



FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜLERİ
ORTAK YÜKSEK LİSANS PROGRAMI



YÜKSEK LİSANS TEZİ

Emin SERİNER

RADYOAKTİF ATIK DEPOLAMA
SİSTEMLERİNDE KİLLERİN
KULLANIMI

FİZİK ANABİLİM DALI

OSMANIYE – 2016

**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ ORTAK
YÜKSEK LİSANS PROGRAMI**

**RADYOAKTİF ATIK DEPOLAMA SİSTEMLERİNDE
KİLLERİN KULLANIMI**

Emin SERİNER

**FİZİK
ANABİLİM DALI**

**OSMANİYE
HAZİRAN-2016**

ÖZET

RADYOAKTİF ATIK DEPOLAMA SİSTEMLERİNDE KİLLERİN KULLANIMI

Emin SERİNER
Yüksek Lisans, Fizik Anabilim Dalı
Danışman: Yrd. Doç. Dr. F. Aysun UĞUR

Haziran 2016, 60 sayfa

Bu çalışmada; bentonit örnekleri üzerinde sezyumun adsorpsiyon karakteristikleri Cs-137 isotopu kullanılarak radyoizotop izleme tekniği ile çalışıldı. Adsorbant miktarının etkisi, başlangıç konsantrasyonu, partikül boyutu, etkileşme zamanı ve bentonitin yapısı araştırıldı. Bu araştırmaların sonuçlarına göre bentonit radyoaktif Cs-137 için iyi bir adsorpsiyon kapasitesine sahiptir.

Anahtar Kelimeler: Bentonit, Adsorpsiyon, Sezyum-137

ABSTRACT

USE OF CLAYS IN RADIOACTIVE WASTE STORAGE SYSTEMS

Emin SERİNER
M.Sc., Department of Physics
Supervisor: Assist.Prof.Dr F.Aysun UĞUR

June 2016, 60 pages

In this work, the adsorption characteristics of cesium on the bentonite samples were studied by “radiotracer technique” using Cs-137 isotope. The effect of the amount of adsorbent, initial solution concentration, particle size, contact time and structure of the bentonite was investigated. According to the results of this investigation bentonite had good adsorption capacity for radioactive Cs-137.

Key Words: Bentonite, Adsorption, Cesium-137

TEŐEKKÜR

Yüksek Lisans tez konumun belirlenerek tez çalışmamın yürütölmesini üstlenen, çalışmalarım süresince değerli bilgi ve tecrübeleriyle katkılarını esirgemeyen danışman hocam Sayın Yrd Doç. Dr. F. Aysun UĞUR'a teşekkürlerimi sunarım.

Ayrıca çalışmalarım süresince beni destekleyen kıymetli aileme ve çalışmalarımda bana yardımcı olan Elif GÖREN' e teşekkürlerimi sunarım.



İÇİNDEKİLER

TEZ ONAYI	
TEZ BİLDİRİMİ	
ÖZET.....	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
İÇİNDEKİLER	iv
ÇİZELGELER DİZİNİ	vi
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	vii
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	ix
1. GİRİŞ	1
1.1 Radyoaktif Atıklar.....	4
1.1.1 Radyoaktif Atıkların Sınıflandırılması	7
1.1.2 Maddenin Üç Haline Göre Sınıflandırma	8
1.1.2.1 Gaz Atıklar	8
1.1.2.2 Sıvı Atıklar	9
1.1.2.3 Katı Atıklar.....	11
1.2 Nükleer Enerji.....	12
1.3 Nükleer Yakıt.....	15
1.4 Normal Şartlar Altında Çevreye Salınanlar.....	17
1.5 Kullanılmış Nükleer Yakıt (KNY).....	17
1.6 KNY'nın Radyoaktivitesi	18
1.7 Radyoaktif Atık Yöntemi.....	20
1.7.1 Düşük ve Orta Düzeyli Atıkların Depolanması	22
1.7.2 Yüksek Düzey Atık Yöntemi.....	22
1.8 Radyoaktivite Nedir?	23
1.8.1 Alfa Bozunması	26
1.8.2 Beta Bozunması	27
1.8.3 Gama Bozunumu	28
1.9 Yarı Ömür	29
1.10 Ortalama Ömür	30
1.11 Radyasyonun Tanımı ve Türleri.....	31
1.12 Radyasyonun Biyolojik Etkileri	31
1.13 Radyasyon Birimleri	33
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	35

3. MALZEME VE YÖNTEM	38
3.1 Malzeme.....	38
3.1.1 Kullanılan Absorban (Kil)	38
3.1.2 Kullanılan Radyoaktif Madde ve Tuz.....	39
3.1.3 Ölçüm Cihazı (Gama Spektrometresi).....	40
3.1.4 Yüksek Saflıkta Germanyum (HPGe) Yarı İletken Dedektörleri	42
3.1.5 Gama Spektrometrik Analizler	43
3.1.6 Pik Alan Hesabı	44
3.2 Metod	46
3.2.1 Absorpsiyon.....	46
3.2.2 Örneklerin Toplanması ve Hazırlanması	46
3.2.3 Radyoaktif Solüsyonun Hazırlanması.....	47
3.3 Deneylerin Yapılışı	48
3.4 Hesaplamalar	49
3.4.1 Absorpsiyon.....	49
3.4.2 Dağılım Katsayısı	49
3.4.3 Absorplanan Çözelti Miktarı (X_m).....	50
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	51
4.1 Absorpsiyonun Dengeye Ulaşma Zamanının Bulunması.....	51
4.1.1 Katı Sıvı Oranı Tayini	52
4.1.2 Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi.....	52
4.1.3 Başlangıç Konsantrasyonu İle % Absorpsiyon Değerinin Değişmesi	55
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	57
KAYNAKLAR	58
ÖZGEÇMİŞ	60

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 1.1. Gaz Atıkların Sınıflaması	9
Çizelge 1.2. Sıvı Atıkları Sınıflandırma	10
Çizelge 1.3. de IAEA'nın Ön Gördüğü Atıkların Yüzeyinde Bulunan Radyasyon Dozuna Göre Yapılmış Olan Sınıflama Gösterilmiştir	11
Çizelge 1.4. Aktinitlerin Radyoaktivitesi.....	19
Çizelge 1.5. Filyon Ürünlerinin Radyoaktivitesi.....	19
Çizelge 1.6. Atık Yönteminde Yeraltına Gömülme Süreci	21
Çizelge 1.7. Radyasyondan Kaynaklı Kalıtımsal Bozukluklar Ve Kanslerle İlgili Risk Faktörleri.....	33
Çizelge 1.8. Çalışan Ve Halk İçin Radyasyon Doz Hızları	33
Çizelge 3.1. Yüksek saflıkta germanyum dedektörünün özellikleri.....	43
Çizelge 3.2. Bentonite Ait Kimyasal İçerik	47

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1. Kullanılmış 1 Ton PWR Yakıtın Yeniden İşlenmesinden Elde Edilen Yüksek Seviyeli Atığın Radyoaktivitesinin Düşüş Grafiği.....	5
Şekil 1.2. Çekirdek Tepkimeleri	12
Şekil 1.3. Nükleer Reaktörde Enerji Üretimi	13
Şekil 1.4. Zincirleme Çekirdek Tepkimesi	13
Şekil 1.5. Nükleer Yakıt Tabletleri ve Yakıt Demeti.....	15
Şekil 1.6. Nükleer Güç Santrali (Basınçlı-hafif sulu reaktör).....	17
Şekil 1.7. Kararsız Durumdaki Radyoaktif Çekirdekten Kararlı Bir Çekirdek Oluşumu	23
Şekil 1.8. U-235 Bozunum Serisi.....	24
Şekil 1.9. Uranyum-238 Radyoaktif Serisi	24
Şekil 1.10. ²³² Th'in Bozunma Ürünleri Şeması	25
Şekil 1.11. Fırlatılan İki Nötron Ve İki Protonlu Alfa Parçacığı	26
Şekil 1.12. Beta Bozunumu.....	27
Şekil 1.13. Gama Bozunumu	28
Şekil 1.14. Yarılanma Ömrü	29
Şekil 1.15. Radyasyon Çeşitleri	30
Şekil 3.1. Bentonit Kilinin Yapısı	38
Şekil 3.2. Sezyum-137	39
Şekil 3.3. Sezyum-137'nin Bozunma Şeması	39
Şekil 3.4. Yüksek saflıktaki germanyum dedektörlü gama spektrometresi.....	41
Şekil 3.5. Basit gama spektrometre sistemi	41
Şekil 3.6. Pik alan hesabı	43
Şekil 3.7. Adsorpsiyon ve Absorpsiyonun şematik gösterimi	45
Şekil 3.8. Hazırlanmış Bentonit Numunesi.....	46
Şekil 3.9. Bentonite Ait XRD Spektrumu	47
Şekil 4.1. Dengeye Ulaşma Zamanı Grafiği	50
Şekil 4.2. V/m in Tayini	51
Şekil 4.3. Başlangıç Konsantrasyonu İle Kd Değerinin Değişmesi(120µm).....	52
Şekil 4.4. Başlangıç Konsantrasyonu İle Kd Değerinin Değişmesi(100µm).....	52

Şekil 4.5. Başlangıç Konsantrasyonu İle Kd Değerinin Değişmesi(90µm).....	53
Şekil 4.6. Başlangıç Konsantrasyonu İle Kd Değerinin Değişmesi(80µm).....	53
Şekil 4.7. Başlangıç Konsantrasyonu İle Kd Değerinin Değişmesi(63µm).....	54
Şekil 4.8. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (120µm).....	55
Şekil 4.9. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (100µm).....	55
Şekil 4.10. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (90µm).....	56
Şekil 4.11. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (80µm).....	56
Şekil 4.12. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (63µm).....	56

SİMGELER VE KISALTMALAR

A	Aktivite
A_s	Standardın Aktivitesi
A_x	Örneğin Aktivitesi
B	Doğal Fon
Bq	Becquerel
C	İntegral Sabiti
C_K	K Derişimi (Özgül Aktivite)
C_{Th}	Th Derişimi (Özgül Aktivite)
C_U	U Derişimi (Özgül Aktivite)
D	Radyasyon Dozu
dt	Küçük Zaman Aralığı
E	Elektrik Alan
E_i	İlk Enerji
E_f	Son Enerji
E_γ	Gama Enerjisi
f_γ	Gama Yayınlanma Olasılığı
G	İlgilenilen Bölgedeki Pikin Toplam Alanı, Sayım Sayısı
g	Gram
h	Planck Sabiti, Saat
K	Potasyum
keV	Kiloelektronvolt
kg	Kilogram
m	Güven Katsayısı
m_s	Standardın Kütlesi
m_x	Örneğin Kütlesi
N	Radyoaktif Çekirdek Sayısı, İlgilenilen Pikin Sağında Ve Solundaki Kanal Sayısı
n	E enerjili Fotopikin Altındaki Net Alan, Seçilen Uç Kanal Sayısı
nGy	Nanogrey
N_0	Başlangıçtaki Çekirdek Sayısı, Kaynağın Aktivitesi
N_p	Pik Alanı
P	Bozunma Olasılığı

YDA	Yüksek Düzeyli Atıklar
ODA	Orta Düzeyli Atıklar
S	Net Pik alanı
t	Zaman, Sayım Zamanı
$t_{1/2}$	Yarı Ömür
t_d	Bozunum Süresi
t_s	Standardın Sayım Süresi
t_x	Örneğin Sayım Süresi
Th	Toryum
X	X-ışını
Z	Atom Numarası
α	Alfa
β	Beta
ΔE	Enerji Farkı
ϵ	Verim
γ	Gama
μCi	Mikrocurie
μSv	Mikrosievert
τ	Ortalama Ömür
U	Uranyum
ν	Frekans
DDT	Tarım İlacı
KNY	Kullanılmış Nükleer Yakıt
HPGe	Yüksek Saflıkta Germanyum Dedektörü
IAEA/RGK-1	IAEA Potasyum Standardı
IAEA/RGTh-1	IAEA Toryum Standardı
IAEA/RGU-1	IAEA Uranyum Standardı
MCA	Çok Kanallı Analizör
MDA	Minimum Dedeksiyon Aktivitesi
NaI(Tl)	Talyum Aktive Edilmiş Sodyum İyodür Dedektör
UNSCEAR	Birleşmiş Milletler Radyoaktivite Etkileri Bilimsel Komitesi
UÖA	Uranyum Ötesi Atıklar
DDA	Düşük Düzeyli Atıklar

IAEA	Uluslararası Atom Enerji Ajansı
MPC	Maksimum Müsaade Edilen Konsantrasyon
MWe	Megavat-Elektrik
ADC	Analog Sayısal Dönüştürücü



1.GİRİŞ

Çağımız nükleer enerjinin yoğun olarak kullanıldığı bir süreçtir. Ülkemizde şu anda nükleer enerji ile çalışan nükleer güç santrallerinin yapımı planlanmıştır. Yaklaşık olarak önümüzdeki beş yıllık sürede artık nükleer enerjiyi kullanan bir ülke durumuna geçilecektir. Daha önceki yıllarda nükleer enerjiyi kullanmış ve nükleer enerjinin olumlu ve olumsuz yanlarını yaşamış olan ülkelerden bu konu ile ilgili örnek teşkil edecek çalışmaları araştırmak gerekmektedir. Nükleer enerjinin gram büyüklüğündeki bir yakıt malzemesi ile muazzam bir enerjiyi açığa çıkardığı bilinen bir gerçektir. Durum böyle olunca böyle bir enerjiden bu çağda yararlanmamak kabul edilemez. İşletmelerin iyi yönetildiği, çevre bilincinin olduğu, nükleer atıkların uluslararası anlaşmalar çerçevesinde bertaraf edildiği ülkelerde nükleer enerji son derece verimli bir şekilde kullanılmaktadır.

Nükleer enerjinin enerji boyutunda kullanılmasında her ne kadar ülke olarak geç kalınmış olursa da, artık ülkemizde de radyoaktif maddelerin kullanılmadığı sektör neredeyse yok gibidir. Nükleer reaktörler çok çeşitli amaçlar için yoğun bir şekilde radyoaktif maddeleri üretmektedir. Bu radyoaktif maddeler uzayda ve yeryüzünde enerji sağlamaktadır. Radyoaktif maddelerin yaydığı iyonlaştırıcı radyasyon tıpta teşhis ve tedavi alanında kullanılmaktadır. Zirai alanda üretimin artırılması, tohumların ıslahı, zirai haşerelerin öldürülmesi, kırsal kesimde insanların ölmesine neden olan kene ile mücadele, gıdaların muhafazası ve raf ömürlerinin uzatılması, tıbbi sterilizasyonun yapılması, askeri güvenlik ve silahlanma gibi ve daha buna benzer birçok alanda radyoaktif maddeler yoğun olarak kullanılmaktadır. Radyoaktif kaynaklar bu kadar yaygın kullanım alanına sahip olduğu için iyi bir şekilde sevk ve idare edilmelidir. Ayrıca atık formuna geldikten sonraki süreçte uluslararası anlaşmalar çerçevesinde kabul görmüş yasa ve yönetmeliklerle idare edilmelidir. Nükleer atıklar kısa ve uzun vadede gelecek nesillere zarar vermeyecek şekilde, etik kurallar çerçevesinde yaşanılan ortamdan uzaklaştırılmalıdır.

Dünya geneline bakıldığında, nükleer enerjiyi yoğun şekilde kullanan ülkeler radyoaktif atık konusunda çeşitli yöntemler geliştirmişlerdir. Bu yöntemler incelendiğinde,

Yaygın olarak kullanılan yöntemler; ikiye ayrılmaktadır.

- 1- Yakın yüzey gömü modeli: Onlarca metre derinliğinde yerin altında hazırlanmış, gömme ya da varillerle gömme şeklindeki modeldir. Bu model Çek cumhuriyeti, Finlandiya, Fransa, Japonya, Hollanda, İspanya, İsviçre, İngiltere ve Amerika Birleşik devletleri gibi ülkelerde düşük düzeyli radyoaktif atıkların depolanması için kullanılmaktadır. Finlandiya ve İsviçre’de hem düşük düzeyli atıkların depolanması hem de kısa yarı ömürlü deşarj edilebilecek radyoaktif atıklar için kullanılmaktadır.
- 2- Derin Jeolojik Kuyu Depo Modeli: Bu model yerin yaklaşık 250 ile 1000m derinlikteki maden yatakları ya da 2000 ile 5000m derinlikteki sondaj kuyusu şeklinde planlanmış depolardır. Fransa, İsviçre, Finlandiya ve Amerika birleşik Devletleri yüksek seviyedeki ve uzun yarı ömürlü radyoaktif atıklar için bu yöntemi tercih etmektedir. Ayrıca Kanada ve İngiltere yaygın olarak jeolojik kuyu depo modelini tercih etmektedir.

