

ДОСЛІДЖЕННЯ АДСОРБЦІЇ СТРОНЦЮ, ЦЕЗІЮ ТА УРАНІЛУ НА ПОВЕРХНІ СИЛКАТІВ ТА АЛЮМОСИЛКАТІВ

І. В. Стасюк, Т. С. Мисакович, Р. Я. Стеців, В. О. Краснов

Інститут фізики конденсованих систем НАН України, Львів

За допомогою квантово-хімічних розрахунків (метод *ab-initio*) досліджено адсорбцію уранілу на поверхні силкатів та алюмосилкатів. Виявлено, що врахування гідратної оболонки для уранілу приводить до суттєвого зменшення енергії реакції. Досліджено також адсорбцію цезію та стронцію на поверхні алюмосилкатів. Установлено місця локалізації радіонуклідів, отримано розподіл зарядів і відстаней між атомами адсорбату та сорбенту.

Вступ

Відомо, що силкати та алюмосилкати - це ефективні сорбенти радіоактивних іонів (зокрема, цезію, стронцію, уранілу). Саме вони й адсорбували найбільшу кількість радіонуклідів в об'єкті „Укриття”. Квантово-хімічні розрахунки допомагають глибше зрозуміти явища, що відбуваються при адсорбції, і визначити стан, в якому перебувають радіоактивні іони. Окремо слід зазначити, що розрахунки комплексів з уранілом є досить складними, зокрема постає необхідність урахування гідратної оболонки уранілу. У водних розчинах ураніл координується кількома молекулами води, що розташовані в екваторіальній площині, перпендикулярній до аксіальної осі O-U-O. Такий зв'язок не є сильним, однак п'ять чи шість таких слабких зв'язків еквівалентні одному сильному зв'язку, тому їх вплив необхідно брати до уваги ([1]).

Теоретичні дослідження різних комплексів з ураном інтенсивно проводяться останнім часом, хоча пряме порівняння розрахункових та експериментальних результатів є складним для розчинів (повністю врахувати розчинник неможливо у зв'язку з обмеженістю комп'ютерних ресурсів). Проведені розрахунки дають змогу врахувати хоча би вплив найближчого оточення на досліджуваний об'єкт. Як приклад можна навести роботи [1 - 5], де досліджувалися процеси гідратації та гідролізу уранілу за допомогою квантово-хімічних розрахунків та молекулярної динаміки.

У даній роботі за допомогою квантово-хімічних методів досліджується адсорбція радіонуклідів на поверхні силкатів та алюмосилкатів. Розрахунки проводилися за допомогою версії PC GAMESS [6] пакета квантово-хімічних розрахунків GAMESS (US) [7] (General Atomic and Molecular Structure System) на основі методу *ab-initio*. Було використано базис 6-31G для атомів кисню, водню, кремнію та базис LANL2DZ ECP для атомів урану, цезію, стронцію. При розрахунках використовувався RHF(restricted Hartree-Fock) метод, сумарний спин системи брався рівним нулю.

Адсорбція уранілу на поверхні силкату

В якості поверхні силкату можна брати різні комплекси за участю іонних груп SiO_2 . У багатьох поліморфах SiO_2 атоми кремнію оточені тетраедром з атомів кисню. Кут O-Si-O близький до ідеального кута зв'язку в тетраедрі $109,28^\circ$. Кожен атом кисню зв'язаний із двома атомами кремнію і зв'язує тетраедри між собою. На SiO_2 сідає водень, тому в якості поверхні SiO_2 братимемо комплекс $\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8$.

На рис. 1 зображено комплекс $\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8$. Там же наведено заряди та відстані в комплексі $\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8$, отримані в результаті оптимізації геометрії методом *ab-initio*. До двох крайніх атомів кремнію було додано по три атоми водню, щоб імітувати поверхню; при розрахунках адсорбції ці атоми водню були зафіксовані. Усі довжини виміряні в ангстремах Å, кути – у градусах °, заряди – по відношенню до модуля заряду електрона $|e|$, величина зв'язку – у

відносних одиницях (можна порівнювати з величиною зв'язку O-H ~ 0,79 у молекулі води H₂O).

