

Supporting Information

低浓缩铀靶辐照后溶液中铀的化学种态及主要裂变元素的影响

兰图^{1,2} 刘展翔¹ 李兴亮^{1,3} 廖家莉^{1,*} 罗顺忠³ 杨远友¹ 柴之芳^{2,4} 刘宁¹ 王东琪^{2,*}

(¹ 四川大学原子核科学技术研究所, 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064;

² 中国科学院核辐射与核技术重点实验室, 中国科学院高能物理研究所多学科中心, 北京 100049;

³ 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900

⁴ 苏州大学放射医学及交叉学科研究院(RAD-X), 苏州 215123)

*Corresponding author.

Tel.: +86 28 85412613; +86 10 88236606

E-mail address: liaojiali@scu.edu.cn; dwang@ihep.ac.cn.

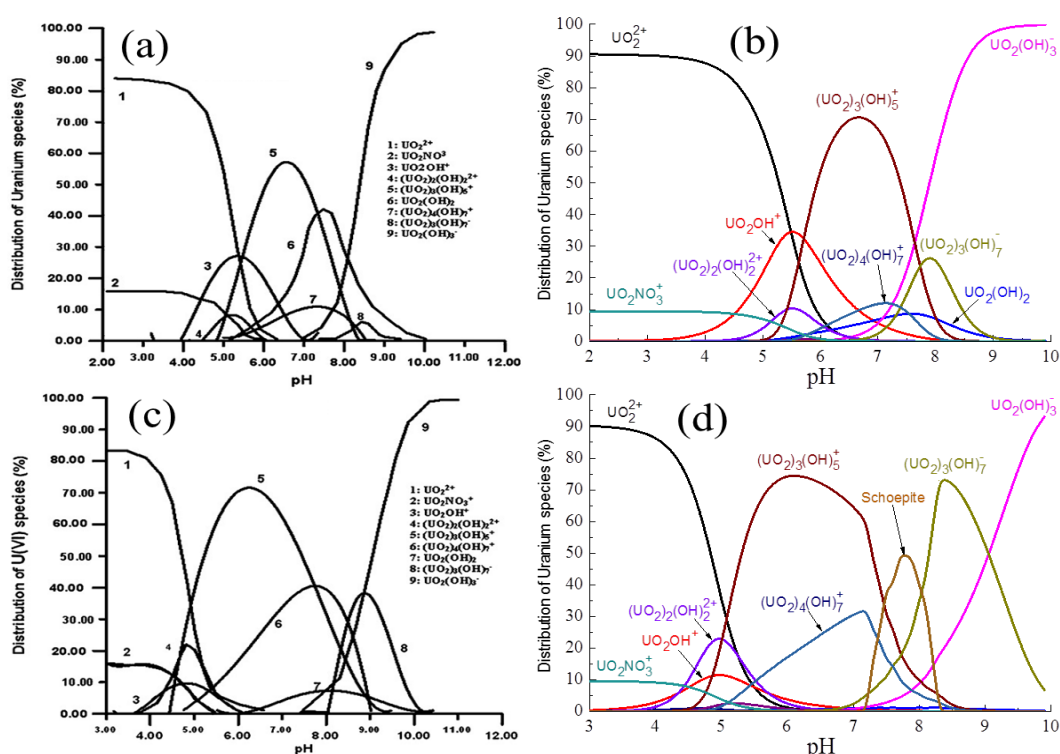
*Corresponding author. Email: liaojiali@scu.edu.cn, Tel: +86-28-85412613; dwang@ihep.ac.cn, Tel: +86-10-88236606

The project was supported by Joint Funds of China National Natural Science Foundation and China Academy of Engineering Physics (Grant No.U1330125), the National Fund of China for Fostering Talents in Basic Science (J1210004), and the CAS Hundred Talents Program (Y2291810S3)

国家自然科学基金委员会和中国工程物理研究院联合基金(NSAF, Grant No.U1330125)、国家基础科学人才培养基金 特殊学科点资助项目(J1210004)、中国科学院百人计划(Y2291810S3)