Diğer yöntemler

- 1- Yeraltı Depolarında Uzun Periyotta Saklama: Fransa, Hollanda, İsviçre, İngiltere ve Amerika Birleşik Devletleri bu konuyu araştırmaktadır. Şu anda planladıkları bir yer hala tespit edilememiştir.
- 2- Uzayın dışında bir yere gönderme: Bu konuda Amerika Birleşik Devletleri Araştırmalar yapmaktadır.
- 3- Eritip Taşlaştırma: İngiltere bu konuda laboratuvar aşamasında çalışmalar yapmaktadır. Rusya, İngiltere ve Amerika araştırma aşamasındadır
- 4- Yer altı tabakasında bindirme zonuna gömme: Amerika Birleşik Devletleri bu konu ile ilgili araştırma aşamasındadır. Ancak bu yöntem uluslararası anlaşmalar çerçevesinde kabul görmemektedir. Ayrıca henüz bu konuyla ilgili bir bölge planlanmış değildir.
- 5- Denize Gömme: Belçika, Fransa, Federal Almanya, İtalya, Japonya, Hollanda, Rusya, Güney Kore, İsviçre, İngiltere ve Amerika tarafından

yürürlüğe konulmuştur. Ancak uluslararası kabul görmeyen bir yöntemdir.

- 6- Deniz Altına Gömme: İsviçre, İngiltere ve OECD Nükleer Enerji Ajansı bu konuda araştırma yapmaktadır. Yer olarak henüz bir yer tasarlanmamıştır. Uluslararası kabul görmeyen bir yöntemdir.
- 7- Buzul tabakalarına Gömme: Amerika araştırma aşamasındadır. Antartika anlaşmasına imza atan ülkeler bu konuyu reddetmiştir. Uluslararası çözüm aranmaktadır.
- 8- Direk Deşarj Etme: Bu yöntem sadece sıvı atıklar için uygundur. Rusya ve Amerika araştırmıştır ve bu ülkelerde 40 yıldır uygulanmaktadır.

Yakın yüzey gömü modelinde ve Derin Jeolojik Kuyu Depo Modelinde radyoaktif atıklar işleme tabii tutulurken birçok ön işlemden geçmektedir. Bu işlemler seyreltme, betonlaştırma ya da killer ile adsorbe edilme olarak tanımlanabilir.

Kil maddesi geniş yüzey alanı, ucuz olması ve toprak türü olması nedeniyle radyoaktif atık depolama sistemlerinde izolasyon malzemesi olarak kullanılabilir.

Gerek yakın yüzey gömü modelinde gerekse derin jeolojik gömü modelinde radyoaktif atıklar yeryüzünde herhangi bir yere gömülmektedir. Bunlar gömülmeden önce eğer belirli işlemlerden geçirilmezse kolaylıkla gerek toprağı gerekse yer altı sularını kontamine etme riski taşırlar.

Bu açıdan bakıldığında dünya sürekli bir su döngüsü içindedir. Denizlerden buharlaşan sular, yağmur olarak yeryüzüne düşer. Daha sonra yer kabuğundan geçerek yerin altında bulunan yer altı su tabakalarına ulaşır. Bu sular gerek insanların gerekse diğer canlıların yaşamlarını sürdürebilmeleri için kullandıkları sulardır. Bu nedenle radyoaktif maddelerin uzaklaştırılması sırasında iyi izole edilmeleri gerekmektedir. Canlıların bunları içme ve sulama sularında kullanmaları sonucunda vücutlarında doğal olarak bulunması gerektiğinden çok daha fazla radyoaktif maddeye rastlanır. Doğada zaten var olan fon radyasyonu (background) çoğu yaşam alanında eser miktarda olduğu için canlılara zarar vermez. Ancak, fisyon ürünü olan

ve herhangi bir reaktör kazasından ya da nükleer silah denemelerinden açığa çıkmış, uzun yarı ömre sahip radyonüklitler canlı vücuduna beslenme, soluma veya bulaşma yoluyla girerse sağlık açısından son derece ciddi sakıncalar doğurur.

Tüm bunlar göz önüne alındığında radyoaktif atık yönetiminin bilimsel araştırmaların ışığında değerlendirilmesi ve uygulaması kaçınılmaz olmaktadır.

Bu tez çalışmasında, radyoaktif atıkların yer altı gömülerde saklanması ve depolanması sürecinde killerin bir adsorpsiyon malzemesi olarak kullanılması incelenmiştir. Yapılan deneysel çalışmalar sonucunda kilin cinsine, boyutuna, radyoaktif maddenin konsantrasyonuna, sıcaklık değerine bağlı olan değişimler elde edilmiştir.

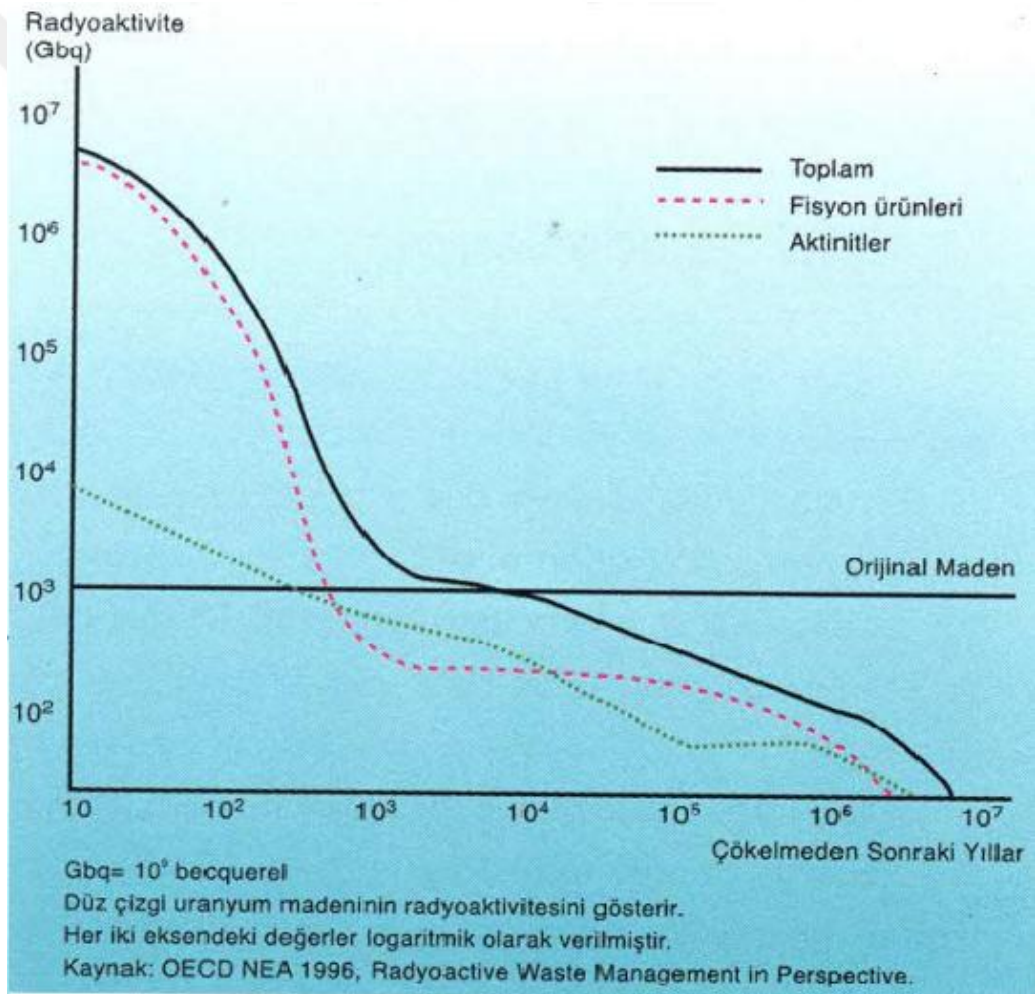
1.1. Radyoaktif Atıklar

Radyasyonun doğaya yayılmasının temel nedeni gezegenimizdeki su döngüsünden kaynaklanmaktadır. Okyanuslar, denizler, akarsular, göller ile yeraltı bu döngünün parçalarıdır. Bitkilerin terlemesi ve buharlaşma ile atmosfere karıştıktan sonra bulutlarda yağmur ya da kar şeklinde yeryüzüne geri dönerler.

Radyoaktif atıklar ise oluşan bu döngüye suyla karıştıklarında girmektedir. Su içerisinde bulunan radyoaktif çekirdekler; bitkiler tarafından emilerek ve denizlere karışarak oradaki canlıları etkilemektedir. Radyasyon su dışında hava yolu ile de gelebilmektedir. İnsanlar radyasyonu solunum yoluyla, yedikleri yemekler ile ya da içtikleri su ile alabilirler. Radyoaktif atığın etkisi, atığın suya karışma ve çevrede yol alma hızına, ayrıca radyoaktif çekirdeğin yarılanma süresine ve insan vücudunda ne kadar süre kalacağına bağlıdır. Bir elementin biyolojik yarı ömrü vücuttaki atom ile moleküllerin yarısının vücuttan atılma süresidir ve bu süre o elementin tüm izotopları için aynıdır. Vücutta kaldıkları süre içinde verecekleri zarar bu süreye bağlıdır. Biyolojik yarı ömrü 1 hafta olan trityum gibi, biyolojik yarı ömrü kısa olan izotoplar vücuttan çabuk atılır ve vücutta herhangi bir tahribata neden olmazlar. Biyolojik yarı ömürleri orta uzunlukta olan herhangi bir elementin verebileceği tahribat ise elementin radyoizotopunun fiziksel ömrüne bağlıdır. Örneğin 8 gün fiziksel ömre

sahip I-131 tehlikeli iken 17 milyon yıl yarı ömürlü I-129 vücuttan atılana kadar bozulamayacağından dolayı zararlı değildir. Bunun dışında uzun biyolojik yarı ömre sahip olan Pu (plütonyum) ve Sr (Stronsiyum) gibi elementler kemiklere yerleştiklerinden dolayı fiziksel yarı ömürlerine bakılmaksızın tehlikelidirler.

ABD Ulusal Bilimler Akademisi'nin 1983 çıkardıkları nükleer atıklar ile ilgili rapora göre; Amerika'da saklanan radyoaktif atıkların yeraltında çürümesi için gereken zaman 3 milyon yıldır. İnsan ömrü, hatta insanlık tarihi göz önüne alındığında bu süre oldukça uzun bir zamandır.



Şekil 1.1. Kullanılmış 1 Ton PWR Yakıtın Yeniden İşlenmesinden Elde Edilen Yüksek Seviyeli Atığın Radyoaktivitesinin Düşüş Grafiği

Radyoaktif atıklarda en önemli husus; radyoaktif maddelerin biyolojik organizmalarda yoğunluk kazanmalarıdır. Tarım ilacı (DDT) su aracılığı ile balıklara, balıklardan balık yiyen kuşlara geçene kadar milyon kere konsantre olmaktadır. Bu nedenden dolayı radyoaktif atıkların zararsız hale getirilmesi için radyoaktif maddelerin besin zincirine geçmesini önleyecek tedbirlerin alınmasına önem verilmesi gerekmektedir.

Radyoaktif atık türleri farklı formlarda olabilmektedir. Bunlar:

- 1) Radyoaktiviteye maruz kalan işçilerin kıyafetleri
- 2) Radyoaktif çekirdek deneylerinde kullanılan arta kalan hayvan atıkları
- 3) Soğutma suyu
- 4) Kullanılan yakıt çubukları
- 5) Nükleer santral parçaları
- 6) Uranyum zenginleştirilmesi sırasında arta kalan fabrika atıkları
- 7) Hastane atıkları
- 8) Kullanılan duman dedektörleri (radyoaktif Am-241 içeriyor)

1.1.1. Radyoaktif Atıkların Sınıflandırılması

Radyoaktif atıklar; verdikleri zararlara göre sınıflandırılırlar:

- Orijinlerine göre
- İçindeki atığın tipine göre
- Radyoaktivite düzeyine (yüksek ve orta düzeyli)
- Maddenin haline (katı, sıvı, gaz) [1][2]

Radyoaktif atıkları daha genel sınıflandırırsak:

- Yüksek Düzeyli Atıklar (YDA); bir yıldan daha uzun yarı ömürlü yüksek yoğunluklu radyoizotoplar yüksek seviyeli atıklar gurubunda yer alır. Yüksek seviyeli radyoaktif atıklar nükleer reaktör teknolojisi atıklardır ve sivil nükleer reaktörle, askeri nükleer reaktörler ve nükleer gemilerden meydana gelmektedir.

Yüksek seviyeli atıkların zararsız hale getirilmesi ve saklanması asıl sorunu oluşturmaktadır.

-Orta Düzeyli Atıklar (ODA); bu atıklar endüstriyel malzeme formundadır. Bunlar nükleer malzemeler ile birlikte kullanılmış materyaller veya sıvı radyoaktif atıkların temizlenmesi amacıyla kullanılmış reçinelerdir. Bu malzemeler ısı açığa çıkarabilir. Kısa veya uzun süreli radyoaktif ışınım yapabilir. Bunlardan korunmak için zırhlama malzemeleri gerekebilir. Kullanılmış nükleer yakıtların yeniden işlenmesi sırasında yakıtın çözülme metal kısımlarından oluşan atıklar OSA kategorisinde değerlendirilir [3].

- Kullanılmış Nükleer Yakıt (KNY); bu malzemeler reaktörden söküldükten sonra yeniden kazanım sürecine girmeyen, atık deposuna saklanan KNY gelecekte yeniden çıkarılıp yeniden kazanım sürecine gönderilmediği zaman yüksek düzeyli atık sınıfına konulur.

- Uranyum Ötesi Atıklar (UÖA); çok uzun süreli (>20 yıl) alfa yayıcılar içeren, atom numarası 92 ya da daha büyük olan konsantrasyonları gramda 100 nCi' den büyük olan elementlerden oluşan atıklardır.

- Düşük Düzeyli Atıklar (DDA); uzun yarı ömürlü düşük yoğunluklu radyoizotoplar ile kısa yarı ömürlü yüksek yoğunluklu radyoizotoplar, düşük seviyeli radyoaktif atıklar grubunda yer almaktadır. Bu atıkların birçoğu zırhlama istemezler. Tıp, endüstri, tarım ve araştırmalardan arta kalan atıklar, düşük seviyeli atıklar grubunda yer almaktadır ve zararsız hale getirilmeleri kolaydır. Bu tür atıklar, gömülüp üstü kapatılır ve üzerine işletmeler kurulur.

1.1.2. Maddenin Üç Haline Göre Sınıflandırma

1.1.2.1. Gaz Atıklar

Yeniden kazanım süreci ve nükleer güç üreten santrallerin gaz çıkışlarından oluşmuşlardır. Bu tür atıklar genel olarak Kr-85, H-3 ve I-131 gibi radyonüklidleri

içerirler. Gaz atık işlenmesinde havada bulunan bu radyonüklidlerden doğayı korumak önemlidir.

Bu atıkların aktivite düzeyleri ve bileşimi oldukça farklıdır. Bunlar birim hacimde bulunan aktivite değerleriyle tanımlanmaktadır. Gaz atıkların IAEA tarafından yapılan sınıflaması Çizelge1.1 de verilmektedir.

Çizelge1.1. Gaz Atıkların Sınıflaması[4]

Sınıfı	Aktivite Düzeyi A, (Ci/m ³)	Notlar
1	$A < 10^{-10}$	Genellikle işleme girmez
2	$10^{-10} < A < 10^{-6}$	Filtrasyon
3	$10^{-6} <$	Diğer Yöntemler

Birinci derece gaz atıklar radyonüklit aktivite konsantrasyonu 10^{-10} Ci/m³ den az olan atıklardır. Bu sınıftaki atıklar işlenmeden doğrudan havaya bırakılır.

İkinci sınıf atıklar radyonüklit aktivite konsantrasyonu 10^{-10} Ci/m³ ile 10^{-6} Ci/m³ arasındaki gaz atıklarını kapsamaktadır. Bu tür atıklarda radyoaktivite taneciklerle bağlantılı olup filtrasyona tabi tutulmaktadır.

Üçüncü sınıf gaz atıklar ise radyonüklit aktivite konsantrasyonu 10^{-6} Ci/m³ den fazla olan atıklardır. Radyoaktivitesi gaza bağlı olan bu tür atıklarda filtrasyonla beraber diğer yöntemlerde kullanılır.

1.1.2.2. Sıvı Atıklar

Genellikle kullanılan yakıtların yeniden kullanım sürecinde oluşurlar. Reaktör tesisinin farklı kısımlarından veya buhar jeneratörlerinden boşaltılan sıvı atıktır.