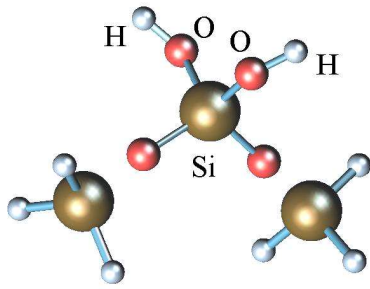


Рис. 1. Модельний кластер Si₃O₄H₈.

Характеристика комплексу

$D(\text{Si-O} _{\text{OH}}) = 1.68$	$Q(\text{H}) = 0.54$
$D(\text{O-H}) = 0.94$	$Q(\text{O} _{\text{OH}}) = -0.98$
$\angle \text{O} _{\text{OH}}\text{-Si-O} _{\text{OH}} = 110.6^\circ$	$Q(\text{Si}) = 2.21$
	зв'язок O-Si ~ 0.74
	зв'язок O-H ~ 0.75

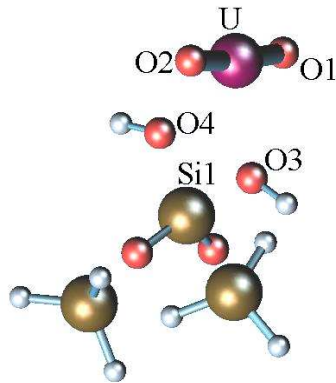


Рис. 2. Комплекс Si₃O₄H₈ UO₂, координація уранілу 2

Характеристика комплексу

$D(\text{U-O1,2}) = 1.69$	$Q(\text{U}) = 2.217$
$D(\text{U-O3,4}) = 2.39$	$Q(\text{O1,2}) = -0.25$
$D(\text{U-Si1}) = 3.38$	$Q(\text{O3,4}) = -1.11$
$\angle \text{O3-Si1-O4} = 84.9^\circ$	$Q(\text{H} _{\text{O3,4}}) = 0.54$
$D(\text{Si1-O3,4}) = 1.77$	$Q(\text{Si1}) = 2.29$
$D(\text{O3,4-H}) = 0.96$	зв'язок Si1-O3,4 ~ 0.44
$\angle \text{O1-U-O2} = 174.1^\circ$	зв'язок H-O3,4 ~ 0.69
	зв'язок U-O3,4 ~ 0.24
	зв'язок U-O1,2 ~ 2.13

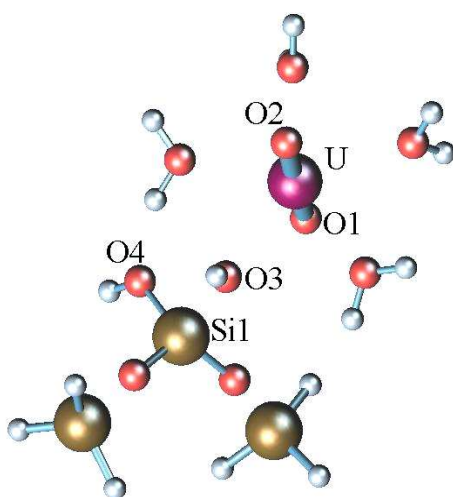


Рис. 3. Комплекс Si₃O₄H₈ UO₂ 4H₂O, координація уранілу 5.

Характеристика комплексу

$D(\text{U-O1,2}) = 1.72$	$Q(\text{U}) = 2.34$
$D(\text{U-O} _{\text{H}_2\text{O}}) = 2.43\text{-}2.51$	$Q(\text{O1,2}) = -0.40$
$\angle \text{O1-U-O2} = 178.0^\circ$	$Q(\text{O3}) = -1.12$
$D(\text{U-O3}) = 2.48$	$Q(\text{O4}) = -1.05$
$D(\text{U-O4}) = 3.86$	$Q(\text{H} _{\text{O4}}) = 0.5$
$D(\text{U-Si1}) = 3.85$	$Q(\text{H} _{\text{O3}}) = 0.51$
$\angle \text{O4-Si1-O3} = 97.6^\circ$	$Q(\text{Si1}) = 2.28$
$D(\text{Si1-O4}) = 1.7$	зв'язок Si1-O3,4 ~ 0.47, 0.63
$D(\text{Si1-O3}) = 1.76$	зв'язок H-O3,4 ~ 0.7, 0.72
$D(\text{O4-H}) = 0.95$	зв'язок U-O3 ~ 0.16
$D(\text{O3-H}) = 0.96$	зв'язок U-O4 < 0.05
	зв'язок U-O1,2 ~ 2.01

