中国科学: 化学 2019 年 第 49 卷 第 10 期: 1308 ~ 1314
SCIENTIA SINICA Chimica chemcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS

论 文

CHEMSPEC模拟铀在塔木素地下水中的种态分布

徐雪雯[1], 周万强[1], 董亮[2], 谭昭怡[2], 王祥云[1], 刘春立[1*]

1. 北京分子科学国家研究中心; 放射化学与辐射化学重点学科实验室; 北京大学化学与分子工程学院, 北京 100871
2. 中国工程物理研究院, 绵阳 621900
*通讯作者, E-mail: liucl@pku.edu.cn

收稿日期: 2019-01-22; 接受日期: 2019-03-12; 网络版发表日期: 2019-09-06
国家自然科学基金(编号: U1530112, 11475008, U1730245)资助项目

摘要 本文使用CHEMSPEC软件模拟了铀在塔木素地下水中的种态分布, 并讨论了pH、Eh、离子浓度以及温度对铀种态分布的影响. 结果表明, 铀在强酸性条件下, 主要以UO_2^{2+}(aq)的形式存在; 在弱酸性、中性以及弱碱性条件下, 主要以$UO_2(OH)_2$(aq)的形式存在; 在强碱性条件下, 主要以$UO_2(OH)_3^-$的形式存在, 可能会生成$CaUO_4$沉淀. Eh<33 mV时, $U(OH)_4$(aq)为优势种态; 而Eh>33 mV时, U(VI)更为稳定. 不同阴离子的引入对铀的种态分布影响的大小顺序为HCO_3^->F^->SO_4^{2-}>Cl^-. UO_2^{2+}浓度的增加促进了$CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$和$Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq)的生成. 温度升高使塔木素地下水中UO_2OH^+的浓度显著提高.

关键词 CHEMSPEC, 铀, 塔木素, 种态分布, 影响因素

1 引言

能源危机和环境污染已经成为制约社会经济和人类可持续发展的主要问题, 核能扮演着越来越重要的角色. 自然界中铀有三种常见同位素, 分别为^{234}U(0.0056%)、^{235}U(0.7205%)和^{238}U(99.2739%), 其中^{235}U是一种易裂变核素, 1 g ^{235}U完全裂变释放的能量相当于2.7×10^6 g煤完全燃烧释放的能量, 因此铀是非常重要的核燃料. 铀的三种同位素都具有放射性和化学毒性, 而且半衰期均较长, 分别为2.46×10^5 a(^{234}U)、7.04×10^8 a(^{235}U)和4.47×10^9 a(^{238}U). 核燃料循环过程中会产生大量的高放废物, 这些废物通常具有放射性核素含量高、浓度高、产热量大、毒性强等特点, 其中的放射性核素可能会随着地下水迁移扩散至生物圈, 对人类和环境构成潜在危害.

目前普遍接受的高放废物的处置方法是基于多重屏障系统的深地质处置, 即将高放废物埋置在地下500~1000 m深的地质体中, 采用多重屏障体系将高放废物隔离起来. 缓冲回填材料是地质处置中最后一道人工屏障, 需具备长期的稳定性、耐腐蚀性、低气体通透性、核素迁移率低等特性. 天然黏土储量丰富且经济实惠, 能够较好地满足上述特点. 塔木素地区位于内蒙古西部巴音戈壁盆地南部因格井坳陷东段北缘, 拥有大片的黏土岩, 具有作为高放废物地质处置场的前景. 另外, 该地区还具有良好的成铀矿潜力, 其砂岩型铀矿床已达到大型矿床规模. 吴仁贵等[1]分别从地质条件和改造作用对铀成矿作用的影响等方面对该地段的铀成矿进行了综合分析.

引用格式: Xu X, Zhou W, Dong L, Tan Z, Wang X, Liu C. Speciation distribution of uranium in Tamusu groundwater calculated by CHEMSPEC. *Sci Sin Chim*, 2019, 49: 1308–1314, doi: 10.1360/SSC-2019-0006

© 2019 《中国科学》杂志社

地下水对砂岩型铀矿成矿起着十分重要的作用. 我国北方大部分砂岩型铀矿床中, 地下水矿化度一般小于10 g/L, 而塔木素铀矿床地下水矿化度平均可以达到35.39 g/L[2]. 王凤岗等[3]研究发现, 塔木素地区铀矿化明显受水岩作用控制, 水岩作用使斜长石表面及解理面产生微洞和微裂隙, 并在碳酸盐胶结物中形成溶洞, 为铀沉淀提供了空间场所.