Bu tür atıklar çoğunlukla, düşük, orta ve yüksek aktiviteli atıklar olarak sınıflandırılmaktadır. Bu sınıflamayı yaparken aktivite, boşalma için dekontaminasyon faktörleri veya Maksimum Müsaade Edilen Konsantrasyon (MPC) değerleri temel alınır. Bundan dolayı sıvı atıkları sınıflamada ülkeler arasında

farklılıklar görülmektedir. Çizelge 1.2 de IAEA tarafından aktivite değerlerine göre yapılan sınıflandırma görülmektedir.

Çizelge1.2. Sıvı Atıkları Sınıflandırma[5]

Sınıf	Aktivite Değeri A ($\mu\text{Ci/ml}$)	Kullanılan Yöntemle İlgili Bilgiler
1	$A < 10^{-6}$	Normal olarak dışarı atılır
2	$10^{-6} < A < 10^{-3}$	Zırhlama Yapılmaz Alışılmış Yöntemler Kullanılır
3	$10^{-3} < A < 10^{-1}$	Zırhlama Yapılabilir Alışılmış Yöntemler Kullanılır
4	$10^{-1} < A < 10^4$	Zırhlama Gereklidir Alışılmış Yöntemler Kullanılır
5	$10^4 < A$	Soğutma Gereklidir

Birinci sınıf atıklar radyonüklit aktivite konsantrasyonu $10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ 'den düşük sıvı atıkları kapsamaktadır. Bu atıklar işleme alınmadan normal olarak dışarı atılır.

İkinci sınıf atıklar radyonüklit aktivite konsantrasyonu 10^{-6} ile $10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ arasında olan sıvı atıklardır. Bu atıklar için alışılmış yöntemler kullanılır ve zırhlama yapılmaz.

Üçüncü sınıf atıklar radyonüklit aktivite konsantrasyonu 10^{-3} ile $10^{-1} \mu\text{Ci/ml}$ arasında olan sıvı atıklardır. Bu atıklar için alışılmış yöntemler kullanılır ve zırhlama yapılabilir.

Dördüncü sınıf atıklar aktivite konsantrasyonu 10^{-1} ile $10^4 \mu\text{Ci/ml}$ arasındaki sıvı atıklardır bu atıklarda da alışılmış yöntemler kullanılır ancak zırhlama gereklidir.

Beşinci sınıf atıklar ise aktivite konsantrasyonu 10^4 $\mu\text{Ci/ml}$ 'den daha yüksek olan sıvı atıklardır. Bu atıklar için soğutma gereklidir.

1.1.2.3. Katı Atıklar

Bu tür atıklar toryum, uranyum madenciliğinde, öğütme tesislerinde, atık çözeltilerin bulunduğu bekletme tankı çamurlarında ve kontamine olan malzeme ile ekipmandan oluşmaktadır.

Bu tür atıkları sınıflama, ülkeler arasında farklı proseslerle ele alındığı için diğerlerine göre daha karmaşıktır. Atıkları sınıflandırma işlemleri de farklı şekillerde yapılmıştır:

- Konteynır tipine göre (Fransa)
- Birim hacimdeki aktiviteye göre (Japonya)
- Birim ağırlıktaki aktiviteye göre (Rusya)

Çizelge 1.3. de IAEA'nın Ön Gördüğü Atıkların Yüzeyinde Bulunan Radyasyon Dozuna Göre Yapılmış Olan Sınıflama Gösterilmiştir [5].

Sınıf	Atıkların Yüzeyinde Bulunan Radyasyon Dozu, D, (R/s)	Kategori
1	$D < 0,2$	Gama ve Beta Yayıncılar Düşük Alfa Yayıncılar
2	$0,2 < D < 2$	Gama ve Beta Yayıncılar Düşük Alfa Yayıncılar
3	$2 < D$	Gama ve Beta Yayıncılar Düşük Alfa Yayıncılar
4	Alfa aktivitesi Ci/m^3 şeklinde tanımlanan	Güçlü Alfa Yayıncılar Kritik Olmayan Beta Yayıncılar

Birinci sınıf atıklar yüzeyinde 0,2 R/s radyasyon bulunduran ve gama, beta ve önemsiz miktarda da alfa yayan atıkları kapsamaktadır. Özel önlemler gerekmeden taşınabilir.

İkinci sınıf atıklar yüzeyinde 0,2 ile 2 R/s radyasyon bulunduran, gama, beta ve önemsiz miktarda alfa yayan atıklardır. İkinci sınıf atıkların taşınmasında ince beton tabaka ya da kurşunla zırhlanmış konteynirler kullanılır.

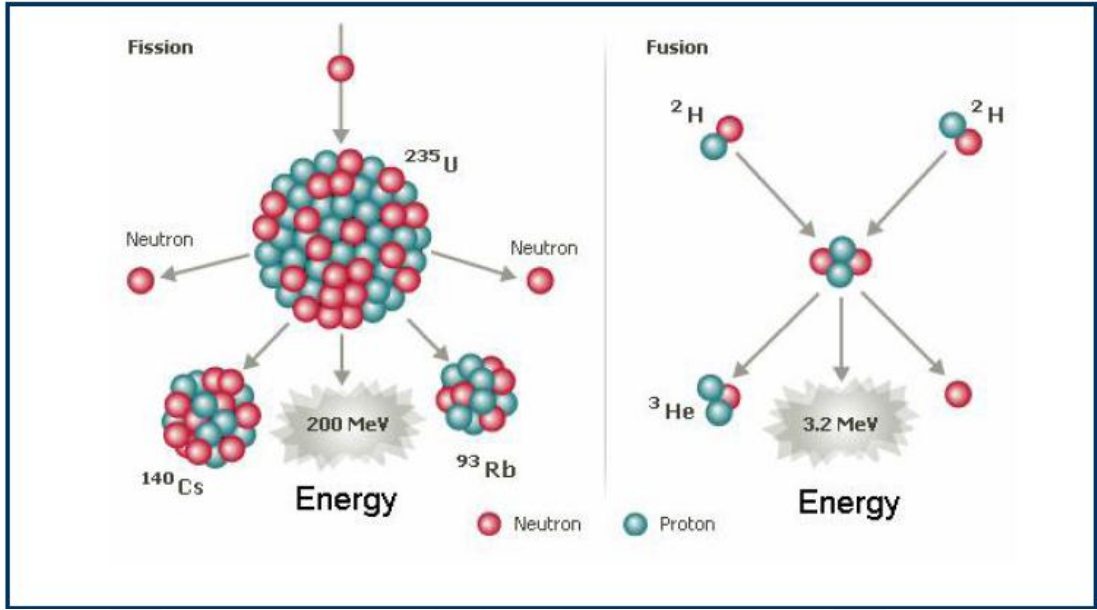
Üçüncü sınıf atıkların yüzeyinde 2 R/s'den daha yüksek dozda radyasyon bulunur ve bu tür atıklar gama, beta ve önemsiz miktarda alfa yayarlar. Bu sınıfa dahil olan katı atıklar özel önlemler alınarak taşınabilir.

Dördüncü sınıf katı atıklar kritik olmayan beta ve güçlü alfa yayan atıklardır. Bu atıkların aktiviteleri Ci/m³ şeklinde tanımlanır.

1.2. Nükleer Enerji

Dünyamız, fosil rezervlerinin aşırı tüketimi dolayısı ile çevre hasarı ve uygun fiyatlarla enerji elde edebilme güvencesine sahip olamamak gibi iki tehdit ile birden aynı anda karşı karşıyadır. Mevcut yaşam biçimlerinde ve gelecekteki beklentiler içerisinde önemli bir değişiklik olmadığı durumda, yenilenebilir enerji kaynaklarının, daha yoğun enerji kaynakları ile desteklenmeleri gerekmektedir. Bu durumda, yoğun enerji kaynağı olan nükleer enerji karşımıza çıkmaktadır.

Atom çekirdeklerinin birleşmesi ya da parçalanması sonucu açığa çıkan enerjiye nükleer enerji denir. Ağır atom çekirdekleri nötron ile bombardıman edilerek çekirdeklerin bölünmesi sağlanır ise bu tepkime fisyon olarak adlandırılır. Ayrıca bir diğer enerji üretim yolu ise füzyon olayıdır. Füzyon, iki küçük atom çekirdeğinin kaynaşması sonucu ortaya çıkan enerji tepkimesidir. Ancak füzyon, uzun yıllardan beri süregelen uğraşlara rağmen uygulamada ümit vaad eden bir noktaya getirilememiştir.

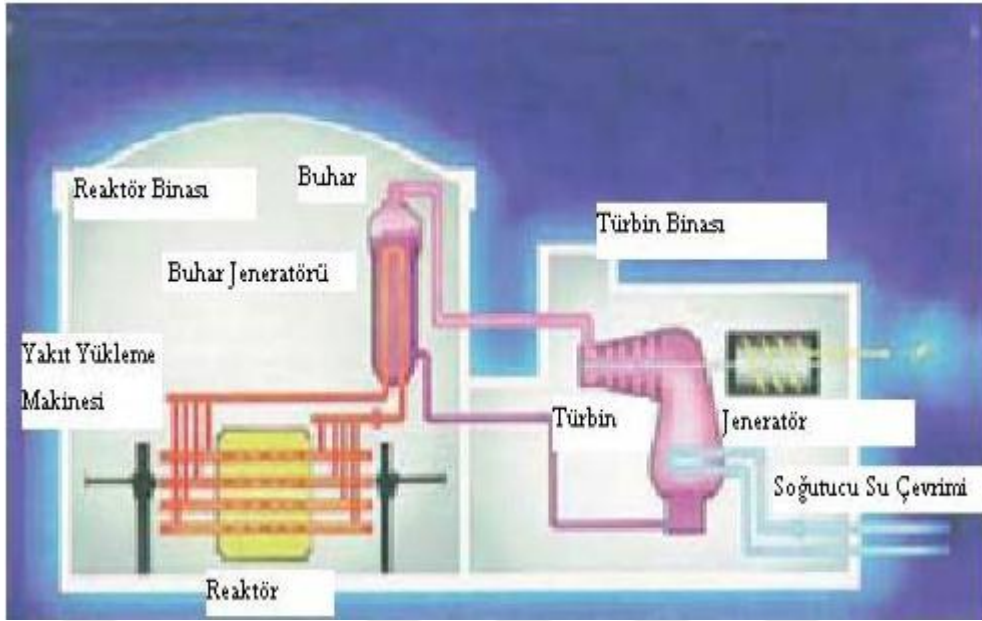


Şekil 1.2. Çekirdek Tepkimeleri

Bazı izotoplar nötron yutarak bölünmeye uğrarlar ve bölünme sonucu oluşan ürünler kazandıkları kinetik enerjiyle (filyon olayında ortaya çıkan enerjinin yedide altısı) bulunduđu yerden uzaklaşmaya çalışırlar. Bu durumda ortam çok ısınır. Sonuç olarak nükleer enerji ısı enerjisi olarak açığa çıkmaktadır.

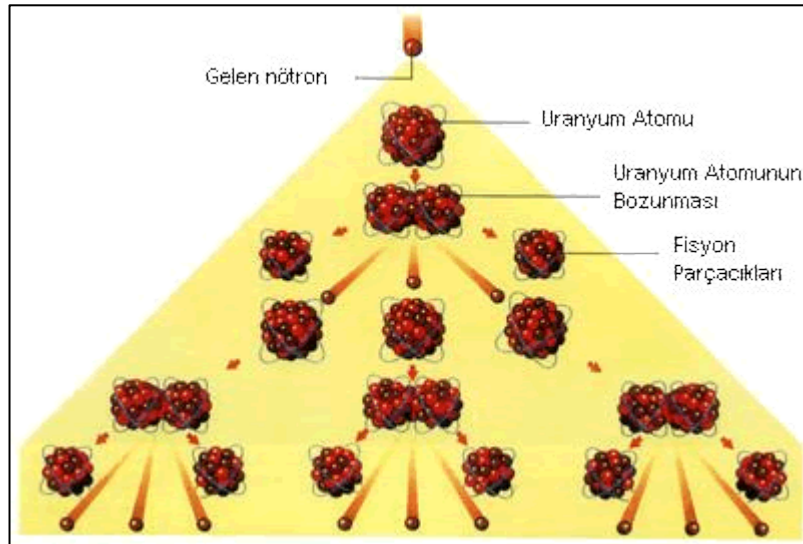
Nükleer reaktörler ise açığa çıkan bu enerjinin düzenli ve sürekli olarak üretilmesini sağlamak için dizayn edilmiş makinalardır. Sürekli ve düzenli üretimi sağlamak için 2 şey öncelikli olarak yapılmalıdır: 1)Filyon tepkimesinin kontrollü olarak sürdürülmesi 2) Üretilmiş olan ısının uygun bir biçimde ortamdan çekilmesi.

Nükleer reaktörler ile füzyon ya da filyon tepkimeleri sonucu oluşan enerji elektriđe çevrilir. Her iki tepkime ile açığa çıkan enerji ısıya dönüştürülür ve su kaynatılıp buhar edilir. Elde edilen buhar termik santrallerdeki gibi, yüksek basınç ile türbine gönderilir ve türbinin dönmesi ile türbine bađlı elektrik jeneratörü de dönünce elektrik enerjisi üretilmiş olur (Şekil 1.3). Düşük enerjili hatta enerjisiz olan izotoplar (filyon: hızlı ya da yavaş nötronların çarpması ile parçalanmış olan çekirdekler) nötron yuttukları zaman büyük bir olasılık ile bölünmeye uğrarlar. Bu tür izotoplar nükleer enerji üretiminde temel etkindir. Oluşan her filyon tepkimesi sonucunda 2 ya da 3 nötron açığa çıkmaktadır.



Şekil 1.3. Nükleer Reaktörde Enerji Üretimi

Kullanılmakta olan nükleer santrallerin çoğu fisyon dayalı olarak çalışmaktadır. Fisyon ile çalışan santrallerin ana yakıtı uranyumun 92 proton sayısı ile, farklı nötron sayılarına sahip olan U-235 ile U-238 izotoplarıdır. U-235 çekirdeği nötron çarpması ile parçalandığı için fisildir.



Şekil 1.4. Zincirleme Çekirdek Tepkimesi

Uranyum-235 bir nötron ile reaksiyona girer. Nötron ile bombardıman edilen uranyum nötronlarından bir tanesini bile kaybederse kararsız bir hale dönüşür ve

tepkime zincirleme reaksiyona girdiğinde çekirdekler parçalanır. Bu parçalanma ile bazı radyasyon ışınları ile nötronlar meydana gelir. Bu parçalanma sonucu açığa çıkan nötronlar diğer fisil çekirdeklere çarpar ve bu çarpışmalardan da nötronlar ve enerji ortaya çıkar. Nükleer reaktörün kalbi ise bu zincirleme tepkimelerinin olduğu ortamdır.

Yakıt olarak burada kullanılan U-235 zaman içinde azalır ve bir süre sonra değiştirmek gerekir. Kullanılan yakıtlar kimyasal yöntemler ile parçalandıktan sonra kullanılabilen izotoplar içlerinden alınmaktadır. Arta kalan kimyasal çözelti içinde kullanılamayacak olan üst düzeyde radyoaktif çekirdekler kalır. Arta kalan radyoaktif sıvı atıklar zararsız seviyeye düşene kadar, doğaya zarar vermemesi için zırhlı ve korunaklı depolama ile saklanır.

