

Valérie VALLET^[1], Johann POTOSCHNIG^[2], Dmitry LYAKH^[3],
Hans Jorgen AAGAARD JENSEN^[4], Lucas VISSCHER^[2],
André SEVERO PEREIRA GOMES^[1]

[1]. Physique des Lasers, Atomes et Molécules, CNRS UMR8523, Université de Lille, France

[2]. Section Theoretical Chemistry, Faculty of Sciences, Vrije Universiteit Amsterdam, The Netherlands

[3]. Oak Ridge National Laboratory Leadership Computing Facility, USA

[4]. Department of Physics, Chemistry and Pharmacy, University of Southern Denmark, Denmark

Modélisation prédictive de la structure électronique de complexes d'actinides (PRECISE)

Les éléments lourds occupent une position centrale dans les sociétés modernes à cause de leur utilisation intensive comme composants d'objets d'utilisation quotidienne ou industrielle (métaux « d », et lanthanides), et dans la production d'énergie renouvelable (lanthanides) et nucléaire (actinides). Dans chacune de ces activités, il est indispensable de comprendre les processus physiques et chimiques sous-jacents, ce qui revient souvent à caractériser le comportement de la matière à l'échelle microscopique. Pour les actinides et d'autres éléments radioactifs, les difficultés à manipuler expérimentalement les molécules en question font que la modélisation théorique est devenue

incontournable^[1], à condition que les méthodes utilisées soient assez précises pour avoir une valeur prédictive.

Dans le projet PRECISE nous avons comme objectif de caractériser la fiabilité de la méthode DFT (largement utilisée à cause de son faible coût calculatoire) pour des propriétés de complexes d'actinides de tailles variées (voir exemples dans la figure ci-dessous) au travers d'une comparaison avec des méthodes de haute précision comme la méthode couplé cluster (CC) - qui dans sa version relativiste^[2] a récemment été (re) implémentée pour des architectures (pre-) Exascale^[3].

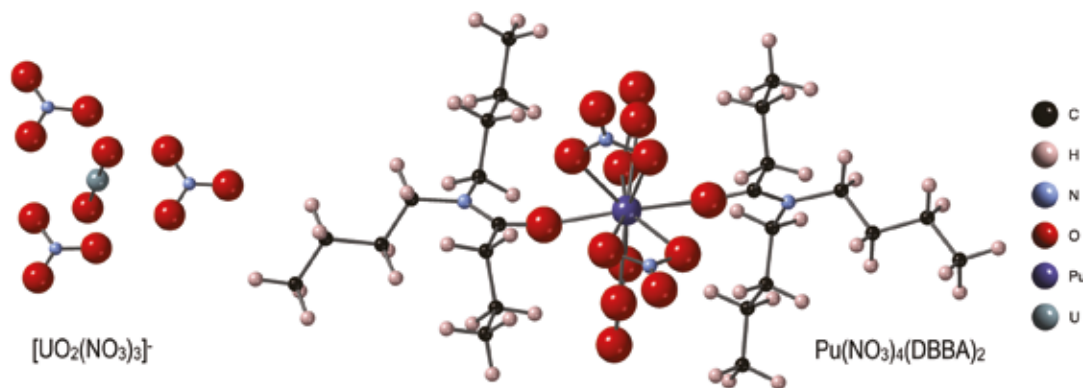


Figure : complexes de l'ion uranyle (UO_{22+}) avec ions nitrate (gauche), et de $Pu(IV)$ avec ions nitrate et N,N -dialkylamides (DBBA) (droite), investigués avec des méthodes de structure électronique relativistes basées sur des approches à 4 composantes.

Pendant le projet, nous avons réussi à traiter des complexes d'uranyle (202 électrons et environ 1000 spineurs virtuels) avec les approches DFT et CC^[3], et de plus gros complexes contenant du plutonium et des ligands de séparation de nouvelle génération (jusqu'à 442 électrons) avec la DFT. La comparaison de la DFT avec la méthode CC pour ce dernier système sera possible une fois que des développements supplémentaires (actuellement en cours) seront rendus disponibles dans le code CC^[3].

^[1] R. Maurice, E. Acher, N. Galland, D. Guillaumont, F. Réal, E. Renault, J. Roges, A.S.P. Gomes, B. Siberchicot, V. Vallet, L'Actualité Chimique, 2021

^[2] T. Saue et al., "The DIRAC code for relativistic molecular calculations", J. Chem. Phys. 152 (2020) 204104 <https://diracprogram.org>

^[3] J. V. Pototschnig, A. Papadopoulos, D. I. Lyakh, M. Repisky, L. Halbert, A. S. P. Gomes, H. J. Aa. Jensen, L. Visscher, "Implementation of relativistic coupled cluster theory for massively parallel GPU-accelerated computing architectures" J. Chem. Theory Comput. 17 (2021) 5509