При адсорбції уранілу на Si₃O₄H₈ (без урахування присутності молекул води) ураніл розташовується таким чином, що гідроксильні групи поверхні знаходяться в екваторіальній площині, тоді координація уранілу рівна 2 (рис. 2). При адсорбції ураніл стає дещо вигнутим,

відстань між атомами урану та кисню в уранілі збільшується. Заряд на урані майже не змінюється, а заряд на киснях уранілу стає більш від'ємним, тобто заряд уранілу зменшується (у вільного уранілу $Q(\text{UO}_2) = 2$, адсорбований $Q(\text{UO}_2) \sim 1,7$). При адсорбції поверхневі гідроксогрупи O3,4-H підходять ближче до уранілу (однак поверхня не руйнується, видовження зв'язків $\sim 0,1 \text{ \AA}$), зменшується величина зв'язку між Si1 і O3,O4 та між U і O1,O2.

$$\text{Енергія реакції } dE = E(\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8\text{UO}_2) - E(\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8) - E(\text{UO}_2) = -6,28 \text{ eV.}$$

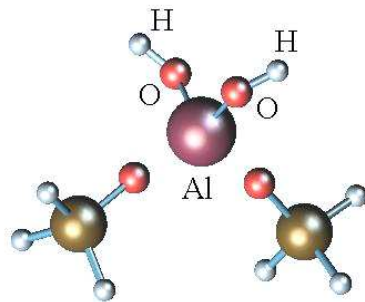
$$\text{Енергія реакції } dE = E(\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8\text{UO}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}) - E(\text{Si}_3\text{O}_4\text{H}_8) - E(\text{UO}_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}) + E(\text{H}_2\text{O}) = -1,2 \text{ eV.}$$

Урахування гідратної оболонки (рис. 3) суттєво вплинуло на величину енергії реакції (без врахування гідратної оболонки $dE = -6,28 \text{ eV}$). Крім цього, гідратна оболонка до деякої міри вплинула на розподіл зарядів та відстаней: заряд на урані збільшився, на киснях уранілу O1,2 заряд збільшився за модулем; відстань від урану до поверхневого кисню O3 дещо збільшилася, послабився зв'язок між ураном та поверхневими киснями.

Адсорбція уранілу на поверхні алюмосилікату

Алюмосилікати – це кристали, де в матриці силікату деякі атоми кремнію заміщуються алюмінієм Al^{3+} , який подібно до Si^{4+} знаходиться в тетраедричному оточенні іонів кисню. Поверхня алюмосилікату моделювалася комплексом $\text{AlSi}_2\text{O}_4\text{H}_8$ (як і у випадку поверхні SiO_2 , ми враховуємо, що поверхня насичена водневими зв'язками). На рис. 4 наведено заряди та відстані у комплексі ($\text{AlSi}_2\text{O}_4\text{H}_8$). Геометрична оптимізація виконана методом *ab-initio*.

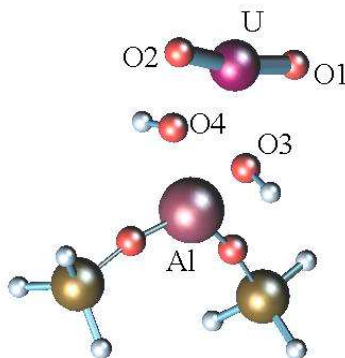
Характеристика комплексу



$D(\text{Al}-\text{O}_{ \text{OH}}) = 1.78$	$Q(\text{H}) = 0.38$
$D(\text{O}-\text{H}) = 0.94$	$Q(\text{O}_{ \text{OH}}) = -1.07$
$\angle \text{O}_{ \text{OH}}-\text{Al}-\text{O}_{ \text{OH}} = 111.4^\circ$	$Q(\text{Al}) = 1.93$
	зв'язок O-Al ~ 0.55

Рис. 4. Модельний кластер $\text{AlSi}_2\text{O}_4\text{H}_8$.