地球化学模型也被应用到塔木素地下水研究中. 典型的地球化学软件包括PHREEQC、MINTEQA2、EQ3/6等. 王强[4]运用PHREEQC计算了塔木素地区下白垩统地下水中沥青铀矿的饱和指数(SI)、Eh反应条件边界值及Eh反应条件指数RCI_{Eh}. 门宏等[5]对简化的铀成矿过程进行模拟, 将CH_4与H_2S的混合气体通入矿床地下水, 发现铀的化合物沉淀作用明显. 邱杰等[6]运用PHREEQC模拟了塔木素地下水中Th元素的种态分布, 并研究了温度、pH和Eh条件对Th的种态分布的影响.

总体来看, 塔木素地区特点鲜明, 但相关研究数量还比较有限, 发展也不够成熟. 另外, 本文引用的塔木素地区相关的研究中均认为铀主要以$UO_2(CO_3)_2^{2-}$和$UO_2(CO_3)_3^{4-}$的形式存在. 地下水中铀的存在形式受到pH值、Eh值、不同离子浓度等因素共同作用, 会不断发生变化, 因此若能更为详细地计算出不同条件下铀的种态分布, 对深入理解核素扩散及迁移行为、地质处置库的安全评价、成矿机理的研究和区域铀资源评价起到重要作用.

2　计算软件与模拟条件

2.1　计算软件简介

本文利用化学种态分析软件CHEMSPEC计算了塔木素地下水中铀的种态分布. 北京大学核环境化学课题组在王祥云教授的协助下于2008年开始编写CHEMSPEC, 并不断对其进行更新和优化.

CHEMSPEC根据输入文件中物质的分析浓度和已有的热力学数据, 利用活度系数公式和质量平衡方程计算体系达到热力学平衡时溶液中存在的物种及其浓度, 也可以处理沉淀-溶解平衡及氧化还原平衡问题. 常见的活度系数模型包括推广的Debye-Hückel公式、Davies公式、B-dot公式、专属离子相互理论SIT公式和Pizer公式, 它们适用于特定的离子强度范围, 可以根据具体需要进行选择. 求解质量方程的本质是求解高阶的非线性方程组, 程序首先会调用Newton-Raphson法, 在多数情况下, 都能快速收敛到合理解. 如果不收敛, 程序可能先后调用阻尼最小二乘法、单纯形算法、广义逆法和直接搜索法-模式搜索法, 直至收敛.

陈涛等[7]和孙茂等[8]利用CHEMSPEC分别计算了Am和Np在北山地下水和北山五一井水中的种态分布和溶解度; 朱建波等[9]利用C++语言对CHEMSPEC软件界面进行了可视化; 蒋美玲等[10]计算了Am在北山地下水和西南地下水中的种态分布及溶解度; 蒋京呈等[11]模拟计算了Np和Pu在北山地下水中的种态分布和它们在水合氧化铁上的吸附; 兰图等[12]计算了低浓缩铀靶后溶液中铀的化学种态及主要裂变元素对铀种态分布的影响; 周万强等[13]计算了铀在北山地下水的种态分布及其在石英和水合氧化铁两种材料上的吸附. 这些研究的计算结果表明CHEMSPEC软件的适用性在不断扩展.

与PHREEQC、MINTEQA2、EQ3/6等其他地球化学软件相比, CHEMSPEC不仅可以利用饱和指数判断沉淀的生成, 还能计算出具体物质的量, 可为种态分析等问题提供有力的数据支持. 另外, 我国幅员辽阔, 不同区域的水文地质条件差异极大, 作为CHEMSPEC的自主知识产权所有者, 我们可以结合国内高放废物处置重点区域的实验数据实时地更新CHEMSPEC的数据库, 从而保证计算的适用性和准确性.

2.2　模拟条件设定

本次模拟使用的塔木素地下水成分数据来源于核工业北京地质研究院的测试结果[2], 具体为ZKH58-44钻孔内深510 m处的数据, 测定pH为7.17, 其化学组成如表1所示. 除研究温度对铀种态分布的影响之外, 模拟温度均设定为25℃, 气压为0.1 MPa, pe(电子活度的负对数)为4.0.