Fig.S1 and Fig. S2

SmainKorichi 等人运用化学种态分析软件 MINTEQA2 计算了在不同 pH 和铀酰浓度的条件下铀的种态分布^[1]。该计算体系中, $[U(VI)]=1-20\text{mg L}^{-1}$, $[NaNO_3]=0.1\text{mol L}^{-1}$ 。我们使用 CHEMSPEC 进行计算, 其计算结果极其相似。图 1 是 CHEMSPEC 和 MINTEQA2 计算结果的比较。可以看出, CHEMSPEC 的计算结果与 MINTEQA2 的计算结果符合很好。类似地, Scott J. Markich 运用化学种态分析软件 HARPHRQ 计算了铀在澳大利亚悉尼霍克斯伯里-尼皮恩(Hawkesbury-Nepean)河中的种态分布^[2]。图 2 是 CHEMSPEC 和 HARPHRQ 计算结果的比较。可以看出, CHEMSPEC 的计算结果与 HARPHRQ 的计算结果也符合得很好。通过 CHEMSPEC 与 MINTEQA2 和 HARPHRQ 的模拟结果对比可以看出, U 的主要化学形态及其浓度符合得较好, 但个别化学形态的浓度有不同程度的差别。原因可能是由于三者之间采用的数据库不同, 也可能是浓度太低, 三个程序设定的计算精度不同造成的。



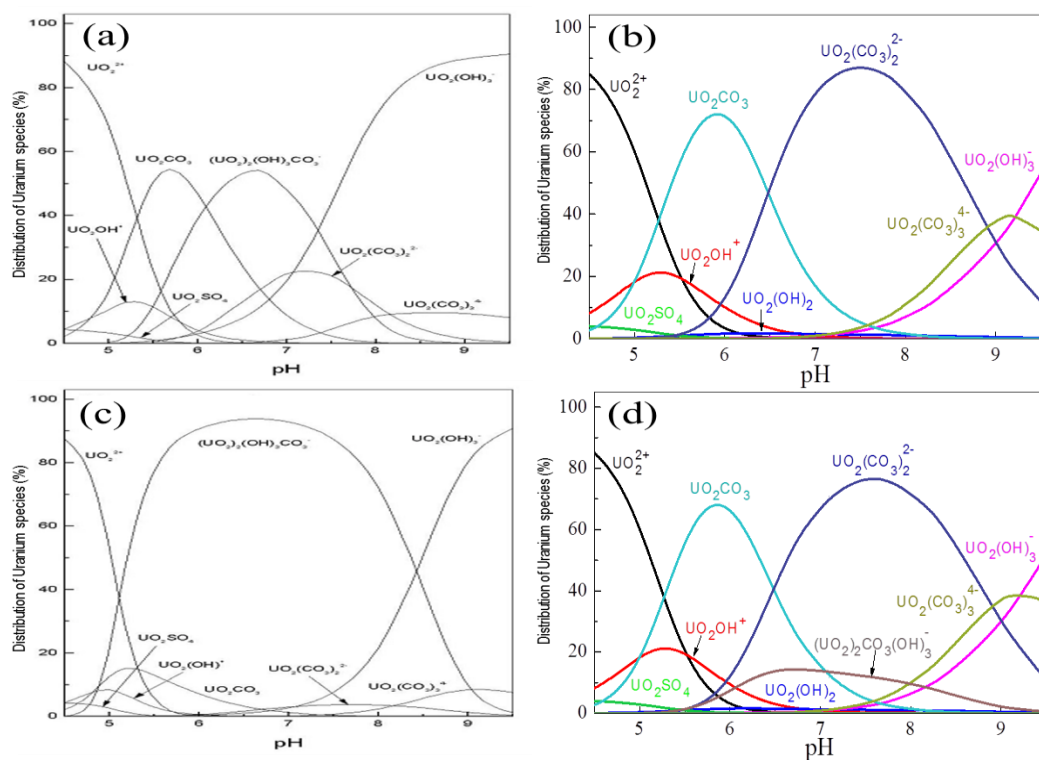


图 2 CHEMSPEC (右)和 HARPHRQ (左)计算铀的化学形态分布结果的比较
 Fig.S2 Calculations of U speciation by two speciation codes CHEMSPEC (right) and HARPHRQ (left)

($[\text{UO}_2^{2+}] = 0.3 \mu\text{g L}^{-1}$ (a, b), $[\text{UO}_2^{2+}] = 30 \mu\text{g L}^{-1}$ (c, d), $[\text{CO}_3^{2-}] = 40 \text{mg L}^{-1}$, $[\text{SO}_4^{2-}] = 9.4 \text{mg L}^{-1}$, $[\text{Cl}^-] = 5.1 \text{mg L}^{-1}$)