1.3. Nükleer Yakıt

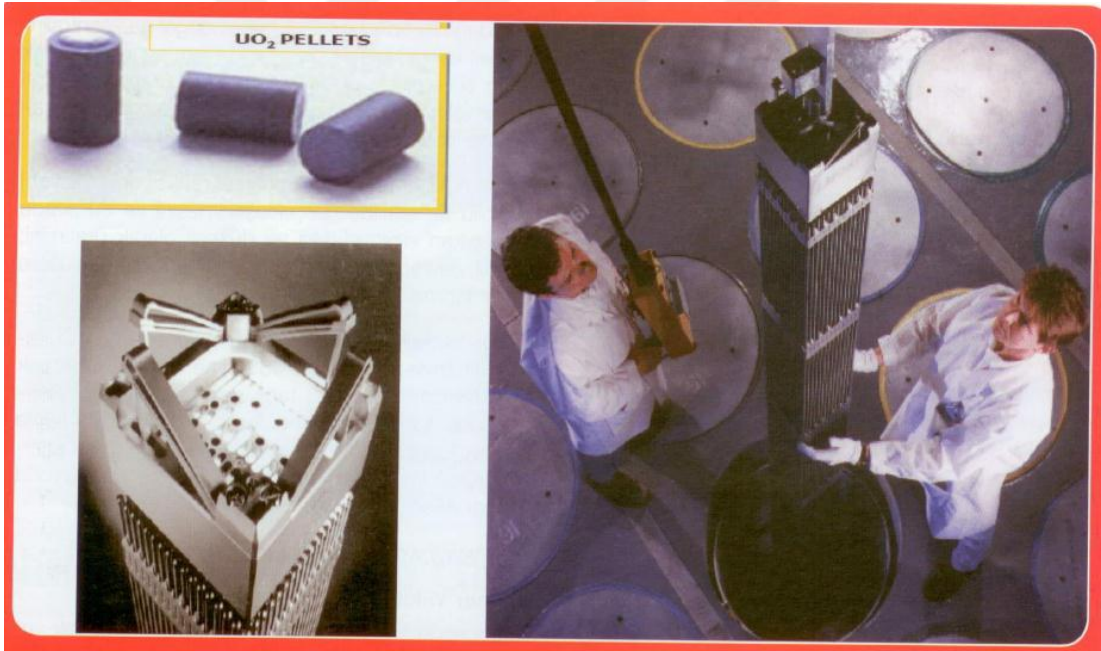
Günümüz şartlarında çalışan reaktörlerin yaklaşık olarak yedide altısını oluşturan HSR (Hafif-Sulu Reaktörler)'nin yakıt tasarımı gereğince %3 ile % 5 oranında fisil izotop içermeleri gerekmektedir, aksi takdirde fisyon zincir tepkimesinin gerçekleşmesi mümkün kılınmaz.

Doğadaki tek fisil izotop ise U-235'tir. Bu nedenle nükleer tesislerin genelinde (% 97) yakıt olarak uranyum dioksit kullanılmaktadır. Doğada bulunan 1000 U atomunun 7'si atom ağırlığı 235 olan uranyum izotopu U-235, 993 'ünü atom ağırlığı 238 olan uranyum izotopu U-238 oluşturmaktadır. Uranyum-235 izotopu nötronlar ile bölünebilme yeteneğine sahip olup ve nükleer enerji üretmede başrolü üstlenmektedir.

Nükleer yakıt elemanları içerdikleri U-235'in parçalanması neticesinde enerji açığa çıkartır; U-235'in yaklaşık olarak % 75'i hafif izotoplu fisyon ürünlerine bölünürken, HSR yakıtının % 95-97'lik bölümü oluşturan U-238 fisil değildir ancak doğurgandır. Yani U-238'in de küçük bir miktarı farklı nükleer reaksiyonlar sonucunda reaktörde uranyum-ötesi ağır izotoplara dönüşmektedir. Bunlardan doğada bulunmayan izotop

plütonyum-239'dur. Pu-239'unda fisyon yapma kabiliyeti vardır ve reaktörün gücüne önemli katkılarda (%40) bulunur.

Bu sebeple uranyum zenginleştirilip U-235 oranı binde 7'den binde 35'e yükseltilir. Zenginleştirilen uranyumdan, yüksek sıcaklık ve basınç altında, küçük parmanın üst boğumu büyüklüğünde seramik yapıdaki uranyum-dioksit küçük silindirler üretilir. Bu silindirler yaklaşık olarak 1 cm çapında, 3.5-4.0 m uzunluğunda, zirkon alaşımli metal tüplere yerleştirilerek nükleer yakıt elemanları elde edilir. Bu ince uzun tüplerden 200-250 tanesi genel olarak kare olacak şekilde bir araya getirilip nükleer yakıt demetleri oluşturulur. Yakıt çubukları arasında bölünme sonucunda sürekli ısı açığa çıkar. Bu ısıyı çekerek çubuk yüzeyinin sabit bir sıcaklıkta kalması için soğutma suyu kullanılır.



Şekil 1.5. Nükleer Yakıt Tabletleri ve Yakıt Demeti

Yakıtta bulunan fisil izotop oranı belirli bir seviyenin altına indiği takdirde fisyon zincir tepkimesini devam ettirmek imkânsızdır. Böyle bir durumda yakıtı değiştirmek gereklidir. 1000 megavat-elektrik (MWe) gücüne sahip bir hafif sulu reaktörde yaklaşık 90 ton uranyum-dioksit bulunmaktadır ve bununda üçte biri ise her yıl kullanılmış nükleer yakıt (KNY) olarak reaktörden alınarak yerine yeni yakıt konulur. Yakıt reaktör içinde 3-4 yıl kadar kalır.

1.4. Normal Şartlar Altında Çevreye Salınanlar

Nükleer santraller normal çalışma koşulları altında çevreci olup çevreye nerede ise sadece ısı (veya su buharı) atar. Bilinen bir bacası olmayıp havalandırma bacası mevcuttur. Bu bacadan düşük aktiviteli gazlar kontrollü bir şekilde atmosfere bırakılır. Bu durumda nükleer tesislerin neden olduğu radyasyon doz miktarı doğal kaynaklardan alınan dozlar yanında ihmal edilebilecek seviyededir.

Orijinal nükleer yakıt ile kullanılmış nükleer yakıt aynı dış yapıya sahiptir (ince uzun metal çubuklar) ve bunları birbirinden ayırt etmek oldukça zordur. Nükleer yakıtın içerisinde küçük bir kısmını oluşturan atık dediğimiz maddeler oluşarak orada kalır, kısacası her şey metal tüpler içerisinde oluşur. Nükleer enerji üretimi esnasında emisyon oluşmaz ve reaktörün bir bacası yoktur [6].

1000 MWe gücüne sahip nükleer reaktörden her sene yaklaşık 30 ton KNY ortaya çıkar. Aynı güce sahip kömür ile çalışan bir termik santral yılda 3 milyon ton kömür ile beslenip 7 milyon ton kül ve bacı gazı üretir [6].

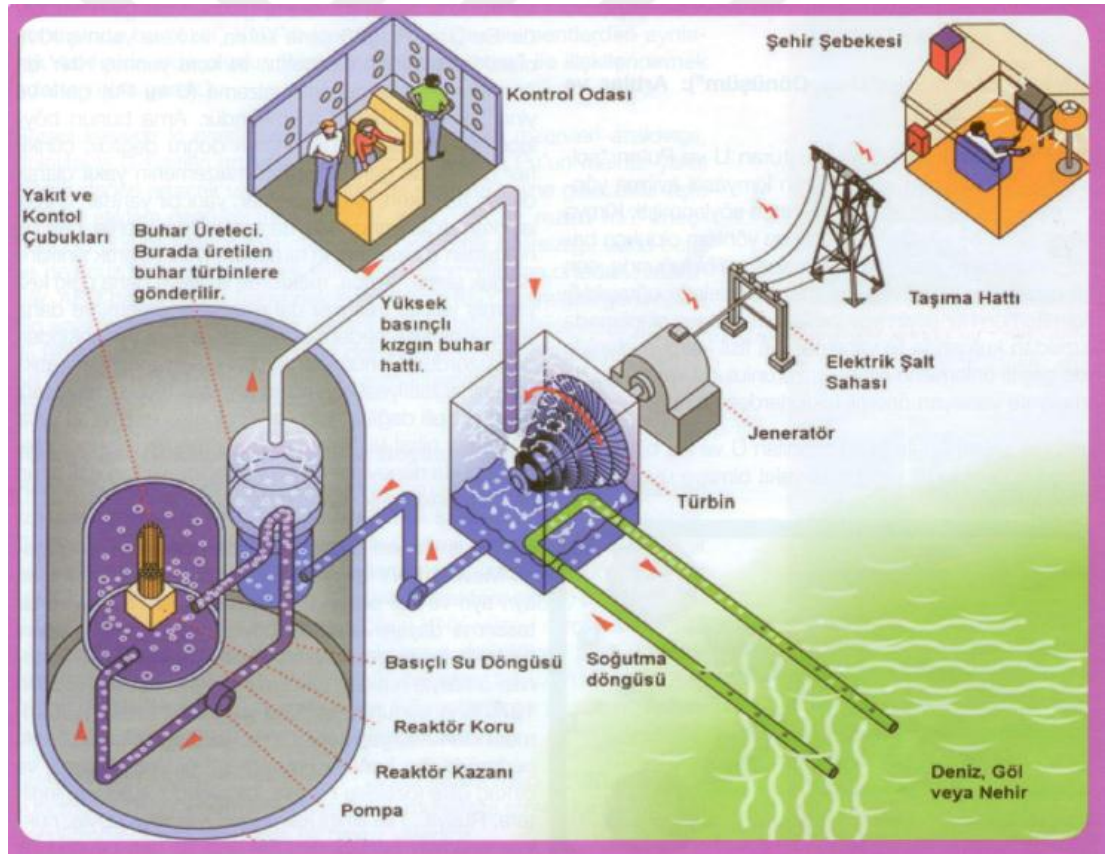
1.5. Kullanılmış Nükleer Yakıt (KNY)

Reaktör içindeki U-235 oranında meydana gelen azalma nedeni ile fisyon zincir reaksiyonunu gerçekleştiremeyip reaktör içindeki ömrünü tamamlayarak reaktörden alınan yakıt demetlerine kullanılmış yakıt denir. Reaktör içerisinde bulunduğu süre boyunca nükleer yakıt elemanlarının dış yüzeylerinde herhangi bir değişiklik olmayıp sadece yakıtın kompozisyonunda değişme meydana gelir. Bir nükleer reaktörden çıkan kullanılmış yakıtın %95,5 'i orijinal yakıt malzemesi olan uranyum-dioksit, %3,5' ini fisyon ürünü olan hafif izotoplar, %0,9'unu plütonyum ve % 0,1'ini ise uranyumdan büyük ağır izotoplar oluşturur. Bu durumda orijinal yakıtın sadece yirmide biri kadarı değişime uğramış olur. Değişime uğramış olan kısmın 5'te 1'i nükleer enerji bakımından değerli bir element olup doğada bulunmayan Pu'dan oluşur.

Kullanılmış nükleer yakıt reaktörden çıktığı anda ölümcül seviyede radyoaktif ve zaman içerisinde radyoaktivitesi azalmaktadır. Ancak çok uzun yıllar boyunca bile çevre ve insan için potansiyel tehlike olmaya devam etmektedir.

1.6. KNY'nın Radyoaktivitesi

Yakıt reaktörde kullanıldıktan sonra aktivasyon ürünleri, aktinitler ve fisyon ürünleri olmak üzere 3 grup radyoizotop oluşturduğu bilinmektedir. Ayrıca 3502 den fazla nükleit fisyon ürünü olarak tanımlanmıştır. Bu ürünlerin birçoğunun ömrü kısadır. PWR (basınçlı su reaktörü)'de oluşan aktinitler ve fisyon ürünleri Çizelge 3.4 ile Çizelge 3.5'te gösterilmektedir. İzotopların konsantrasyonlarını diferansiyel eşitlikler ile bulmak mümkündür [2].



Şekil 1.6. Nükleer Güç Santrali (Basınçlı-hafif sulu reaktör)

Çizelge1.4. Aktinitlerin Radyoaktivitesi

Nüklit	Yarı Ömür	Ci/yıl	Kg/MTU
U-238	2.47x10 ⁵ yıl	19.4	0.12
U-236	2.39x10 ⁷ yıl	7.22	4.18
Np-237	2.14x10 ⁶ yıl	14.4	0.75
Pu-236	2.85 yıl	134	9.2x10 ⁻⁶
Pu-238	86 yıl	1.01x10 ⁵	0.22
Pu-239	24400 yıl	8.82x10 ³	5.28
Pu-240	6580 yıl	1.30x10 ⁴	2.17
Pu-241	13.2 yıl	2.81x10 ⁶	1.02
Pu-242	3.79x10 ⁵ yıl	37.6	0.35
Am-241	458 yıl	4.53x10 ³	0.05
Am-243	7950 yıl	477	0.09
Cm-242	1630 gün	4.40x10 ⁵	4.9x10 ⁻³
Cm-244	17.6 yıl	7.38x10 ⁴	3.3x10 ⁻²

Çizelge1.5. Fisyon Ürünlerinin Radyoaktivitesi

Nüklit	Yarı Ömür	Deşarjdaki Aktivite (1.10 ⁶ Ci/y)
H-3	12.3 yıl	1.92x10 ⁻²
Kr-85	10.8 yıl	0.308
Sr-90	27.7 yıl	2.11
Z-95	65.5 gün	37.3
Ru-106	368 gün	14.8
Sb-125	2.7 yıl	0.237
I-129	1.7x10 ⁷ yıl	1.01x10 ⁻⁶
I-131	8.05 gün	23.5
Xe-133	5.27 gün	43.9
Cs-134	2.05 yıl	6.7
Cs-137	30.0 yıl	2.94
Ce-144	284 gün	30.2
Pm-147	4.4 yıl	2.78

Sm-151	87 yıl	3.41×10^{-2}
Eu-154	16 yıl	0.191
Eu-155	1.81 yıl	0.204

1.7. Radyoaktif Atık Yöntemi

Yakıtların hiçbiri yakıldığı zaman yok olmaz; kütlelerinin çok küçük kısımları enerjiye dönüşürken aynı zamanda atık denilen maddelerde oluşmaktadır. Oluşan bu atıkların çevreye bırakılmasında sakıncalar görüldüğünden dolayı bu radyoaktif atıklar oluştukları andan itibaren geçici depolama, reproses, taşıma, son depolama gibi bazı işlemlere tabi tutulur. Bu işlemlere Radyoaktif atık yönetimi denir.

Enerji üretimi için nükleer enerjiyi kullanan ülkeler radyoaktif atık yöntemi ile ilgili birçok yöntemler ve yollar bulma arayışı içine girmişlerdir. Bu konu ile ilgili genellikle yüksek düzey radyoaktif atıklar konusu üzerine araştırma ve yöntemler mevcuttur. Bu yöntemlere örnek olarak nükleer atıkların okyanus tabanına gömülmesi uygulaması verilebilir, ayrıca kutuplarda bulunan buzullara gömme, dış uzaya gönderme yöntemleri de düşünülüp araştırılmış yöntemler arasındadır. Günümüzde nükleer atık yönteminin teknik aşamaları:

- Nükleer uygulamaların farklı aşamalarında üretilen atık türleri oldukça fazla olup farklı düzeylerde zararlara sahiptirler.
- Ortaya çıkan bu atıklar toplanarak atık işleme tesisine gönderilmek için toplanır.
- Her ülke kendi koşullarına bağlı olarak atıkları biyosferden izole edecek şekilde yerleştirir yani gömülür.

Bugün geçerliliği yaygın olan bu üç aşama daha alt gruplar ile farklı yönetim şekillerine ayrılmaktadırlar. Çizelge1.6'da atık yönteminde yeraltına gömülme sürecini esas alan sınıflama gösterilmektedir.

Çizelge1.6. Atık Yönteminde Yeraltına Gömülme Süreci

Atık Kategorisi	Özellikleri
Yüksek düzeyli uzun ömürlü	Yüksek gama-beta Önemli alfa Yüksek radyoaktif zehirlilik Yüksek ısı çıkışı
Orta düzeyli uzun ömürlü	Orta gama-beta Önemli alfa Orta radyoaktif zehirlilik Önemli ısı çıkışı
Düşük düzey uzun ömür	Düşük gama-beta Önemli alfa Düşük/orta radyoaktif zehirlilik Düşük ısı çıkışı
Orta düzeyli kısa ömürlü	Orta gama-beta Önemsiz alfa Düşük radyoaktif zehirlilik Düşük ısı çıkışı
Kısa düzeyli kısa ömürlü	Düşük gama-beta Önemsiz alfa Düşük radyoaktif zehirlilik Önemsiz ısı çıkışı

Şimdiye kadar, yüksek aktiviteli radyoaktif atığı depolamak için bir tesisi olan ülke bulunmamaktadır. Fakat çoğu ülke bu atıkları depolamak için teknolojik geliştirmeye ilgili çalışmalarda bulunmaktadır. Atık yöntemi konusunda uzmanlar, ortaya çıkan atığı doğal ve teknik bariyer kombinasyonunu birleştirerek jeolojik depolamayla izole etme görüşündedirler. Jeolojik depolama günümüz koşullarında tercih edilen teknolojidir [7].