3　结果与讨论

3.1　pH的影响

本文考察了pH的变化对铀种态分布的影响, pH的变化范围为3~12, 计算结果如图1所示. 铀在塔木素地下水中的种态分布受pH的影响大致可分为三个阶段:

表 1 塔木素 ZKH58-44号钻孔510 m深处地下水化学组成[2]

Table 1 Chemical composition of water taken from ZKH58-44 drilling hole 510 m underground in Tamusu area [2]

成分	Ca^{2+}	Mg^{2+}	Na^{+}	Cl^{-}	SO_4^{2-}	HCO_3^{-}	U
浓度(μg/L)	881.4	464.8	12775.6	15949	8559	108	14

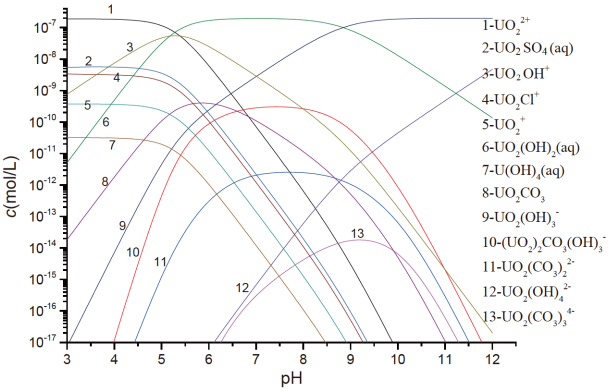


图 1 pH对塔木素地下水中铀种态分布的影响(网络版彩图)

Figure 1 Influence of pH on uranium speciation distribution in Tamusu groundwater (color online).

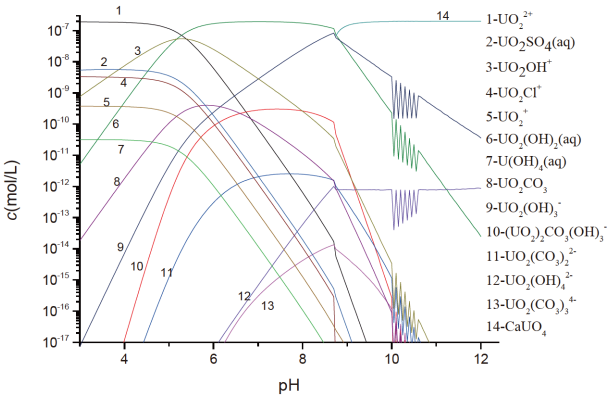


图 2 不限制沉淀生成时pH对塔木素地下水中铀种态分布的影响(网络版彩图)

Figure 2 Influence of pH on uranium speciation distribution without limit on precipitation generation in Tamusu groundwater (color online).

pH<5.3时, 铀的优势种态为UO_2^{2+}; pH在5.3~8.8时, 优势种态为$UO_2(OH)_2(aq)$; pH>8.8时, $UO_2(OH)_3^{-}$成为铀的主要种态. 在测定的pH为7.17的条件下, 铀的优势种态为$UO_2(OH)_2(aq)$ (96.8%), 此时体系中还含有2.0%的$UO_2(OH)_3^{-}$和1.0%的UO_2OH^{+}.

从图1来看, 酸性较强时, 体系中OH^{-}浓度较低, 铀的优势种态为UO_2^{2+}. 随着OH^{-}浓度的增加, UO_2^{2+}更多地与OH^{-}络合, 它与Cl^{-}和SO_4^{2-}形成的络合物浓度不断降低. 此时因为体系中CO_3^{2-}的浓度也随之增加, UO_2^{2+}与CO_3^{2-}形成的络合物总浓度也不断提高. 当pH>8.8时, $UO_2(OH)_3^{-}$成为主要种态, $UO_2(OH)_4^{2-}$也逐渐占据优势, 与CO_3^{2-}相关的各种态浓度开始降低.

值得注意的是, 我们在计算过程中人为地禁止了沉淀的生成, 若取消这一限制, 所得铀的种态分布情况如图2所示. 当pH<8.8时, 铀的种态分布并没有明显的区别, 但是当pH>8.8时, 体系内会开始生成$CaUO_4$沉淀, 当pH>10.2时, 体系中99%以上的铀均以$CaUO_4$的形式存在. 然而, 由于沉淀的生成, 体系中部分组分的浓度骤降, 导致质量平衡方程组的条件被破坏, 计算收敛困难, 因此在pH为10~10.7之间出现了浓度振荡的情况. 经过几次循环, 程序调用了其他算法求解质量平衡方程, 使计算顺利收敛. 目前关于$CaUO_4$的报道还比较罕见, 谭宏斌等[14]曾报道过在水热条件下硅酸盐水泥与铀反应主要生成了$CaUO_4$.