Fig. S3

根据路易斯酸碱理论，碘离子被认为是“软”的路易斯碱，虽然没有“硬”的路易斯碱 NO_3^- 与铀酰离子的配位能力强，但是依然能表现出与铀酰离子配位的能力。因此，碘离子对铀酰离子化学种态分布的影响依然不容忽视。图 S3 给出了四种浓度 I (1.0×10^{-6} 、 2.18×10^{-5} 、 1.0×10^{-3} 、 $1.0 \times 10^{-2} \text{ mol L}^{-1}$) 对铀的各化学种态的影响和铀的各化学种态随 pH 和 I 浓度的变化情况。当 $\text{pH} < 3.0$ ，铀酰在溶液中主要存在两种种态： UO_2^{2+} 、 UO_2NO_3^+ ； $4.0 < \text{pH} < 5.0$ ，两种种态 ($(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$ 、 $(\text{UO}_2)_4(\text{OH})_7^+$) 共存；在 $3.0 < \text{pH} < 5.0$ 的范围内，有 $(\text{UO}_2)_2\text{OH}^{3+}$ 、 $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$ 、 $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_4^{2+}$ 等多核配合物生成。随着 I 浓度的增大，铀酰各化学种态的分布情况基本相似。

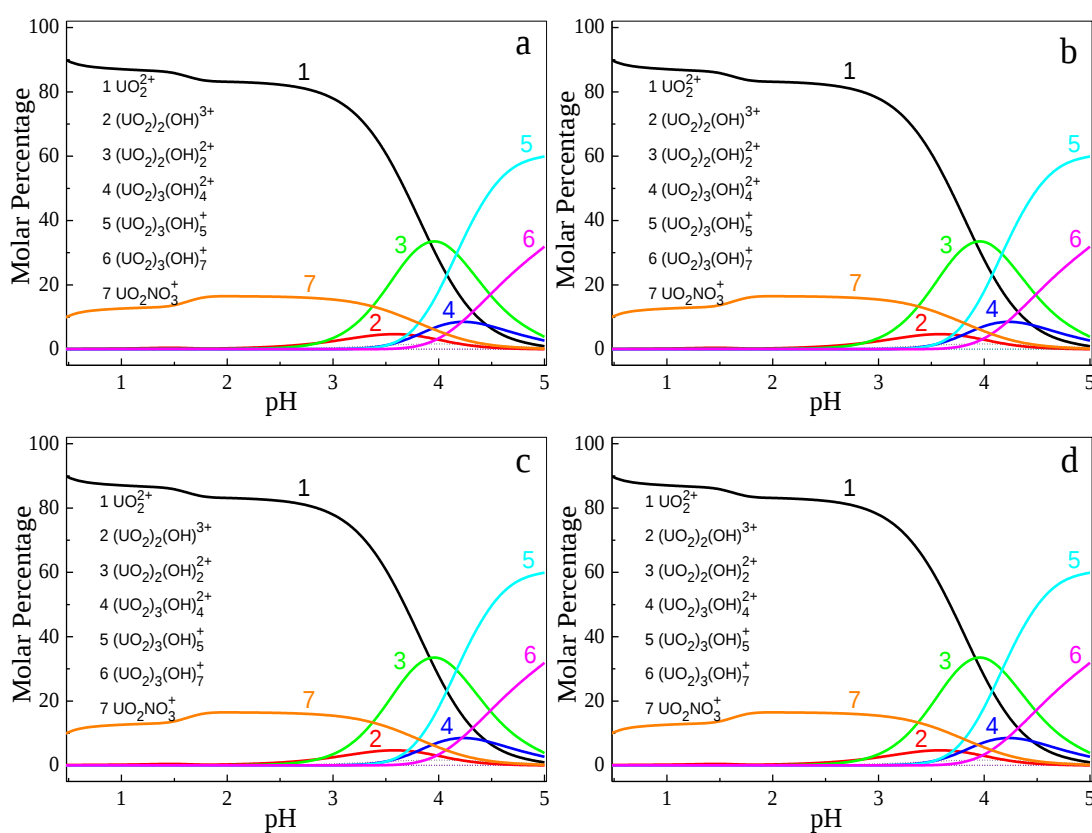


图 S3 I 浓度对铀的化学种态的影响

Fig.S3The chemical species of uranium as a function of pH values in the presence of I

($[\text{UO}_2^{2+}] = 0.01 \text{ mol L}^{-1}$, $[\text{I}] = 1.0 \times 10^{-6}$ (a), 2.18×10^{-5} (b), 1.0×10^{-3} (c), $1.0 \times 10^{-2} \text{ mol L}^{-1}$ (d), $T = 25^\circ \text{C}$, $P = 0.1 \text{ MPa}$)