Характеристика комплексу



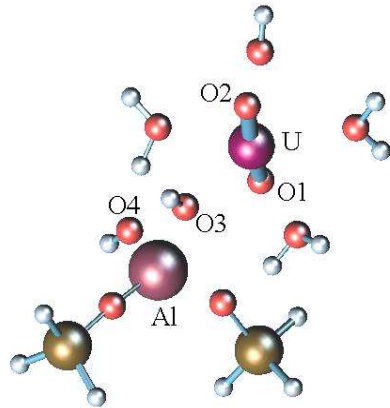
$D(\text{U}-\text{O}_{1,2}) = 1.71$	$Q(\text{U}) = 2.23$
$D(\text{U}-\text{O}_{3,4}) = 2.27$	$Q(\text{O}_{1,2}) = -0.32$
$D(\text{U}-\text{Al}) = 3.32$	$Q(\text{O}_{3,4}) = -1.14$
$\angle \text{O}_3-\text{Al}-\text{O}_4 = 82.9^\circ$	$Q(\text{H}_{ \text{O}_{3,4}}) = 0.5$
$D(\text{Al}-\text{O}_{3,4}) = 1.9$	$Q(\text{Al}) = 2.02$
$D(\text{O}_{3,4}-\text{H}) = 0.95$	зв'язок Al-O3,4 ~ 0.25
$\angle \text{O}_1-\text{U}-\text{O}_2 = 169.7^\circ$	зв'язок H-O3,4 ~ 0.72
	зв'язок U-O3,4 ~ 0.35
	зв'язок U-O1,2 ~ 2.13

Рис. 5. Комплекс $\text{AlSi}_2\text{O}_4\text{H}_8 \text{UO}_2$, координація уранілу 2.

При адсорбції уранілу на $\text{AlSi}_2\text{O}_4\text{H}_8$ (без урахування присутності молекул води) уранілу розташовується таким чином, що гідроксильні групи поверхні знаходяться в екваторіальній

площині, тоді координація уранілу рівна 2 (рис. 5). При адсорбції ураніл стає дещо вигнутим ($\angle O1-U-O2 \sim 170^\circ$), відстань між атомами урану та кисню в уранілі збільшується. Заряд на урані майже не змінюється, а заряд на киснях уранілу стає більш від'ємним, тобто заряд уранілу зменшується (у вільного уранілу $Q(UO_2) = 2$, адсорбований $Q(UO_2) \sim 1,6$). При адсорбції поверхневі гідроксогрупи O3,4-H підходять ближче до уранілу, зменшується величина зв'язку між Al і O3,O4 та U і O1,O2.

Енергія реакції $dE = E(AlSi_2O_4H_8UO_2) - E(AlSi_2O_4H_8) - E(UO_2) = -0,56$ хартрі (-15,3 еВ).



Характеристика комплексу	
	$Q(U) = 2.34$
$D(U-O1,2) = 1.725, 1.736$	$Q(O1,2) = -0.42, -0.47$
$D(U-O _{H_2O}) = 2.45-2.52$	$Q(O3) = -1.17$
$\angle O1-U-O2 = 178.0^\circ$	$Q(O4) = -1.12$
$D(U-O3) = 2.35$	$Q(H _{O4}) = 0.45$
$D(U-O4) = 3.71$	$Q(H _{O3}) = 0.49$
$D(U-Al) = 3.65$	$Q(Al) = 2.03$
$\angle O4-Al-O3 = 95.1^\circ$	зв'язок Al-O3,4 $\sim 0.27,$
$D(Al-O4) = 1.79$	0.43
$D(Al-O3) = 1.84$	зв'язок H-O3,4 $\sim 0.73,$
$D(O3,4-H) = 0.95$	0.77
	зв'язок U-O3 ~ 0.27
	зв'язок U-O1,2 ~ 2

Рис. 6. Комплекс $AlSi_2O_4H_8UO_2 \cdot 4H_2O$, координація уранілу 5.