另外, $UO_2(CO_3)_2^{2-}$和$UO_2(CO_3)_3^{4-}$始终不是体系中铀的主要种态, 这是因为体系中HCO_3^{-}含量极低, 仅为0.108 mg/L, 而周万强等[13]研究的北山旧井地区3号井水中这一数值为130.9 mg/L. 这一研究结果可以为塔木素地下水的相关研究提供一定的参考.

3.2 Eh的影响

地下水的电位值一般较低, 地下水中放射性核素的存在使其极易受辐照而产生氧化性自由基, 从而使废物体周围的地下水电位值发生变化, 因此我们考察了塔木素地下水的Eh从−300到+300 mV的变化可能对铀种态分布产生的影响, 计算结果如图3所示. 当Eh<33 mV时, $U(OH)_4(aq)$为优势种态, 其浓度在Eh>−40 mV后开始下降. 五价的游离UO_2^{+}离子浓度随Eh的升高逐渐增加, 并在Eh达到27 mV后开始下降. 体系中六价UO_2^{2+}的配合物浓度也随Eh的升高迅速上升, 基本都在Eh=30~40 mV以后达到稳定. 由此可见, 还原条件下U(IV)比较稳定, 而在氧化条件下, U(VI)更为稳定.

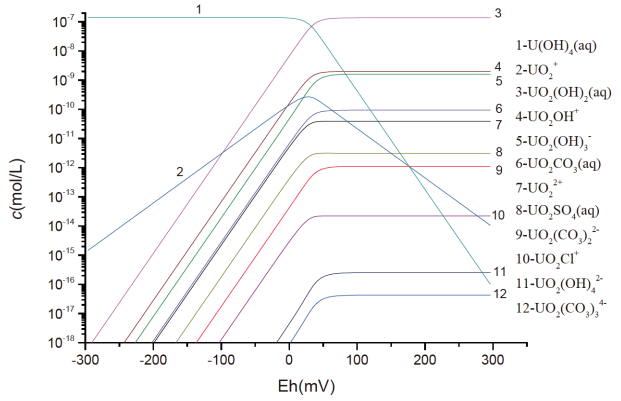


图 3　Eh对塔木素地下水中铀种态分布的影响(网络版彩图)

Figure 3　Influence of Eh on uranium speciation distribution in Tamusu groundwater (color online).

3.3　不同离子浓度的影响

地下水体系的组分浓度会随环境而不断地发生变化，研究不同离子浓度变化对体系中铀的种态分布的影响具有重要意义. 本文首先考察了地下水中四种重要阴离子Cl^-、F^-、SO_4^{2-}和HCO_3^-的影响，它们的浓度变化范围均为10^{-2}~10^{-8} mol/L, 具体计算结果如图4所示.

Cl^-在塔木素地下水中与铀配位形成UO_2Cl^+和UO_2Cl_2(aq)两种配合物, 且更倾向于生成UO_2Cl^+, 随着pM的升高, 即Cl^-浓度降低, 两种配合物的浓度逐渐降低, 但几乎不影响其他种态的浓度, 当pM>3.7时, 溶液中UO_2Cl_2(aq)的浓度可忽略不计.

SO_4^{2-}与Cl^-情况类似，主要与铀配位形成$UO_2(SO_4)_2^{2-}$和UO_2SO_4(aq)两种配合物，SO_4^{2-}浓度的变化主要影响这两个种态的浓度，对其他种态浓度几乎无影响.