Fig. S4

^{99}Mo 是钼的放射性同位素之一，主要用于制备医用放射性同位素 ^{99}Tc 。由于 ^{99}Mo 具有较高的裂变产额（6.13%，与 ^{99}Tc 相近），因此我们也考察了 Mo 对铀化学种态分布的影响。图 S3 是四种浓度 Mo (1.0×10^{-6} 、 6.10×10^{-5} 、 1.0×10^{-3} 、 $1.0 \times 10^{-2} \text{ mol L}^{-1}$) 对铀的各化学种态分布的影响。可以看出，铀酰的存在形态主要与溶液 pH 有关。随着 pH 的增大，种态 UO_2^{2+} 所占比例逐渐减少，种态 $(\text{UO}_2)_2\text{OH}^{3+}$ 和 $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$ 所占比例先增大后减小，种态 $(\text{UO}_2)_3\text{OH}_5^+$ 和 $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_7^+$ 所占比例逐渐增大。随着 MoO_4^{2-} 浓度的增大，铀酰各化学种态的分布情况也基本相似。

综上所述，对于 I 和 Mo，通过比较四种浓度 I 和四种浓度 Mo 下铀的各化学种态的分布发现，铀的各化学种态随 pH 和 $\text{I}/\text{MoO}_4^{2-}$ 浓度的变化规律与 Tc 对铀的化学种态分布的影响基本相似，表明在所研究的浓度范围内， MoO_4^{2-} 对铀酰的种态分布没有显著影响，并不与铀酰离子形成双核复合物，而碘离子也不具备将铀酰离子还原的能力。

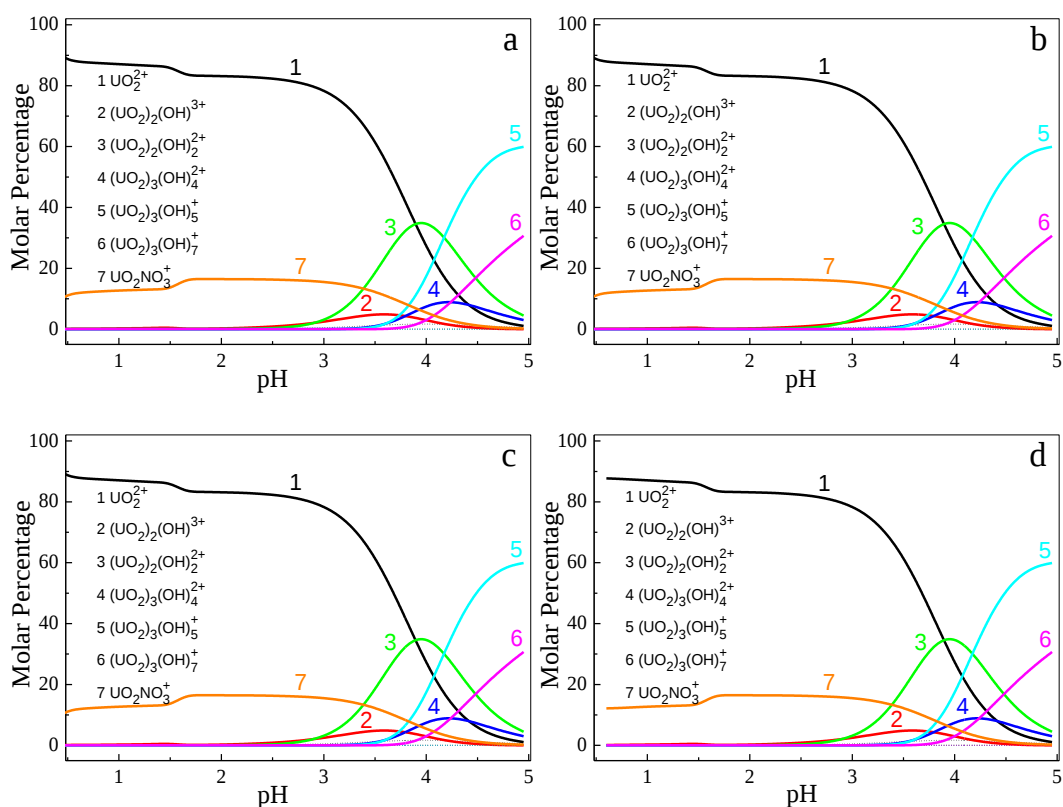


图 S4 Mo 浓度对铀的化学种态的影响

Fig.S4The chemical species of uranium as a function of pH values in the presence of Mo ($[\text{MoO}_4^{2-}] = 1.0 \times 10^{-6}$ (a)、 6.10×10^{-5} (b)、 1.0×10^{-3} (c)、 1.0×10^{-2} (d) mol L^{-1} (d), $T = 25^\circ\text{C}$, $P = 0.1 \text{ MPa}$)

Reference

1. Korichi S; Bensmaili A. *J. Hazard.Mater*, **2009**, 169: 780.
2. Markich S. J. *The Scientific World J*, **2002**, 2: 707.