1.7.1. Düşük ve Orta Düzeyli Atıkların Depolanması

Bu atık yöntemi düşük ve orta seviyedeki sıvı ve katı atıkların üretildikleri andan başlayarak işlenerek depolanma sürecini kapsamaktadır. Bu atıklar genellikle nükleer enerji tesisi olmayan ülkeler, üniversitelerde, araştırma merkezleri, hastane ve sanayi tesislerinde kullanılan radyoaktif materyallerin kullanım dışı kalmasıyla oluşmaktadır. Nükleer atık yöntemlerinde düşük ve orta düzeyli atıklar toprak tabakasına yakın seviyede nihai olarak gömülürler. Sıvı atıklar için farklı yöntemler mevcuttur. Bu yöntemler:

- Seyrelt, dağıt
- Konsantre et sakla
- Sulandır ve boşalt

Bu yöntemler uygulanırken en detaylı olarak karşılaştığımız yöntem, sıvı atığı kimyasallar yardımıyla tank içerisinde çöktürme ya da atığı reçine kolonundan geçirerek içerisinde bulunan radyoizotopların reçine ile tutulmasını sağlamaktır. Uygulanan her iki yöntemin amacı sıvı atığı konsantre olarak elde etmektir. Bir sonraki aşama, konsantre halin stabil hale getirilmesi sağlayan sabitleyici işlemdir. Bunun için yaygın olarak çimentolama yöntemi veya bitümlenme yöntemi uygulanmaktadır [8].

1.7.2. Yüksek Düzey Atık Yöntemi

Kullanılmış nükleer yakıt veya yüksek düzeyli atık gibi uzun ömre sahip atıklar için gömme işlemi uygulanabilecek bir yer bulunmamaktadır. ABD, Fransa, Almanya gibi çoğu ülke uzun ömürlü bu atıkları gömülmesi için programlar geliştirmektedir. Uzun ömürlü bu atıkların kontrolü için en yaygın yöntem jeolojik tasfiyedir (yeraltına gömme) [3].

Tüm ülkeler yüksek aktiviteye sahip radyoaktif atıklarını yerin 500-1500 m altında özel olarak seçilen jeolojik oluşumlarda inşa edilen depolara gömmeyi planlamaktadırlar. KNY' ların kimyasal olarak işlendiği durumlarda yakıtın yüksek

radioaktivite içeren kısmı nitrat çözeltisi şeklinde ayrılarak yüksek sıcaklık altında cam eriyiği ile karıştırıldıktan sonra metal silindirler içerisinde soğumaya bırakılıp camlaştırılır. İçerisinde camlaştırılan atık bulunduran silindirler metal bir varil içine konulup yeraltı deposuna yerleştirilmeye hazır hale getirilir. KNY'nin doğrudan tasfiyesi söz konusu olduğu durumlarda yakıt çubukları metal silindirler ile varillere konularak yeraltı deposuna gönderilir. Her iki durumda da tasfiye edilecek malzemenin boyutları farklı bile olsa dış muhafaza içindeki metal silindirlerden oluşmaktadır. Metal silindirler yeraltı deposunun zemininde açılmış olan deliklere yerleştirilip, kenarlar bentonit denilen kil ile doldurulup delikler tıkanır. Deponun tamamı dolduğu anda yeraltında bulunan tüneller ile boşluklar dolgu malzemesiyle kapatıldıktan sonra depo mühürlenir.

Bu metot yeni bir teknoloji ve üstesinden gelinemeyecek teknik zorluklar içermemektedir. Fakat nihai tasfiye konusunda alınması gereken kararların gecikmesi dolayısıyla hala uygulama aşamasına gelinememiştir. Nükleer atık üreten ülkeler kullanılan nükleer yakıtlarını kuru depolama tesislerinde ya da su havuzlarında bekletmektedir. Jeolojik tasfiye konusunda en önemli adımı 1982 yılında ABD atarak ve kongresinde “nükleer atık yasası” geçirerek, 1998 yılında jeolojik tasfiyeye başlama kararı almıştır. Teknik çalışmaları tamamlanmasına ve yer seçimi yapılmasına rağmen, politik, sosyal, toplumsal psikolojik, vs faktörler nedeni ile bu yasanın uygulanmasında 16 yıllık bir gecikme gündeme gelmişti ve tasfiyeye başlama tarihi en erken 2015 yılına kaydırılmıştır.

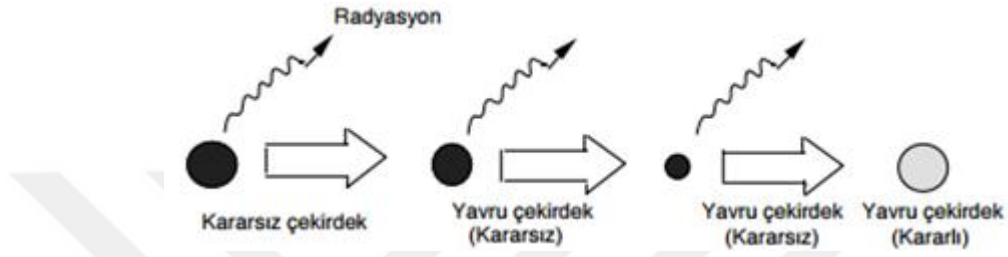
Kullanılmış nükleer yakıtların, işlenmeden, içermiş oldukları değerli maddeler ile birlikte, gömülmesi ise ayrı bir tartışma konusu olmuştur.

1.8. Radyoaktivite Nedir?

Bir elementin çekirdeklerinden yüksek enerjili tanecikler ya da elektromanyetik dalga niteliğinde ışınlar yayınlaması radyoaktivite olarak tanımlanmaktadır. Radyoaktif özelliği gösteren elementlere ise radyoaktif elementler denir. Ağır elementlerin çoğu radyoaktif özelliklere sahiptir.

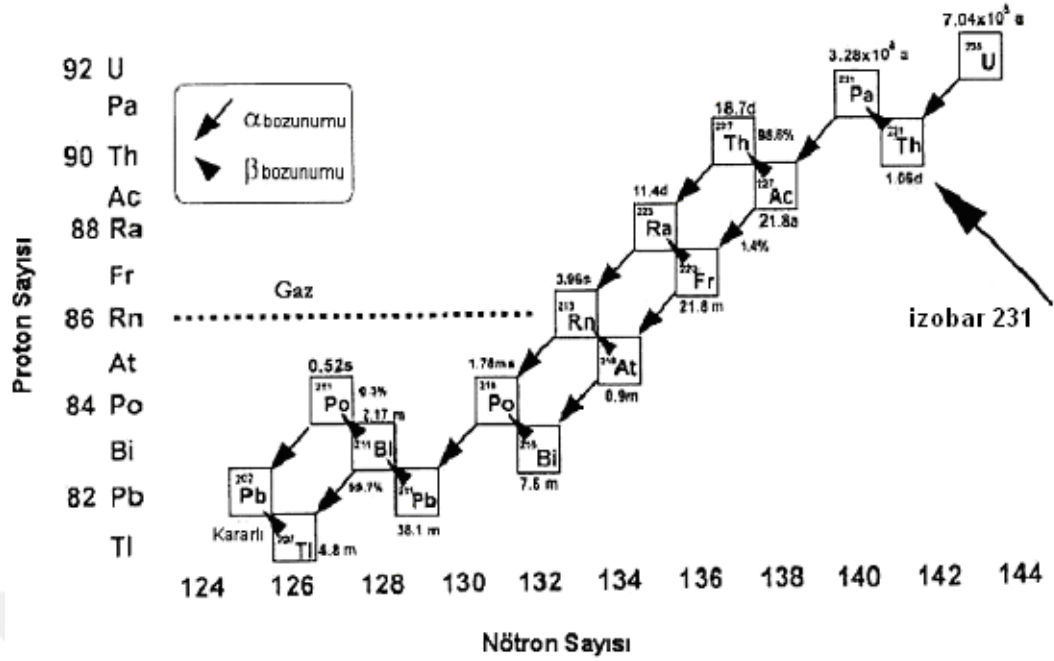
Radyoaktif haldeki çekirdekler kararlı hale ulaşana kadar bozunuma uğrarlar. Bozunuma uğrayan ilk radyoaktif çekirdeğe ana çekirdek, ana çekirdeğin radyoaktif bozunuma uğraması sonucunda meydana gelen çekirdeğe ise kız çekirdek denir. (Şekil 3.7)

Bozunma sürecinde bulunan radyoaktif bir çekirdek, beta, alfa ve gama radyasyonlarından biri ya da birkaçını yayınlılar.

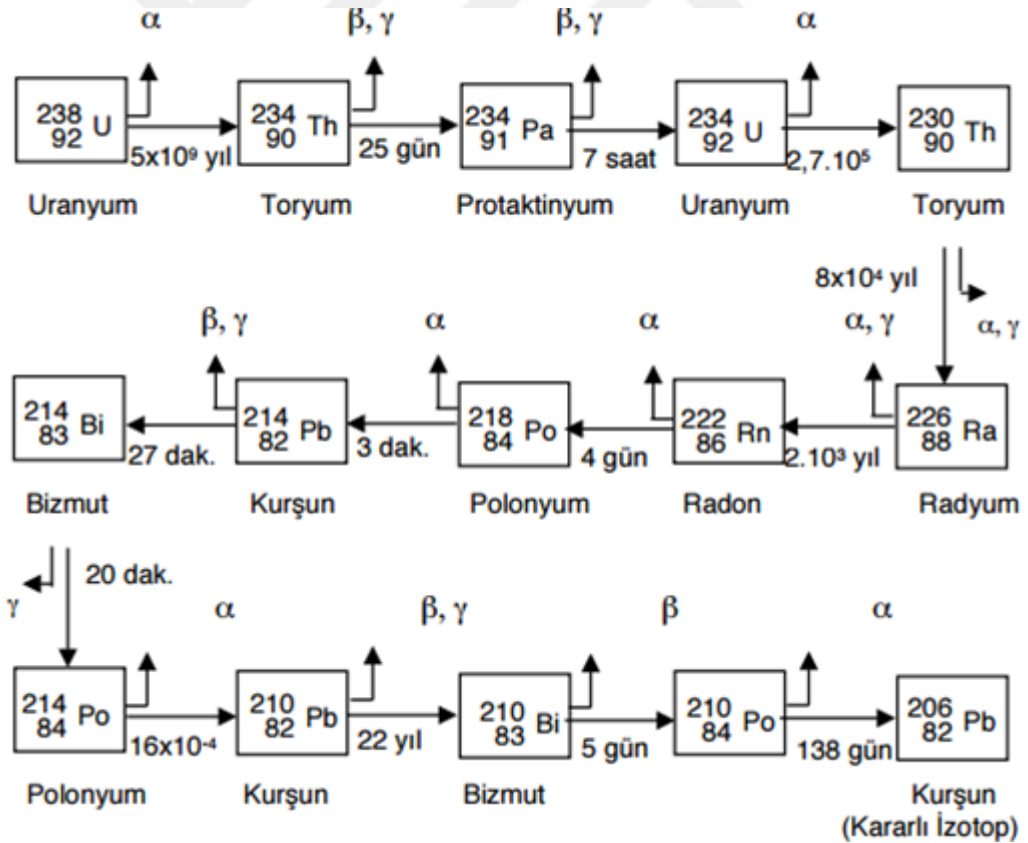


Şekil 1.7. Kararsız Durumdaki Radyoaktif Çekirdekten Kararlı Bir Çekirdek Oluşumu

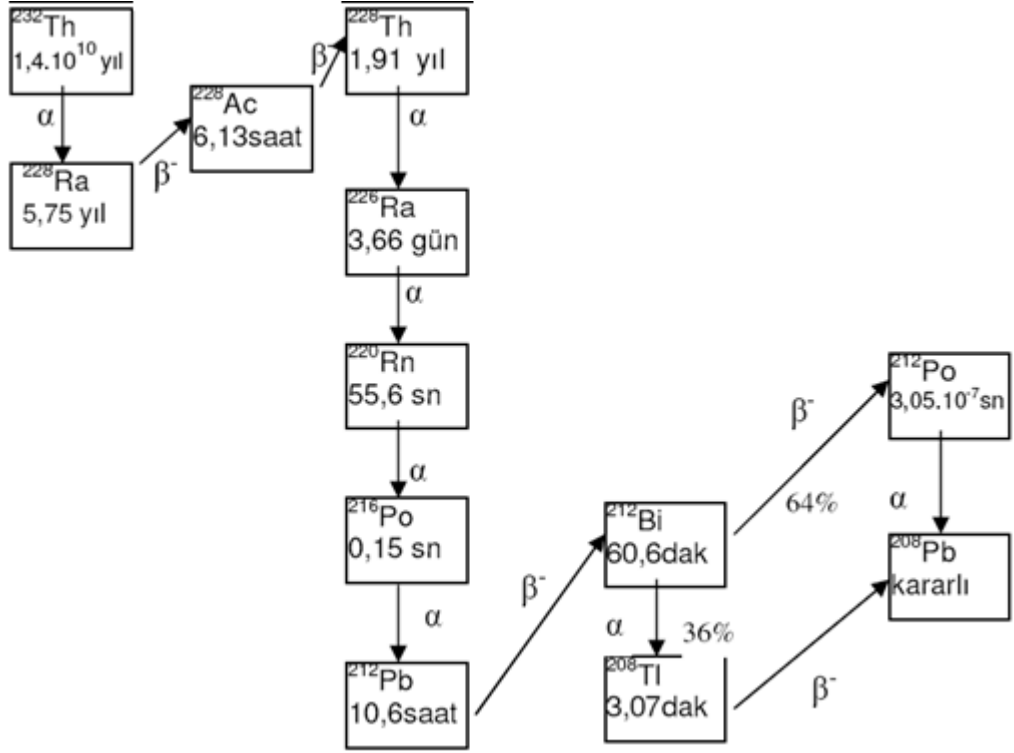
Radyoaktif haldeki ana çekirdekten beta, alfa ve gama bozunumları sonucu kız çekirdekler oluşturmaları sonucu oluşturulan serilere “radyoaktif seriler” denir. Bu seriler uranyum, toryum, neptinyum ve aktinyum serisi halinde dört gruptan oluşturulmuştur. Bozunma zincirini tamamlayan herbir seri kararlı bir çekirdek haline dönüşür.



Şekil 1.8. U-235 Bozunum Serisi



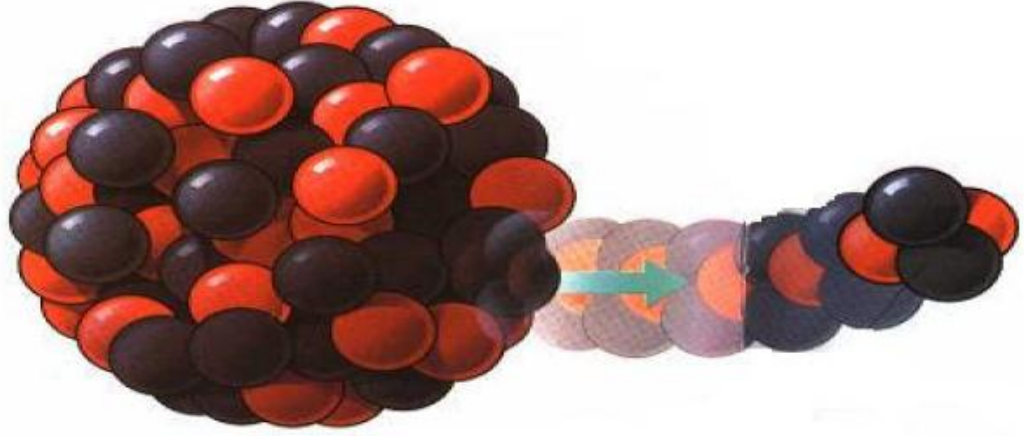
Şekil 1.9. Uranyum-238 Radyoaktif Serisi



Şekil 1.10. ^{232}Th 'in Bozunma Ürünleri Şeması [20]

1.8.1. Alfa (α) Bozunması

Radyoaktif haldeki bir çekirdeğin kararlı bir çekirdek yapısına ulaşmak için izlediği yollardan biri alfa bozunumudur. Bozunma olayı radyoaktif olan çekirdekten kütle numarası 4, atom numarası 2 olan bir taneciğin ayrılması sonucu gerçekleşmektedir. Denklem (1.1) de bozunuma uğrayan çekirdeğin alfa bozunumu gösterilmektedir. Helyum (He) çekirdeğinin alfa parçacığı olduğunu Rutherford göstermiştir. Alfa bozunumunda nötron ve proton sayıları ayrı ayrı korunmaktadır. Aynı zamanda enerji de korunmaktadır. Çoğu ağır çekirdek, alfa yayınlarak bozunuma uğrarlar. Bunlar özellikle doğal radyoaktif seri üyeleri radyonüklitlerdir.