F^-与UO_2^{2+}配位形成UO_2F^+、UO_2F_2(aq)、$UO_2F_3^-$和$UO_2F_4^{2-}$四种配合物，虽然从数据库中发现F^-与U^{4+}也可以发生配位生成UF_4(aq)等多种配合物，但是计算结果显示生成的这些配合物浓度低至可忽略不计，由

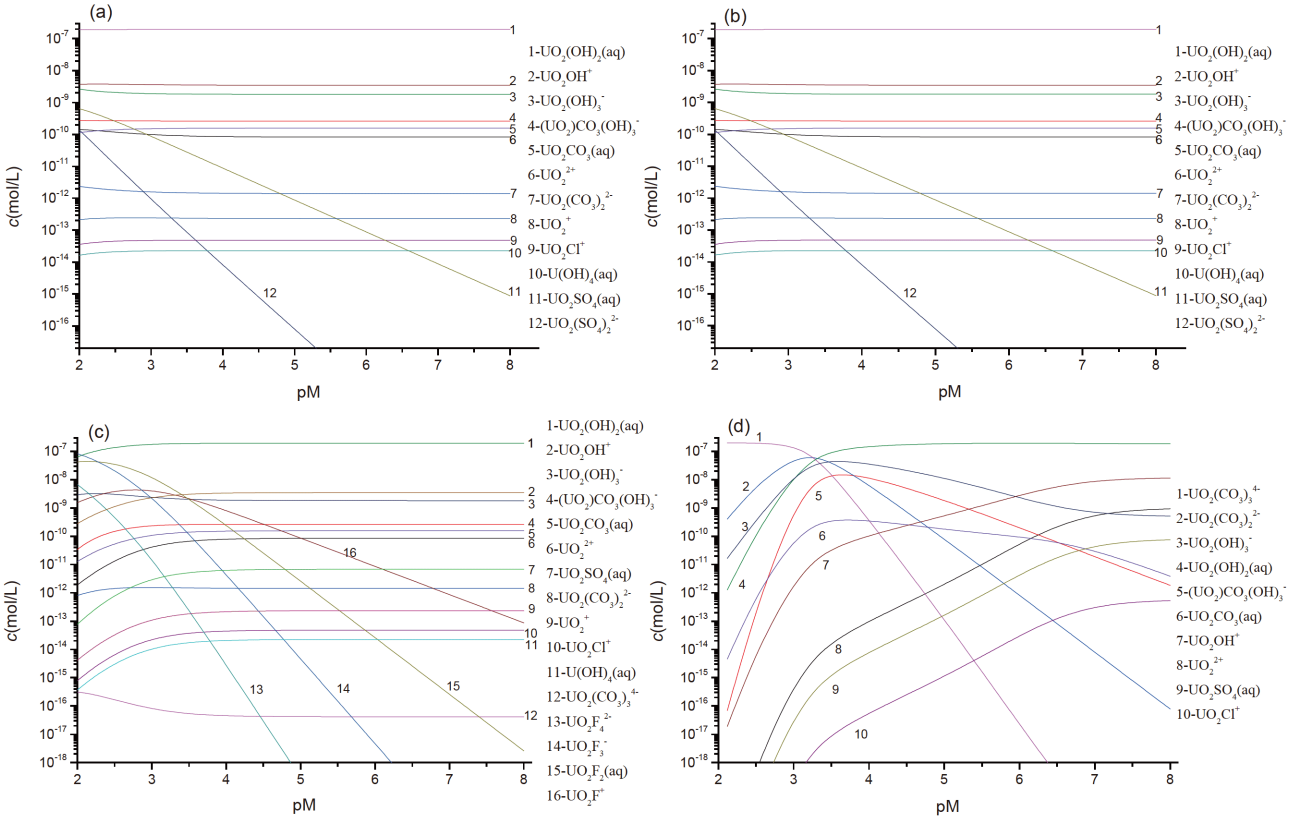


图 4　不同阴离子对塔木素地下水中铀种态分布的影响. (a) Cl^-; (b) F^-; (c) SO_4^{2-}; (d) HCO_3^- (网络版彩图)

Figure 4　Influence of different anions on uranium speciation distribution in Tamusu groundwater. (a) Cl^-; (b) F^-; (c) SO_4^{2-}; (d) HCO_3^- (color online).

此可见F^-与UO_2^{2+}形成的配合物稳定性更高. 当pM<4.0, 即地下水中F^-的浓度>10^{-4} mol/L时, 体系中UO_2^{2+}的浓度明显降低, 因此其他种态的浓度也相应的降低.

HCO_3^-对体系的影响最为复杂, 在研究的pM范围内, 各种态浓度均发生了多个数量级的变化. pM在2.0~3.2时, CO_3^{2-}浓度较高, $UO_2(CO_3)_3^{4-}$为溶液的优势种态, 随着CO_3^{2-}浓度的降低, $UO_2(CO_3)_3^{4-}$逐渐向$UO_2(CO_3)_2^{2-}$和UO_2CO_3(aq)转化; 当pM>3.2时, 所有CO_3^{2-}参与的铀酰配合物浓度都随pM的增大而降低, 此时$UO_2(OH)_2$(aq)成为溶液中的优势种态. 在整个扫描过程中, 随着pM的增大, UO_2^{2+}浓度逐渐降低, 因此它与Cl^-或SO_4^{2-}形成的配合物浓度也相应降低.