Урахування гідратної оболонки зменшило величину енергії реакції.

$dE = E(AlSi_2O_4H_8UO_2 \cdot 4H_2O) - E(AlSi_2O_4H_8) - E(UO_2 \cdot 5H_2O) + E(H_2O) = -0,316$ хартрі (-8,6 еВ).

Крім цього, урахування гідратної оболонки до деякої міри вплинуло на розподіл зарядів та відстаней (рис. 6): заряд на урані збільшився, на киснях уранілу O1,2 заряд збільшився за модулем; відстань від урану до поверхневого кисню O3 дещо збільшилася, послабився зв'язок між ураном та поверхневими киснями.

Енергія зв'язку між уранілом та алюмосилікатом більша, ніж між уранілом та поверхнею SiO_2 . Відмінність між згаданими поверхнями пов'язана з присутністю тривалентного алюмінію на поверхні алюмосилікату, у той час як на поверхні SiO_2 присутній чотирихвалентний кремній, це приводить до більш сильного іонного зв'язку між поверхнею алюмосилікату та уранілом порівняно зі зв'язком уранілу та поверхнею SiO_2 .

Адсорбція Sr^{2+} та Cs^+ на поверхні алюмосилікату

У даних дослідженнях для моделювання алюмосилікату використовувався кластер, де за основу брався кристалічний α -кварц. Центральний атом кремнію в цьому початковому кластері замінювався на атом алюмінію [8]. Для компенсації вільних зв'язків киснів до них в оптимальному положенні додавались атоми водню. Така процедура описана раніше [9] і використовується для заповнення зайвих валентностей. Розглядалися дві можливі побудови кластера – з однією зовнішньою групою OH та трьома об'ємними зв'язками алюмінію, а також випадок, де є дві групи OH та два об'ємні зв'язки. Хімічні формули таких утворень можна записати як $AlSi_3O_3(OH)_{10}$ у першому випадку та $AlSi_2O_2(OH)_8$ – у другому. Для квантово-хімічних розрахунків адсорбції Cs^+ , Sr^{2+} достатньо використовувати MINI базис. Загальний спін системи брався рівним нулю.

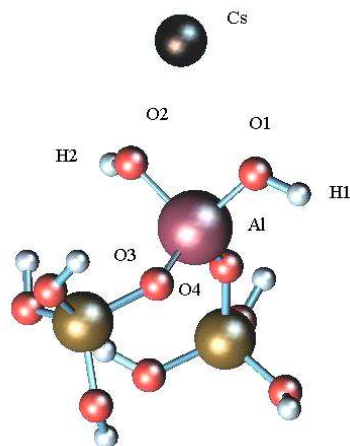


Рис. 7. Іон Cs^+ , зв'язаний із комплексом $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$.

Характеристика комплексу

$D(\text{Al-O1})=1.769$	$Q(\text{H1})=0.22$
$D(\text{Al-O2})=1.786$	$Q(\text{O1})=-0.80$
$D(\text{O1-Cs})=2.889$	$Q(\text{H2})=0.20$
$D(\text{O2-Cs})=2.919$	$Q(\text{O2})=-0.81$
$\angle\text{O1-Al-O2}=100.43^\circ$	$Q(\text{Al})=1.38$
	$Q(\text{Cs})=0.96$
	сила зв'язку (Al-O1) ~ 0.62
	сила зв'язку(Al-O2) ~ 0.58

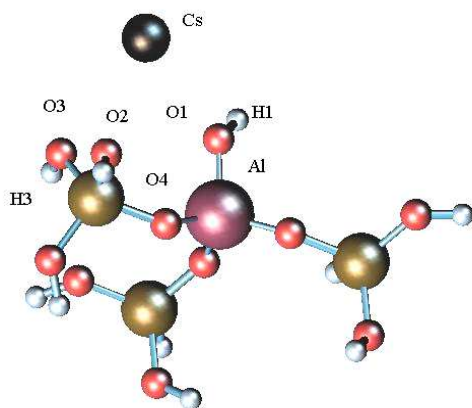


Рис. 8. Іон Cs^+ , зв'язаний із комплексом $\text{AlSi}_3\text{O}_3(\text{OH})_{10}$.

