentation analytique
 - Instrumentation radiométrie
 - Accueil Atalante
-
- 6 thèses
 - 1 post-doc SOLEIL



Une première rencontre de démarrage le
25 Juin 2026