总体来看, 四种阴离子对塔木素地下水中铀的种态分布影响的大小顺序为: HCO_3^->F^->SO_4^{2-}>Cl^-.

除了四种阴离子外, 本文还研究了UO_2^{2+}浓度对塔木素地下水中铀的种态分布的影响, UO_2^{2+}浓度变化范围为10^{-2}~10^{-12} mol/L. 随着UO_2^{2+}浓度的增加, 它与Cl^-和SO_4^{2-}形成的配合物浓度都逐渐增加, 与CO_3^{2-}有关的种态浓度变化比较特殊, 相关计算结果如图5所示. pM<8.7时, 体系中出现了$CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$和$Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq)两种新的种态. 由于塔木素地下水中HCO_3^-浓度很低, 所以UO_2^{2+}更多地与一个CO_3^{2-}配位生成UO_2CO_3. $UO_2(CO_3)_3^{4-}$极易与一个或两个Ca^{2+}络合. pM<4.0时, 随着UO_2^{2+}浓度的增加, $CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$和$Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq)的浓度不断增加, 但由于CO_3^{2-}浓度有限, UO_2CO_3、$UO_2(CO_3)_3^{4-}$、$UO_2CO_3(OH)_3^-$浓度都开始减少. 值得注意的是, 在研究HCO_3^-浓度对塔木素地下水中铀的种态分布的影响时, HCO_3^-浓度增大到10^{-2} mol/L时体系中也未出现$CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$和$Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq), 可见UO_2^{2+}浓度的增加对这两个种态的生成具有极大的促进作用.

3.4 温度的影响

深度不同会导致地下水的温度发生变化, 本文采用单点扫描计算了5~80℃下塔木素地下水中铀的种态分布, 计算结果如图6所示.

由图6可以看出, 随着温度的升高, $UO_2(OH)_2$(aq)和$UO_2(OH)_3^-$会向UO_2OH^+转化, 为了从热力学角度分析原因, 我们从CHEMSPEC的数据库中获取了上述三个种态在25℃下的稳定常数, 列于表2中. $UO_2(OH)_3^-$、$UO_2(OH)_2$(aq)和UO_2OH^+的稳定常数依次增加, 所以$UO_2(OH)_3^-$和$UO_2(OH)_2$(aq)向UO_2OH^+的解离反应均为吸热反应, 因此温度的升高会促进解离反应的进行,

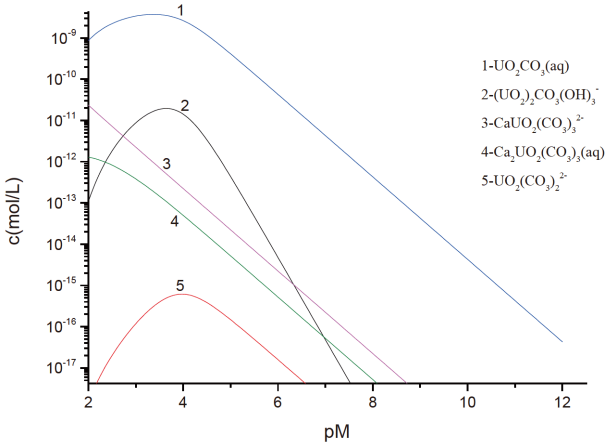


图 5 UO_2^{2+}浓度对塔木素地下水中铀种态分布的影响(网络版彩图)

Figure 5 Influence of the concentration of UO_2^{2+} on uranium speciation distribution in Tamusu groundwater (color online).