Характеристика комплексу

$D(\text{Cs-O1})=3.204$	$Q(\text{O1})=-0.84$	$Q(\text{H1})=0.23$
$D(\text{Cs-O2})=3.062$	$Q(\text{O2})=-0.80$	$Q(\text{H2})=0.31$
$D(\text{Cs-O3})=2.930$	$Q(\text{O3})=-0.80$	$Q(\text{H3})=0.30$
	$Q(\text{Cs})=0.97$	$Q(\text{Al})=1.48$
		сила зв'язку(O1-H1) ~ 0.94
		сила зв'язку(Al-O1) ~ 0.60
		сила зв'язку(Al-O4) ~ 0.59

При взаємодії іонів цезію та стронцію з модельними кластерами $\text{AlSi}_3\text{O}_3(\text{OH})_{10}$ та $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$ у системі відбуваються такі зміни геометрії та зарядів (рис. 7,8,9,10):

незначне видовження зовнішніх зв'язків між алюмінієм та приповерхневими атомами кисню;

суттєве звуження кута $\angle\text{O1-Al-O2}$ (у випадку $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$);

перерозподіл заряду взаємодіючих з адсорбатом зв'язків O-H (збільшення заряду за абсолютною величиною на кисні та водні);

послаблення зв'язків між атомом алюмінію та близьких до адсорбату атомами кисню.

Як показали розрахунки, стронцію та цезію вигідно зв'язуватись алюмосилкатами. Для випадку взаємодії Sr^{2+} з $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$ енергія реакції (виграш в енергії) dE становить $-0,2987$ хартрі = $-8,12$ еВ. Енергія реакції визначалася як різниця між енергіями системи, що являє собою радіонуклід, зв'язаний із кластером, і системи, де радіонуклід і кластер розведені на велику відстань ($R \rightarrow \infty$).

Для випадку взаємодії Sr^{2+} з $\text{AlSi}_3\text{O}_3(\text{OH})_{10}$ енергія реакції $dE = -0,2239$ хартрі = $-6,09$ еВ. У цьому випадку, як видно з рис. 10, стронцій в оптимальному положенні зв'язаний із трьома атомами кисню, один з яких належить алюмінію, а два інші зв'язані з атомом кремнію (при чому зв'язок з атомом кисню, що належить алюмінію, утричі сильніший). При адсорбції Cs^+ на $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$ виграш в енергії $dE = -3,23$ еВ. Зміна

конфігурації (відстані та кути між атомами, що беруть участь у реакції) у випадку адсорбції цезію не такі великі, як для випадку стронцію. Те саме можна сказати й про зміну розподілу заряду в системі.

Для випадку взаємодії Cs^+ з $\text{AlSi}_3\text{O}_3(\text{OH})_{10}$ енергія реакції $dE = -3,64$ еВ. Оптимальна позиція адсорбованого атома цезію, як і для стронцію, є між трьома атомами кисню. У цей же час сили зв'язків значно менші, ніж для випадку стронцію.

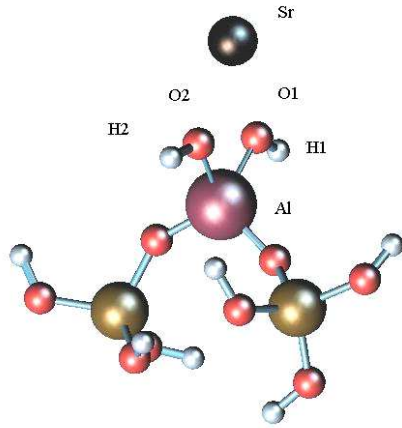


Рис. 9. Іон Sr^{2+} , зв'язаний із комплексом $\text{AlSi}_2\text{O}_2(\text{OH})_8$.