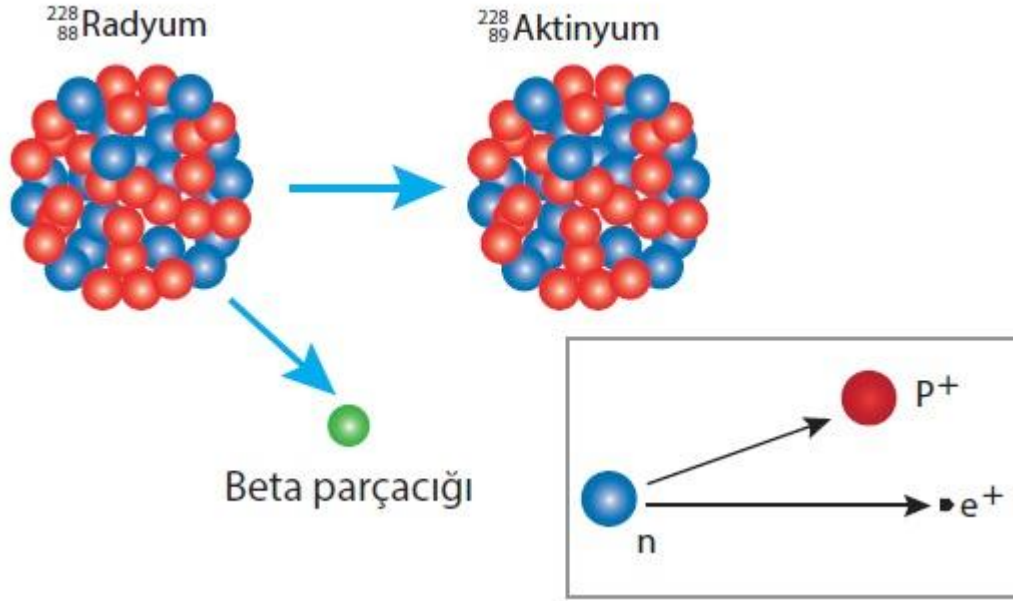
Şekil 1.11. Fırlatılan İki Nötron Ve İki Protonlu Alfa Parçacığı



Bozunum dolayısı ile oluşan enerjinin büyük bir oranını momentumun korunumu nedeni ile küçük kütleye sahip olan alfa parçacığı alır. Alfa parçacığı yüksek enerjiye sahip olmasına rağmen ağır kütesinden dolayı menzili oldukça kısadır. Kütle numarası 190'dan küçük olan çekirdeklerde genellikle alfa bozunumu görülür. 4 ile 10 MeV arasında değişim gösteren enerji spektrumu kesiklidir.

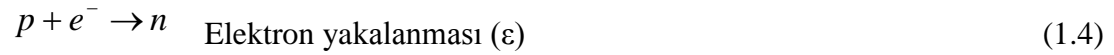
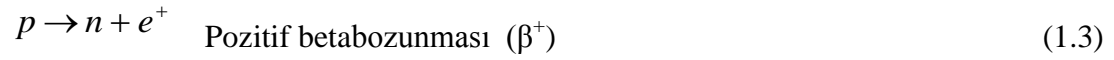
1.8.2. Beta (β) Bozunması

Çekirdeklerde negatif elektron yayınlama olayının ilk gözlemlendiği radyoaktif olaylardan biri beta bozunumudur. Hızları ışık hızına yaklaşan ve yolları alfa ışınlarındakinden daha uzun olan beta ışınları iyonlaştırıcı ışınlardır. En temel beta bozunma reaksiyonu, bir protonun bir nötrona ya da bir nötronun bir protona dönüşmesi olayıdır. Beta bozunumu ile bir çekirdekte hem Z hem de N bir birim değişir. Böylece kütle numarası sabit kalır.



Şekil 1.12. Beta Bozunumu

Temel β bozunma işlemleri;

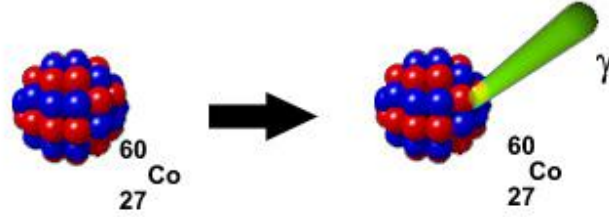


Beta parçacıkları 0'dan 1,16 Me'e kadar uzanan sürekli bir enerji dağılımına sahiptir. En büyük enerjiye sahip beta parçacıklarının havadaki yol uzunluğu 70-80 cm'yi bulmaktadır. Beta ışınlarının en büyük enerjiye sahip olanları dahil birkaç milimetre kalınlığında olan metal levhalar ile durdurulabilmektedir [9].

1.8.3. Gama Bozunumu

Birçok beta ve alfa bozunmaları ya da nükleer reaksiyonlar meydana geldikten sonra, oluşan yeni çekirdekler uyarılmış halde olabilirler. Uyarılmış haldeki çekirdekler hızlı bir şekilde bir ışın yayınlarak daha kararlı olan başlangıç düzeyine dönerler.

Yayınlanan bu ışınlar γ -ışını olarak adlandırılır. Elektromanyetik özelliğe sahip gama ışınları elektrik ve manyetik alanda sapmaya uğramazlar. Bu nedenle bu ışınları elektromanyetik ışınım fotonu da denir. X-ışınlarına benzeyen gama ışınları bu ışınlardan daha girici özelliğe sahiptir.



Şekil 1.13. Gama Bozunumu

10^{-9} saniyeden daha kısa yarılanma süresine sahip olan gama ışınları saat ve gün mertebesinde yarılanma süreli gama yayınlanması da yaparlar. Çekirdek durumları 0,1-10 MeV arasında olan gama ışınlarının dalga boyu 10^4 ile 100 fm dalga boyu aralığındadırlar. Gama ışınması yapan bir elementin atom numarası ile kütle numarasında herhangi bir değişiklik olmaz. γ radyasyonu ışık gibidir fotonlardan oluşur, ışık hızı ile yayılır [9].

1.9. Yarı Ömür

Radyoaktif bir maddenin başlangıçtaki var olan atomlarının sayısının yarıya inene kadar geçirdiği süreye yarı ömür denir. Yarı ömür her radyoaktif element için farklı olup o elementin karakteristik özelliğidir. Örneğin, iyot elementine ait radyoaktif iki izotopunun yarı ömürleri farklıdır.

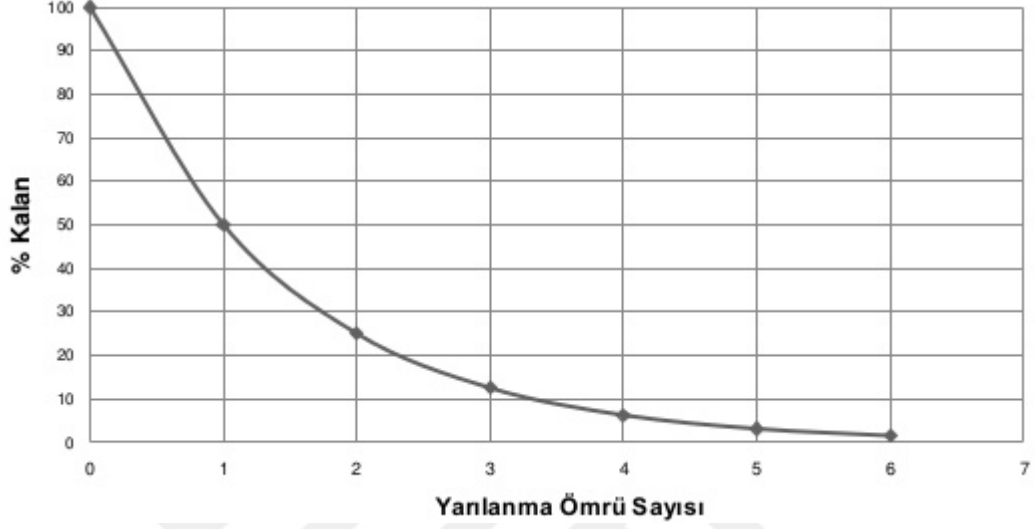
I-131'nin yarı ömrü: 8,04 gün

I-125'in yarı ömrü: 60,0 gün

Yarılanma süresi aşağıdaki formül ile hesaplanır:

$$T_{1/2} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (1.5)$$

Burada λ bozunma (parçalanma) sabitidir. Bozunma sabiti ne kadar büyük ise yarı ömür o kadar kısa olmaktadır.



Şekil 1.14. Yarılanma Ömrü

1.10. Ortalama Ömür

Parçalanma sabitinin tersi olan ortalama ömür bir çekirdeğin tamamının bozununcaya kadar geçirdiği ortalama süredir.

$$T_0 = \frac{1}{\lambda} \quad (1.6)$$

Yarı ömür ile ortalama ömür arasında,

$$T_0 = 1,44xT_{1/2} \quad (1.7)$$

bağlantısı vardır. Kısacası radyoaktif bir atomun ne kadar süre aktif durumda kalacağı ortalama ömürle belirlenir.

1.11. Radyasyonun Tanımı ve Türleri

Boşlukta ve madde içerisinde hareket edebilen, iç dönüşüm geçiren atomlar tarafından yayımlanan enerji radyasyon olarak tanımlanmaktadır. Yayımlayan kaynağın özelliğine bağlı olarak bu enerji parçacıklar ve elektromanyetik dalgalar tarafından taşınabilir. Radyasyonu tanımlamak için 3 ana parametre kullanılmaktadır.

- Enerjisi (düşük ya da yüksek enerjili)
- Türü (parçacık ya da elektromanyetik)
- Kaynağı (doğal ya da yapay)



Şekil 1.15. Radyasyon Çeşitleri

Yüksek enerjili iyonize radyasyon atomdan elektron kopararak atomu iyonize eden radyasyondur. İyonize radyasyon türleri gama, alfa, beta ve X-ışınlarıdır.

Düşük enerjiye sahip yani iyonize olmayan radyasyon etkileşim halinde bulunduğu madde içinde yer alan atomları yeterli enerjiye sahip olmadığından dolayı iyonize edemeyerek sadece uyarır. İyonize olmayan radyasyona örnek; radyo dalgaları, mikrodalgalar, görünür ışık, kızılötesi ve oldukça kısa boylu olanlar dışındaki mor ötesi [10].

1.12. Radyasyonun Biyolojik Etkileri

İnsan sađlıđı üzerine radyasyonun yaratabileceđi etki uzun zamandan beri bilinmektedir. Radyasyonun etkileri; radyasyon hastalıkları, yanıklar, kanser, kalıtsal bozuklular ve ömrün kısalması olarak sıralanabilir. Çok büyük oranlarda radyasyona maruz kalınması durumunda ani ölümler gerçekleşmektedir.

Bilim insanları ve arařtırmacılar yıllar boyunca radyasyonun insanlar üzerine etkilerini dair birçok çalışma yapmışlardır. Bu çalışmalar kapsamında radyasyon kazaları, tıbbi ve endüstriyel uygulamalar, atılan atom bombaları ve Çernobil kazası sonucu maruz kalınan radyasyon dozunun etkileri arařtırılmıştır. Bunlara ek olarak denek hayvanları üzerinde yapılan radyasyonun etkilerine dair çalışmalar da devam etmektedir. Yapılan bu çalışmalar ile yüksek dozda radyasyona maruz kalındığı takdirde oluşabilecek hasarlar hakkında önemli bilgilere ulařılmasına rağmen düşük dozlar için aynı şeyi söylemek mümkün değildir. Aynı zamanda radyasyondan kaynaklı kanserler ile ilgili çalışmalar ise belli oranda radyasyona maruz kalmış olan hasta grupları üzerinde devam etmektedir. Bu gruplar atom bombası sonucu sađ olarak kurtulanlar, tıbbi ışınlamalara maruz kalan hastalar, çevreyi yayılan atıklardan etkilenen ve mesleđi geređince ışınlamaya maruz kalan hastalardan oluşmaktadır.

Radyasyona maruz kalındığı takdirde radyasyonun hücreyle etkileşimi sonucunda kromozomda hasarlar meydana gelerek bedensel ve kalıtsal olan biyolojik etkiler oluşur. Bedensel etkiler radyasyona maruz kalmış kişinin kendi bedeninde meydana gelen hasarlardır, kişinin kendisinden sonra gelecek olan nesillerde çıkan hasarlar ise kalıtsal etkilerdir. Kalıtsal ve bedensel etkiler gecikmiş ve deterministik etkiler olmak üzere 2 farklı kategoriye ayrılır. Deterministik etki, kısa sürede bir defada yüksek dozda radyasyona maruz kalınması durumunda ortaya çıkabilen hasarlardır. Sonuç olarak bu etkide hücre ölümü gerçekleşir ve eşik doz değeri yüksektir. Gecikmiş etkilerdeyse düşük dozda radyasyona maruz kalınması ile kişinin kendisinde yada çocuklarında oluşabilecek etkilerdir. Kalıtsal etkiler ile kanser gecikmiş radyasyon etkisidir ve belirli bir eşik dozu mevcut değildir [10].

Radyasyonun neden olduğu kalıtsal hasarlar radyasyonun zarar verdiği üremeye ilgili hücreler üzerindeki etkilerdir. Çizelge 1.7 'de Uluslararası Radyasyondan Korunma Komisyonu (ICRP)'nun radyasyon çalışanları ve halk için radyasyonun neden olduğu kalıtsal bozukluklar ve kanser ile ilgili risk faktörü verilmektedir.

Çizelge 1.7. Radyasyondan Kaynaklı Kalıtsal Bozukluklar Ve Kanserle İlgili Risk Faktörleri [11]

Radyasyona Maruz Kalmış Gruplar	Ölümcül Kanser (%Sv ⁻¹)	Ölümcül Olmayan Kanser (%Sv ⁻¹)	Kalıtsal Etkiler (%Sv ⁻¹)
Çalışanlar	4	0.8	0.8
Halk	5	1	1.3

Bu risk seviyelerine dayanarak ICRP radyasyon çalışanları ve halk için doz sınırları belirlemiştir. Radyasyonla çalışanlar ve halk için radyasyon doz hızları ile farklı organlara ait doz hızları Çizelge 1.8' de verilmiştir.

Çizelge 1.8. Çalışan Ve Halk İçin Radyasyon Doz Hızları[3]

		Çalışanlar	Halk
Etkin doz sınırı (mSv)	5 yılın ortalaması	20	1
	Herhangi bir yıl	50	5
Yıllık eşdeğer doz sınırı (mSv)	Gözler	150	15
	Deri (cm ²)	500	50
	Eller ve ayaklar	500	50

1.13. Radyasyon Birimleri

İyonlaştırıcı radyasyon maddeyi ne kadar iyonize ediyorsa, maddeye o kadar doz aktarmış olur. Doz etkisi radyasyon tipi ve enerjisi ile ilgilidir. Radyasyonun etkilerini ve aktivitesini belirlemek için birimler mevcuttur. ICRU (International Commity of Radiation Units –Uluslar arası Radyasyon Birimleri Komitesi) ilk başlarda aktivite dozu için Curie (Ci), soğrulan doz için Rad, eşdeğer doz birimi için

rem ve ışınlama (poz) için de Roentgen birimlerini kabul etmiş ve kullanmıştır. 1971 yılında ICRU MKS birim sisteminin kabulü ile SI birimleri tanımlanmıştır.

Radyoaktif bir miktarı saniyede $3,7 \times 10^{10}$ bozunum oluşturuyor ise aktivitesi eski birim sistemine göre 1 Curie (Ci) olarak değerlendirilir. Bu niceliğin çok büyük olması nedeni ile μCi ($=10^{-6}$ Ci) ve pCi ($=10^{-9}$ Ci) kullanılmaktadır. Yeni birim sisteminde ise bu birim Becquerel (Bq) dir. $1\text{Bq} = 3,7 \times 10^{10}$ bozunma/sndir.

Soğurulan doz için eski birim rad (Radiation Absorbed Dose), 1 gr'lık bir maddenin üzerine 100 erg'lik enerji aktarmak anlamına gelir. SI birim sistemine göre soğurulan doz birimi Gray (Gy)dir. 1kg'lık bir kütleyle aktarılan 1Joule'lik enerji anlamına gelmektedir.

Eşdeğer doz birimi, canlı organizmaların aldığı iyonize radyasyon dozunu tanımlar. Eşdeğer doz birimi ilk başlarda rem olarak tanımlanmıştır (Roentgen Equivalent Man). SI birim sisteminde ise Sievert (Sv)' dir. Boyutu ise Joule/kg' dir.

Işınlama (doz) birimine SI da Röntgen olarak kalmıştır. 1 Röntgen (R) Normal şartlarda, yani 760 mmHg ve 0 °C' de havanın 1 kilogramında $2,58 \times 10^{-4}$ Coulomb değerinde artı ve eksi yüklü iyonlar meydana getiren X ışını ve γ miktarı olarak tanımlanır. Bu birim soğurucu maddenin değil radyasyon hüzmelerinin özelliği hakkındaki bir birimdir [9].