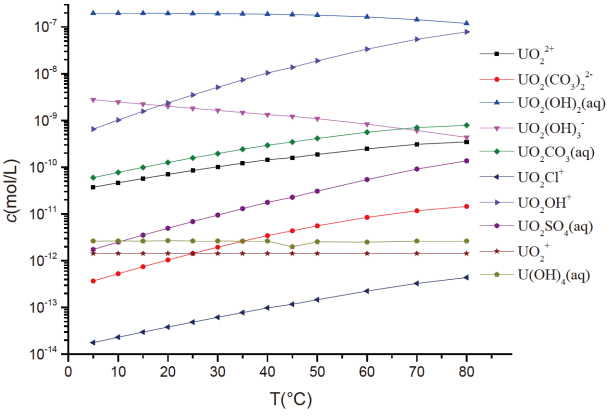


图 6 温度对塔木素地下水中铀种态分布的影响(网络版彩图)

Figure 6 Influence of temperature on uranium speciation distribution in Tamusu groundwater (color online).

表 2 UO_2^{2+}与OH^-形成络合物的热力学数据

Table 2 Thermodynamic data of complexes formed by UO_2^{2+} and OH^-

种态生成	log*k* (25℃)
$UO_2^{2+}+OH^-=UO_2OH^+$	−5.21
$UO_2^{2+}+2OH^-=UO_2(OH)_2$(aq)	−10.31
$UO_2^{2+}+3OH^-=UO_2(OH)_3^-$	−19.22

UO_2OH^+的浓度会明显提高, 游离的UO_2^{2+}浓度也增加, 溶液中其他铀酰的配合物浓度也相应提高.

4 结论

本文利用CHEMSPEC软件计算模拟了铀在塔木素地下水中的种态分布, 并讨论了pH、Eh、不同离子的浓度以及温度对铀种态分布的影响, 得到以下结论: (1) 铀在塔木素地下水体系(pH 7.17, Eh=237 mV)中的主要种态为$UO_2(OH)_2$(aq) (96.8%). 其种态分布随pH变化较大, 强酸性条件下, 铀主要以UO_2^{2+}(aq)形式存在; 在弱酸性、中性以及弱碱性条件下, 铀主要以$UO_2(OH)_2$(aq)形式存在; 而在强碱性条件下, 铀主要以$UO_2(OH)_3^-$的形式存在, 实际情况中可能会生成$CaUO_4$沉淀. 由于塔木素地下水中HCO_3^-含量极低, UO_2^{2+}与CO_3^{2-}形成的配合物极少. (2) 电位对塔木素地下水中铀的种态分布影响也较大. 当Eh<33 mV时, $U(OH)_4$(aq)为优势种态; 体系中六价铀酰离子配合物浓度随Eh升高迅速上升, 基本在Eh=30~40 mV之间达到稳定. (3) 不同离子浓度会影响铀的种态分布, 不同阴离子影响的大小顺序为HCO_3^->F^->SO_4^{2-}>Cl^-. UO_2^{2+}浓度的增加促进了$CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$和$Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq)的生成. (4) 温度升高使得塔木素地下水中UO_2OH^+的浓度显著提高.

参考文献

1 Wu R, Zhou W, Liu P, Hou S, Wang Y, Ma F, Pan J, Fan X, Xu G, Zheng H. *Uranium Geol*, 2008, 24: 24–31 (in Chinese) [吴仁贵, 周万蓬, 刘平华, 侯树仁, 王永君, 马福森, 潘家永, 范显华, 徐国庆, 郑华铃. 铀矿地质, 2008, 24: 24–31]

2 Wang F, Hou S, Li Y, Hao W, Men H. *Uranium Geol*, 2015, 31: 589–592 (in Chinese) [王凤岗, 侯树仁, 李有民, 郝伟林, 门宏. 铀矿地质, 2015, 31: 589–592]

3 Wang F, Hou S, Zhang L, Men H, Wang J. *Geol Rev*, 2018, 64: 633–646 (in Chinese) [王凤岗, 侯树仁, 张良, 门宏, 王俊林. 地质论评, 2018, 64: 633–646]

4 Wang Q. *World Nucl Geosci*, 2009, 26: 18–24 (in Chinese) [王强. 世界核地质科学, 2009, 26: 18–24]

5 Men H, Li Y, Hou SR, Cui W. *Western Res*, 2016, 4: 26–28 (in Chinese) [门宏, 李有民, 侯树仁, 崔伟. 西部资源, 2016, 4: 26–28]

6 Qiu J, Tang Q, Chen W, Chen M, Lu C. *Shandong Chem Ind*, 2016, 45: 130–132 (in Chinese) [邱杰, 唐清枫, 陈文凯, 陈敏, 陆春海. 山东化工, 2016, 45: 130–132]