Характеристика комплексу

$D(\text{Al}-\text{O}1)=1.817$	$Q(\text{H}1)=0.25$	$Q(\text{O}1)=-0.85$
$D(\text{Al}-\text{O}2)=1.811$	$Q(\text{H}2)=0.26$	$Q(\text{O}2)=-0.85$
$D(\text{O}1-\text{Sr})=2.377$	$Q(\text{Al})=1.36$	$Q(\text{Sr})=1.88$
$D(\text{O}2-\text{Sr})=2.354$	сила зв'язку($\text{O}1-\text{H}1$) ~ 0.93	
$\angle \text{O}1-\text{Al}-\text{O}2=89.73^\circ$	сила зв'язку($\text{O}2-\text{H}2$) ~ 0.93	
	сила зв'язку($\text{O}1-\text{Sr}$) ~ 0.11	
	сила зв'язку($\text{Al}-\text{O}1$) ~ 0.53	
	сила зв'язку($\text{Al}-\text{O}2$) ~ 0.55	

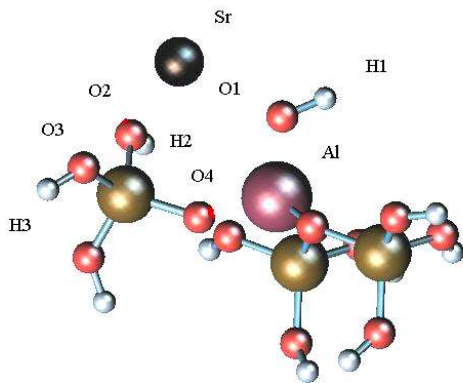


Рис. 10. Іон Sr^{2+} , зв'язаний із комплексом $\text{AlSi}_3\text{O}_3(\text{OH})_{10}$.

Характеристика комплексу

$D(\text{Sr}-\text{O}1)=2.373$	$Q(\text{O}1)=-0.85$	$Q(\text{H}1)=0.25$
$D(\text{Sr}-\text{O}2)=2.590$	$Q(\text{O}2)=-0.84$	$Q(\text{H}2)=0.35$
$D(\text{Sr}-\text{O}3)=2.913$	$Q(\text{O}3)=-0.82$	$Q(\text{H}3)=0.34$
$D(\text{Al}-\text{O}1)=1.831$	$Q(\text{Sr})=1.87$	$Q(\text{Al})=1.44$
	сила зв'язку($\text{O}1-\text{H}1$) ~ 0.93	
	сила зв'язку($\text{Al}-\text{O}1$) ~ 0.5	
	сила зв'язку($\text{Al}-\text{O}4$) ~ 0.58	
	сила зв'язку($\text{Sr}-\text{O}1$) ~ 0.13	

Висновки

У даній роботі на основі квантово-хімічних розрахунків (метод *ab-initio*) було досліджено процес адсорбції уранілу з гідратною оболонкою на поверхні частинок SiO_2 та на поверхні частинок алюмосилікатів. Установлено, що заряд адсорбованого на поверхні уранілу додатний. Виявлено, що врахування гідратної оболонки впливає на величину енергії реакції (без урахування гідратної оболонки $dE \sim -6,3$ еВ, $-15,3$ еВ, з урахуванням гідратної оболонки $dE \sim -1,2$ еВ, $-8,6$ еВ для поверхні силікатів та алюмосилікатів відповідно), вплив на розподіл зарядів та відстаней не дуже суттєвий. Показано, що іони UO_2^{2+} , Cs^+ , Sr^{2+} (див. також [10]) краще адсорбуються на поверхні алюмосилікатів, ніж на поверхні силікатів (енергія зв'язку для алюмосилікатів більша).

Виявлено, що зміна кількості приповерхневих гідроксогруп, утворених унаслідок гідролізу води, приводить до зміни енергії зв'язку, яка суттєво відрізняється для випадків цезію та стронцію на поверхні алюмосилікату.