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Apak ve arkadaşları (1995) yılında yaptıkları çalışmada, yüksek radyoaktif ömre sahip Cs-137 ve Sr-90 radyonüklidlerinin kırmızı çamurla adsorpsiyonunu incelemişlerdir. Teknik olarak radyoaktif izleme tekniği kullanılmıştır. Bazı ilgili tuz ilaveleri sezyumun adsorpsiyonunu azaltırken, stronsiyumun adsorpsiyonunu kayde değer bir şekilde etkilemediğini gözlemlemişlerdir.

Yücel ve Özmen (1995) yılında yaptıkları çalışmada karadeniz bölgesinden elde edilen Cs-137 ile kontamine olmuş çaylarda, kumlu ve killi toprak örneklerinde sezyumun radyoaktif olarak izlenmesini çalışmışlardır. Bu çalışmada sezyuma ait göç hızını hesaplanmıştır.

Bulgakov ve Konoplev (1996), da yaptıkları araştırmada, Cs-137'nin toprak tarafından ne kadar tutulduğunu incelemişlerdir. Bu çalışmada kullanılan toprak fazı heterojen yapıya sahiptir. Difüzyonel model kullanılmıştır.

Kirchner (1997) de yaptığı çalışmada üç model kullanarak radyoizotop taşınım modelini oluşturmaya çalışmıştır.

Ivanov ve arkadaşları (1997) yaptıkları çalışmada, Çernobil sonrası Ukrayna, Beyaz Rusya ve diğer Rusya topraklarında ¹³⁷Cs ve ⁹⁰Sr dağılımını, difüzyon modelinin bir bileşenli fazını kullanmışlardır. Toprağın belirli derinliklerinde hatanın arttığını gözlemlemişlerdir.

Schuller ve arkadaşları (1997) yaptıkları çalışmada, Güney Şili'deki tarım topraklarında ¹³⁷Cs'nin dikey yönde gidişini incelemişlerdir.

Ekpo (1997) de yaptığı araştırmada, Nijerya'da belirli bir bölge olan AkwaIbom eyaletindeki yüzey toprağını incelemiştir. Çalışmasında bu bölgeye ait radyoaktivite analizini yapmıştır.

Sanford ve arkadaşları (1998) de yaptıkları araştırmada atık kumda, radyo sezyum ve stronsiyumun göçünü ve radyoizotop salınımının deneyini gerçekleştirmişlerdir.

Isakson ve Erlandson (1998), topraktaki ^{137}Cs 'nin düşey yönde ilerlemesi için bir model çalışma yapmışlardır.

Kirchner ve arkadaşları (1998), radyoizotopların topraktaki ilerleyişini kompartman modeli ile yapmışlardır. Toprakta radyoizotopların dağılımının eksponansiyel olduğunu bulmuşlardır. Ancak adsorplamanın lineer olduğu gözlenmiştir.

Dyer ve arkadaşları (1999), Sezyum ve stronsiyumun adsorpsiyonunu Pillard killeri ile denemişler, değişen konsantrasyon aralığında toprakta bulunan iyonlar açısından incelemişlerdir.

Gillett ve arkadaşları (2000) de yaptıkları çalışmalarında Cs-137 radyoizotopunun transferi konusunda toplanmış veriler üzerinden değerlendirme yapmışlardır. Bu değerlerden yola çıkarak, yöresel toprakların radyoaktivite yüklenmesi konusuna açıklık getirmeyi amaç edinmişlerdir.

Akyüz ve arkadaşları (2000), Sivrihisar-Eskişehir yöresinden alınan kil örnekleri ile sezyum ve stronsiyum iyonlarının adsorpsiyonunu incelemişler ve farklı izotermeler kullanarak adsorpsiyon davranışını formüle etmeye çalışmışlardır.

Tsai ve arkadaşları (2000) tarafından, bentonit kilinin, Cs ve Sr'un adsorpsiyon davranışları banyo yöntemi ile araştırılmıştır. Sonuçlara göre mevcut bentonit, Cs ve Sr radyonüklitleri için yüksek bir adsorpsiyon değerine sahiptir. Ayrıca hızlı bir tutma hızına sahiptir.

Murali ve Mathur (2002) yaptıkları çalışmada Stronsiyum, Americium, sezyum radyonüklitlerinin adsorpsiyon karakterlerini, bentonit ve granit üzerinde, pH, adsorban miktarı ve adsorbant konsantrasyonu bakımından incelemişlerdir.

Shahwan ve Erten (2002) tarafından yapılan çalışmada, sezyumun izotopunun kaolinit, klorit-illit ve bentonit ile adsorpsiyonun zamana, konsantrasyona ve sıcaklığa bağlı olarak değişimini radyoaktif izleme metodu ile incelenmişlerdir.

Uğur (2005) de yaptığı çalışmada Türkiye'nin dört farklı bölgesinden elde edilmiş, farklı türdeki killerin sezyum üzerine davranışını sıcaklık, pH, konsantrasyon, zaman ve kil miktarları bazında incelemiştir. Üç farklı izoterm kullanarak killerin radyoaktif maddeleri tutma özelliklerini bulmuştur.

Uğur (2011) de yaptığı çalışmada, değişik kil minerallerinin, değişik konsantrasyonlarda hazırlanmış sıvı radyoaktif atıkların ber taraf edilmesinde kullanılması çalışmasını yapmıştır. Elde ettiği sonuçlar, kilin sıvı atıkların adsorpsiyonu için çok uygun bir malzeme olduğunu ve kil boyutu azaltıkça adsorpsiyon değerlerinin arttığını tespit etmiştir.

Uğur ve ark (2012) de yaptıkları çalışmada katkılanmamış yüksek fırın cürufunun radyolojik özelliklerini araştırarak, adsorpsiyon malzemesi olarak kullanılıp kullanılmayacağını araştırmıştır.

Uğur ve ark (2011) de yaptıkları çalışmada, Söğüt seramik kilinin adsorpsiyon davranışını, kilin boyutuna, sıcaklığa, radyoaktif maddenin konsantrasyonuna bağlı olarak nasıl değiştiğini deneysel olarak incelemiştir.

Osmanlıoğlu (2016) da yaptığı çalışmada, polimerik mikro kürecikler kullanarak radyoaktif maddeleri ortamdaki uzaklaştırma deneylerini gerçekleştirmiştir. Yaptığı çalışmada düşük ve yüksek dereceye sahip sıvı atıkları kullanmıştır.

Osmanlıoğlu (2015) de yaptığı çalışmada, doğal diatomite kilini kullanarak sıvı atıkların taşınma davranışlarını incelemiştir.

Osmanlıoğlu (2015) de yaptığı çalışmada, doğal zeolitleri kullanarak sıvı radyoaktif atıkların dekontaminasyon çalışmalarında kullanılabilirliğini araştırmıştır.

3. MALZEME VE YÖNTEM

3.1. Malzeme

3.1.1. Kullanılan Absorban (Kil)

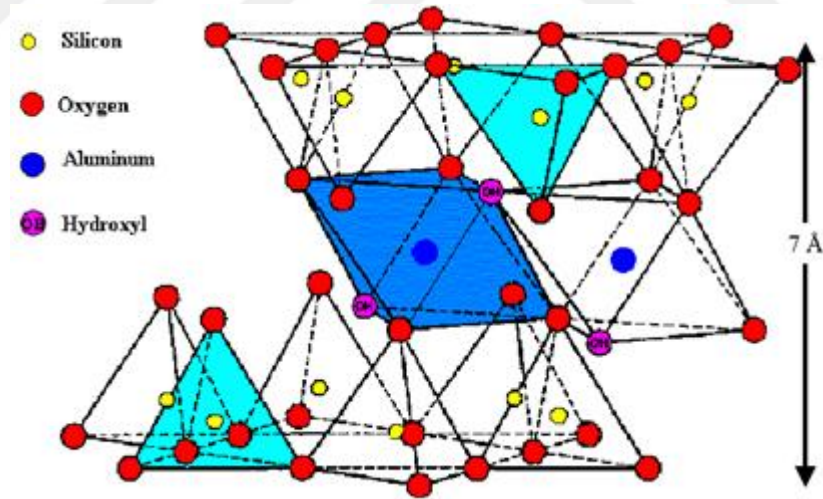
Bu tez çalışmasında radyoaktif atık depolama sistemlerinde dolgu ve izolasyon malzemesi olarak kullanılan bentonit türü kil kullanılmıştır. Bentonit türü kil yüksek oranda mineralojik açıdan montmorillonit içeren kildir.

Bentonit kili yüksek plastik özelliğe sahip, suyu ve bazik ortamı görünce şişen ve su ile temas ettiğinde genişleyen bir yapıya sahip olan kil türüdür. Bentonit bu özelliklerinden dolayı endüstride yoğun olarak kullanılmaktadır. Radyoaktif atık depolama sistemlerinde toprak zeminle teması kesme aşamasında bentonit kilinin yoğun su çekme özelliğinden yararlanır. Bu kil maddesi yağların ağartılmasında, ham petrolün ve atık suların arıtılmasında, şarabın berraklaştırılmasında oldukça sık kullanılmaktadır.

Kil mineralleri genel olarak, kendisini oluşturan katmanlar arasında su ile değişebilen katyonları içeren bir yapıya sahiptir. Silika tabakasındaki tetrahedral yapıların merkezlerine Si^{+4} yerine Al^{+3} ve Fe^{+2} , alümina tabakasındaki Al^{+3} yerine Mg^{+2} , Fe^{+2} , Zn^{+2} ve Li^{+} bulundurur. Yapısında negatif yük fazlalığı olduğu için, yüzey katmanları arasına giren katyonlar tarafından dengeye gelir. Bu durum yapısında elektro nötrallik oluşmasına neden olur. Katmanlar arasında mevcut olan Mg^{+} , K^{+} , Ca^{+2} , Na^{+} iyonları, katyonlarla yer değiştirebildiklerinden, bunlara değişebilen katyonlar ismi verilmektedir.

Killerin ana maddesi sediment veya kayalardır. Tanecik boyutu 0,02 mm'den daha küçük geniş yüzey alanına sahip bu yapılar silikat yapıdadır. Yapılan deneyler killerin su tutma ve iyon değiştirme güçlerinin oldukça fazla olduğunu ortaya koymuştur. Ayrıca kil minerallerinin içinde yoğun bir şekilde alüminyum ve demir elementlerine de bulunduğu tespit edilmiştir. Genelde tüm killer iki farklı yapı taşından oluşmaktadır. Merkezinde silisyum iyonu köşelerinde oksijen ya da

hidroksil iyonu bulunanlar ve merkezinde alüminyum iyonu ile köşelerinde oksijen ve hidroksil iyonları bulunanlar. Birinci tip killerde düzgün dörtyüzlülerin tabanları aynı düzlem üzerinde kalmak kaydıyla köşelerinden altılı halkalar halinde birleşmesiyle silika tabaka (tetrahedral yapıdadır) bulunur. Düzgün sekiz yüzlüler ise oktehdral tabaka ya da alimüna adını alır. Yüklerin eşit olması için alümina tabakasındaki oktehdralerin sadece 2/3'nün ortasında alüminyum iyonu bulunur. Alüminyumun yerini ortada magnezyum aldığıında magnezya ya da brusit tabakası oluşur. Buna bağlı olarak killer iki tabakalı, üç tabakalı veya karışık tabakalı modelde olabilirler. İki katmanlı kil minerallerinde birim hücre bir tetrahedral ve bir oktahedral tabakadan oluşmuştur. Üç katmanlı killer ise iki tetrahedral ve bir oktahedral tabakadan oluşmuştur. Karışık tipte olanlarda bu sıralanış farklı farklıdır. Alüminyumca zengin volkanik kül ile lavların ayrışmasıyla oluşan, ağırlıklı olarak smektit grubu kil minerallerinden meydana gelen ve diğer kil minerallerini de içeren killerin kalitelerini fazla bozmadan yer değiştirmiş olanlarına bentonit, yer değiştirerek başka yabancı maddelerle birlikte bir yatakta tabakalar halinde çökelmiş olanlarına da bentonitik kil denir (Şekil 3.1).



Şekil 3.1. Bentonit Kilinin Yapısı

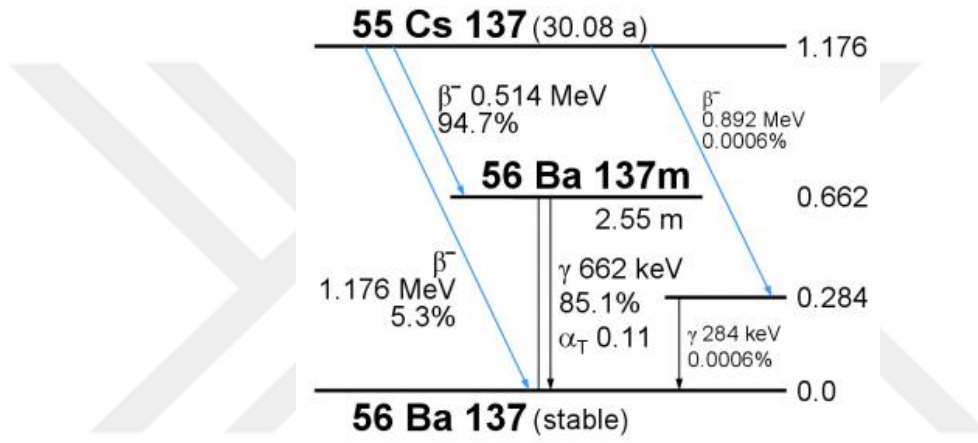
3.1.2. Kullanılan Radyoaktif Madde ve Tuz

Yapılan çalışmalarda sezyum 137 radyoaktif madde olarak kullanılmıştır. Sezyum 137 doğada bulunmayan fisyon ürünü bir radyoaktif maddedir (Şekil 3.2). Radyoaktif atık olarak nükleer güç üretiminde atık olarak çıkan en önemli radyoaktif

kaynaklardan birisidir. Radyotoksitesi orta düzeydedir. Sezyum-137'nin en etkin enerjisi 662 KeV'de enerji veren gama ışınıdır. Bozunma şeması (Şekil 3.3) de gösterilmektedir.



Şekil 3.2. Sezyum-137



Şekil 3.3. Sezyum-137'nin Bozunma Şeması

3.1.3. Ölçüm Cihazı (Gama Spektrometresi)

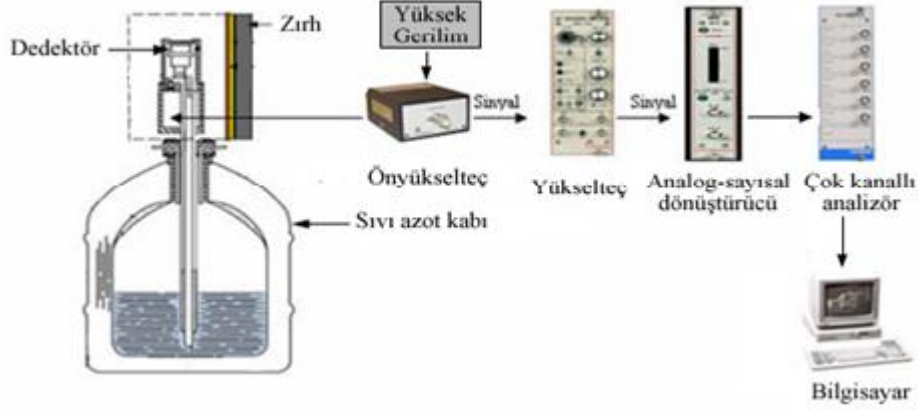
Bu çalışmada yöntem olarak yüksek saflıkta germanyum (HPGe) dedektörlü gama ışın spektrometresi kullanılarak Çanakkale yöresinden elde edilen bentonit kilinin 60 μ m'lik tanecik boyutunda adsorpsiyon davranışına bakılmıştır.