7 Chen T, Wang X, Tian W, Sun M, Li C, Liu X, Wang L, Liu C. *Acta Phys-Chim Sin*, 2009, 26: 811–816 (in Chinese) [陈涛, 王祥云, 田文宇, 孙茂, 黎春, 刘晓宇, 王路化, 刘春立. 物理化学学报, 2009, 26: 811–816]

8 Sun M, Chen T, Tian W, Li C, Liu X, Wang L, Zheng Z, Zhu J, Wang X, Liu C. *J Nucl Radiochem*, 2011, 33: 71–76 (in Chinese) [孙茂, 陈涛, 田文宇, 黎春, 刘晓宇, 王路化, 郑仲, 朱建波, 王祥云, 刘春立. 核化学与放射化学, 2011, 33: 71–76]

9 Zhu J, Wang X, Chen T, Liu CL. *Sci Sin Chim*, 2012, 42: 856–864 (in Chinese) [朱建波, 王祥云, 陈涛, 刘春立. 中国科学: 化学, 2012, 42: 856–864]

10 Jiang M, Wang X, Liu C, Wang D, Liu F, Zhang H. *J Nucl Radiochem*, 2014, 36: 263–271 (in Chinese) [蒋美玲, 王祥云, 刘春立, 王东文, 刘福强, 张灏. 核化学与放射化学, 2014, 36: 263–271]

11 Jiang J, Wang X, Jiang M, Zhou W, Wang X, Du L, Liu C. *Sci Sin Chim*, 2016, 46: 816–822 (in Chinese) [蒋京呈, 王晓丽, 蒋美玲, 周万强, 王祥云, 杜良, 刘春立. 中国科学: 化学, 2016, 46: 816–822]

12 Lan T, Liu ZX, Li X, Liao J, Luo S, Yang Y, Chai Z, Liu N, Wang D. *Chin J Inorgan Chem*, 2015, 31: 1774–1784 (in Chinese) [兰图, 刘展翔, 李兴亮, 廖家莉, 罗顺忠, 杨远友, 柴之芳, 刘宁, 王东琪. 无机化学学报, 2015, 31: 1774–1784]

13 Zhou W, Jiang J, He J, Wang X, Du L, Wang X, Tan Z, Liu C. *Nucl Tech*, 2018, 41: 25–30 (in Chinese) [周万强, 蒋京呈, 何建刚, 王祥云, 杜良, 王晓丽, 谭昭怡, 刘春立. 核技术, 2018, 41: 25–30]

14 Tan H, Li Y. *J Southwest Univ Sci Technol (Nat Sci Ed)*, 2005, 1: 27–30+34 (in Chinese) [谭宏斌, 李玉香. 西南科技大学学报(自然科学版), 2005, 1: 27–30+34]

Speciation distribution of uranium in Tamusu groundwater calculated by CHEMSPEC

Xuewen Xu[1], Wanqiang Zhou[1], Liang Dong[2], Zhaoyi Tan[2], Xiangyun Wang[1], Chunli Liu[1*]

[1] *Beijing National Laboratory for Molecular Sciences; Fundamental Science Laboratory on Radiochemistry & Radiation Chemistry; College of Chemistry & Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871, China*
[2] *China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*
**Corresponding author (email: liucl@pku.edu.cn)*

Abstract: CHEMSPEC was used to study the speciation distribution of U in Tamusu groundwater and the effects of Eh, pH, different ions and concentrations and temperature. The calculation results indicate that uranium mainly exists as $UO_2(OH)_2$(aq) in Tamusu groundwater. Under strong acidic conditions, uranium mainly exists as UO_2^{2+}, while in weak acidic, neutral or weak alkaline conditions, the main species is $UO_2(OH)_2$(aq). When the solution is in strong alkaline conditions, most of uranium exists as $UO_2(OH)_3^-$, with the possible generation of $CaUO_4$. U(IV) is stable in the reduction condition, while U(VI) is stable in the oxidic condition. The concentration of different anions also has influence on the speciation distribution of uranium in the order of HCO_3^->F^->SO_4^{2-}>Cl^-. Increasing UO_2^{2+} concentration promotes the generation of $CaUO_2(CO_3)_3^{2-}$ and $Ca_2UO_2(CO_3)_3$(aq). As temperature increases from 5 to 80 degree centigrade, the concentration of UO_2OH^+ increases significantly.

Keywords: CHEMSPEC, uranium, Tamusu, speciation distribution, influencing factor

doi: 10.1360/SSC-2019-0006