Таким чином, за допомогою квантово-хімічних розрахунків показано, що поверхні силікатів та алюмосилікатів адсорбують UO_2^{2+} , Cs^+ , Sr^{2+} . Отримана детальна інформація про розподіл зарядів та відстаней при адсорбції, а також сили зв'язку між атомами може бути використана при дослідженні процесів поверхневої дифузії, а також при розробці методів утилізації матеріалів, забруднених радіоактивними іонами.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Tsushima S., Suzuki A.* Ab initio effective core potential study of equatorially coordinated uranyl species: effect of hydration to the calculated properties // *J. Mol. Structure (Theochem)*. - 1999. - Vol. 487. - P. 33 - 38.
2. *Tsushima S., Suzuki A.* Hydration numbers of pentavalent and hexavalent uranyl, neptunyl and plutonyl // *J. Mol. Structure (Theochem)*. - 2000. - Vol. 529. - P. 21 - 25.
3. *Мисакович Т.С.* Гідроліз за участю іонів уранілу у водних розчинах // *Проблеми Чорнобиля*. - 2002. - Вип. 11. - С. 111 - 116.
4. *Druchok M., Bryk T., Holovko M.* A molecular dynamics study of uranyl hydration // *J. Mol. Liq.* - 2005. - Vol. 120, No. 1-3. - P. 11 - 14.
5. *Patsahan T., Holovko M.* Molecular dynamics study of aqueous uranyl in hydrophilic mesoporous confinement: The case of slit-like pore in amorphous silica. - Lviv, 2006. - 12 p. - (Preprint of the Institute for Condensed Matter Physics of NAS of Ukraine; ICMP-06-23E).
6. *Granovsky A.A.* PC GAMESS. Див на: <http://classic.chem.msu.su/gran/games/index.html>
7. *Schmidt M.W., Baldrige K.K., Boatz J.A. et al.* The General Atomic and Molecular Electronic Structure System // *J. Comput. Chem.* - 1993. - Vol. 14, No. 11. - P. 1347 - 1363.
8. *Zhou D., Ma D., Liu X., Bao X.* Study with density functional theory method on methane dehydroaromatization over Mo/HZSM-5 catalysts I: Optimization of active Mo species bonded to ZSM-5 zeolite // *J. Chem. Phys.* - 2001. - Vol. 114. - P. 9125 - 9129.
9. *Чуйко А.А., Горлов Ю.И.* Химия поверхности кремнезема. - К.: Наук. думка, 1992.
10. *Krip I.M., Shymchuk T.V., Stasyuk I.V., Mysakovich T.S.* Adsorption of uranyl, cesium, strontium on SiO_2 surface. - Lviv, 2004. - 16 p. - (Preprint of the Institute for Condensed Matter Physics of NAS of Ukraine; ICMP-04-14E).

Надійшла до редакції 15.06.07

13 ИССЛЕДОВАНИЕ АДСОРБЦИИ СТРОНЦИЯ, ЦЕЗИЯ И УРАНИЛА НА ПОВЕРХНОСТИ СИЛИКАТОВ И АЛЮМОСИЛИКАТОВ**И. В. Стасюк, Т. С. Мысакович, Р. Я. Стецив, В. О. Краснов**

На основе квантово-химических расчетов (метод *ab-initio*) исследована адсорбция уранила на поверхности силикатов и алюмосиликатов. Выявлено, что при учете гидратной оболочки для уранила существенно уменьшается энергия реакции. Исследована также адсорбция стронция и цезия на поверхности алюмосиликатов. Установлены места локализации радионуклидов, получено распределение зарядов и расстояний между атомами адсорбата и сорбента.

13 INVESTIGATION OF ADSORPTION OF STRONTIUM, CESIUM AND URANYL ON SILICATE AND ALUMINOSILICATE SURFACES**I. V. Stasyuk, T. S. Mysakovych, R. Ya. Stetsiv, V. O. Krasnov**

Using quantum-chemical calculations (*ab-initio* method) the adsorption of uranyl on silicate and aluminosilicate surfaces was investigated. It is shown, that presence of a hydrated shell of uranyl essentially diminishes quantity of energy of reaction. The adsorption of cesium and strontium on aluminosilicate surface also was investigated. Places of localization of radionuclides and information about charge and distance distribution between atoms are obtained.