Çevresel örneklerde bulunan doğal radyoaktif serilere dahil olan radyonüklitlerin belirlenmesi amacıyla birçok radyoanalitik yöntem kullanılır. Bu yöntemlerden en çok kullanılanlarından birisi; gama spektrometrisidir. Gama spektrometreleri, maksimum duyarlık için yüksek Z'li ortamda çeşitli soğurulma süreçlerini göz önüne alarak tasarlanan foton dedektörlerini kullanır ve dedekte edilen fotonlar hakkında spektral bilgiler sağlar. Foton etkileşimlerinin karmaşıklığı gama yayıcılarının enerji spektrumunda kendisini gösterir. En ayırt edici özellik kabaca çift oluşumu eşik

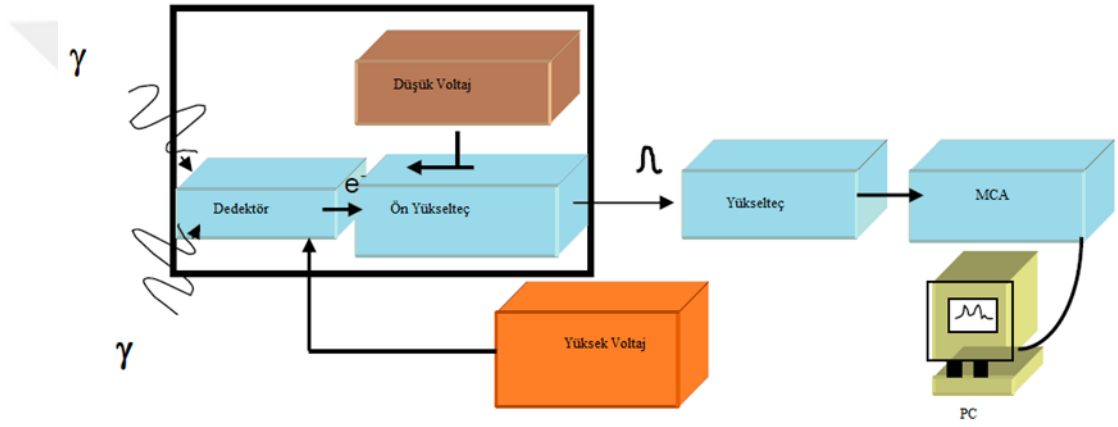
değerinin ($h\nu \leq 1.022 \text{ MeV}$) altında ve üstündeki etkileşmeler olarak ayrılabilir. Soğurulan foton enerjisi ile orantılı ışık sintilasyonları (parıldama) üreten NaI (Tl) kristali, yaygın olarak bir sintilasyon dedektörü olarak kullanılır. Işık sintilasyonları, fotonların kristal ile etkileşmelerinden (uyarılma ve iyonizasyonu) kaynaklanır. Yüklü parçacık olarak salınan elektronların hepsi, soğurulan foton enerjisinin miktarına karşılık gelen çıkış pulslarını üretmek için kristalde soğurular, böylece etkileşen fotonlar ve enerjileri belirlenir.

Yarı iletken dedektörler, negatif yük (elektron) veya pozitif yük (deşik) taşıyıcıları fazla olan n ve p tipi materyaller temas ettirilerek elde edilir. Ters besleme altında dedektörde, elektron vedeşikten arınmış bir hassas bölge oluşur. Dedektör veriminin yüksek olması için derin bir hassas bölge, derin hassas bölge elde etmek için de oldukça saf madde gerekir. Bir foton, eklem içinden geçtikçe, bir elektron, valans bandından iletim bandına yükseltilir ve elektron-deşik çifti üretilmiş olur. İçerdeki elektrik alan, elektronları eklem pozitif,deşikleri de negatif tarafa doğru sürükler. Bu da bir sayıcı ile sayılabilen bir puls meydana getirir. Şekil 3. 2’de yarı iletken dedektörlerin basit şematik gösterimi görülmektedir. Yarıiletken dedektörlerin en yaygın kullanılanları, Ge(Li), Si(Li) dedektörleridir.

Gama spektrometresi, dedektör kristaline ulaşan gama ışınlarının enerjisiyle orantılı olarak oluşan pulsların bir ön yükselteç ve yükselteçte işlendikten sonra elde edilen sinyalin analog sayısal dönüştürücüde (ADC) sayısal hale getirilmesi ve çok kanallı analizörün (MCA) hafızasında spektrum olarak kaydedilmesine imkân veren bir sistemdir. Yüksek saflıkta germanyum dedektörlü gama spektrometresi Şekil 3. 4’de Şekil 3.5’de gösterilmiştir [19].



Şekil 3.4. Yüksek Saflıktaki Germanyum Dedektörlü Gama Spektrometresi [19]



Şekil 3. 5. Basit Gama Spektrometre Sistemi [19]

3.1.4. Yüksek Saflıkta Germanyum (HPGe) Yarı İletken Dedektörleri

Germanyum dedektörler, iç bölgesi iyonlaşmış radyasyona, özellikle x ışınları ve gama ışınlarına hassas olan P-i-N yapısında yarı iletken diyotlardır. Foton dedektörün boşaltılmış hacmi içerisinde fotonla etkileştiğinde yük taşıyıcıları üretilir ve elektrik alanla P ve N elektrotlarına sürüklenir. Gelen foton tarafından dedektörde depolanan enerji ile orantılı bu yük hassas ön yükselteç ile pulsa dönüştürülür.

Germanyum düşük bant aralığına sahip olduğu için bu dedektörler yük taşıyıcılarının ısısal üretimini (zıt sızıntı akımı) kabul edilebilir bir seviyeye azaltmak için soğutulmalıdır. Aksi takdirde, sızıntı akımın indüklediği gürültü dedektörün enerji çözünürlüğünü yıkar. 77 K sıcaklığa sahip sıvı azot bu tür dedektörler için yaygın

soğutma ortamıdır. Dedektör LN2 kriostata yerleştirilen veya bağlanan vakum odasına monte edilmiştir. Böylece hassas dedektör yüzeyleri nem ve diğer bulaşmalardan korunur.

3.1.5. Gama Spektrometrik Analizler

Ölçümler; Çizelge 3.1’de özellikleri verilen bir kuyu tipi HPGe dedektör (Canberra GX5020) ile yapılmıştır. Dedektör, ortamdaki doğal fon radyasyonunun etkisini en aza indirmek için Canberra Model 747 zırhı ile zırhlanmıştır. Zırh 9,5 mm kalınlığındaki çelik iskelet içinde 100 mm kalınlığında kurşundur. Ayrıca zırhın iç kısmı 72–88 keV enerji aralığındaki Pb X-ışınlarını önlemek amacıyla 1 mm kalınlığında Cd ve Cd X-ışınlarını (24–28 keV) önlemek için 1,6 mm kalınlığında Cu ile kaplanmıştır. Zırhın taban kısmında halka şeklinde bir kurşunla kapatılmış 11,4 cm çapında boşluk vardır. Bu boşluktan dikey geometrili kriyostat ve dedektör kabloları geçmektedir. Zırh içindeki saçılan radyasyonu en aza indirmek için dedektör zırhın merkezine yerleştirilmiştir. Azot soğutması için 50 L hacminde, çift duvarlı (vakumlu) bir sıvı azot kabı kullanılmıştır [12].

Çizelge 3.1. Yüksek Safılıkta Germanyum Dedektörün Özellikleri.

Dedektör modeli	Canberra HPGeDetector
Bağıl verim	%50
Enerji ayırma gücü ve pik/Compton oranı ^{60}Co ’ın 1332,5 keV enerjideki yarı maksimumdaki tam genişliği	1,94 keV ve 69.8:1
Dedektör geometrisi ve kristal tipi	Kapalı uçlu, eş eksenli ve p-tipi Ge
Çapı ve yüksekliği	65.5 mm ve 62.5 mm
Pencere malzemesi, kalınlığı	Al, 1 mm ve 15,9 cm ²
Pencereden uzaklık	5 mm
Kriyostat ve azot kabı	Dikey geometrili

3.1.6. Pik Alanı Hesabı

Tek pikin net alanı;

$$S = G - B \quad (3.1.)$$

ile elde edilir. Burada;

S: Net pik alanı,

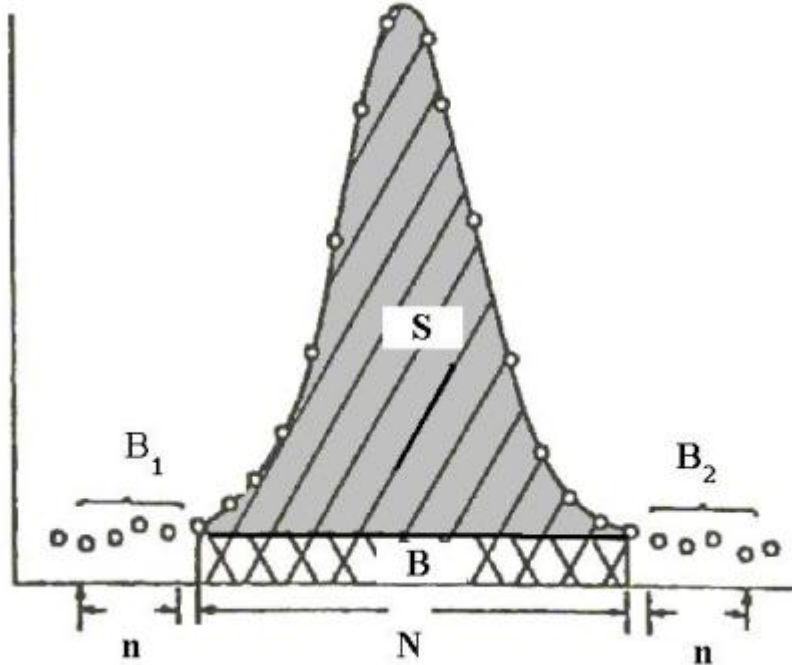
G: İlgili bölgedeki toplam sayım sayısı,

B: Doğal fondur.

Şekil 3.8.'ta gösterilen pikte B alanı,

$$B = \left(\frac{N}{2n} \right) (B_1 + B_2) \quad (3.2.)$$

eşitliğinden elde edilir.



Şekil 3.6. Pik Alanı Hesabı

Burada ;

N: İlgili pikteki kanalların sayısı,

n: Pikin sağındaki ve solundaki doğal pik kanal sayısı

$$B_1 = \left(\sum_{a=x_1}^{x_1+n-1} x_a \right) / n \text{ fotopikin sol tarafındaki doğal fon sayımının ortalaması,}$$

$$B_2 = \left(\sum_{a=x_2-n+1}^{x_2} x_a \right) / n \text{ fotopikin sağ tarafındaki doğal fon sayımının ortalaması,}$$

Net pik alanındaki belirsizlik Şekil 3.6.'de gösterilen bir fotopik için aşağıdaki formülle hesaplanır.

$$\sigma = \sqrt{G + \left(\frac{N}{2} \right)^2 \frac{(B_1 + B_2)}{n}} \quad (3.3)$$

σ : Standart sapma

G: Pikteki toplam alan (sayım)

N: İlgilenilen pikteki toplam kanal sayısı

n: Seçilen uç kanal sayısı (4 veya 2)

B1 ve B2 daha önce tanımlanmıştı. Hesaplanan pik alanındaki sayım istatistiğini yeterli derecede vurgulamak için, “yüzde hatası” aşağıdaki formülle hesaplanır:

$$\% \text{Hata} = m\sigma/NP \quad (3.4)$$

NP: Pik alanı

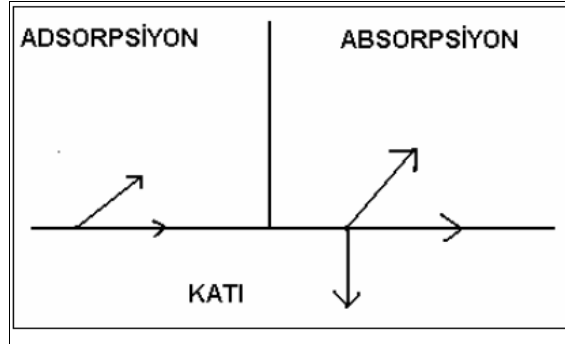
σ : Standart sapma

m: Güven katsayısı

3.2. Metod

3.2.1. Adsorbsiyon

Atom, iyon ya da moleküllerin bir katının ya da bir sıvının sınır yüzeyinde tutunmasına olayına adsorpsiyon denir. Akışkan fazda çözülmüş olan belirli bileşenlerin, bir katı adsorban yüzeyine tutunmasına dayanan ve faz yüzeyinde görülen, yüze tutma olayına adsorpsiyon denir. Katı örgüsü içinde bulunan iyonlar çekim kuvvetlerince dengelenmiştir. Ancak katı yüzeyindeki atomların dengelenmemiş kuvvetleri, çözültideki maddeleri katı yüzeyine çekerler ve yüzey kuvvetleri dengelenmiş olur. Bu şekilde çözültideki maddelerin katı yüzeyine adsorpsiyonu gerçekleşir. Katı faz üzerinde gaz adsorplanıyorsa basınç, sıvı adsorplanıyorsa konsantrasyon değişir. Yüzeyde tutunan maddenin katı içine yayılmasına absorpsiyon, absorpsiyon ve adsorpsiyon aynı anda meydana geliyorsa veya kısmen yüzey çökmesi oluyorsa sorpsiyon, tutunan taneciklerin yüzeyden ayrılmasına desorpsiyon denir [13]. Katı üzerinde adsorplanan maddeye adsorbat, adsorplayan katıya ise adsorbant ya da adsorban denir. Adsorpsiyon iki boyutlu, absorpsiyon üç boyutlu bir tutunmadır (Şekil 3.7).



Şekil 3.7. Adsorpsiyon ve Absorpsiyonun şematik gösterimi

3.2.2. Örneklerin Toplanması ve Analize Hazırlanması

Çanakkale yöresinden elde edilen Bentonit MTA aracılığı ile temin edilmiştir. Mevcut kil ilk işlem olarak saf su ile yıkanmıştır. Süzüldükten sonra etüvde 4 saat süre ile kurutulmuştur. Sonrasında öğütülmüş ve eleklerden geçirilerek 63µm'lik

tanecik boyutuna getirilmiştir. Deney aşamasından önce tekrar 2 saat süreyle 110° C'lık etüv de kurutulmuştur (Şekil 3.8)



Şekil 3.8. Hazırlanmış Bentonit Numunesi

3.2.3. Radyoaktif Solüsyonun Hazırlanması

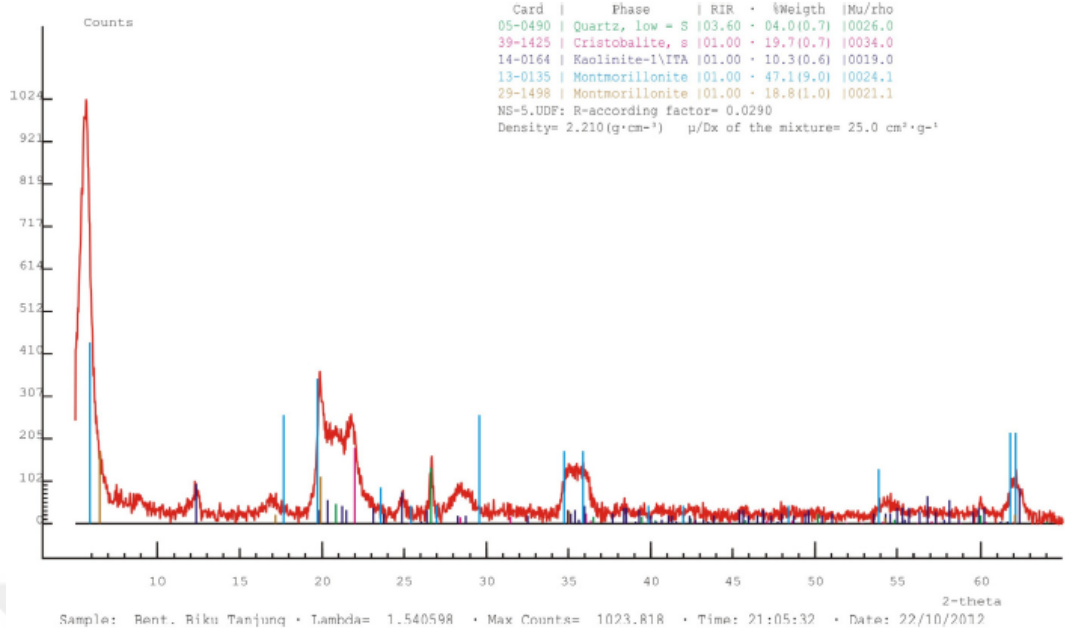
Radyoaktif solüsyonun içindeki iyonların homojen ve hızlı dağılmasını sağlamak amacıyla CsCl tuzu kullanılmıştır. Radyoaktif çözelti içinde CsCl farklı derişimlerde hazırlanmıştır. Bunun nedeni derişime bağı adsorpsiyon değışimlerini gözlemleyebilmektir. CsCl beş ayrı konsantrasyonda hazırlanmıştır. Bu konsantrasyonlar, $3,6 \cdot 10^{-5}$, $7,2 \cdot 10^{-5}$, $14,5 \cdot 10^{-5}$, $21,4 \cdot 10^{-5}$, $27,8 \cdot 10^{-5}$ ve $34 \cdot 10^{-5}$ dir.

Deneyleerde kullanılan radyoaktif Sezyum 137 Merck firmasından temin edilmiştir. Aktivitesi 15 MBq/l dir.

Radyoaktif çözelti; 300 saniye'lik sabit zaman aralığında sayıldığıında 150000 Bq/10ml bulunmuştur. Bu durumda dedektörün sayım verimi verim formülü ile hesaplanmıştır. Dedektörün verimi yaklaşık % 40 bulunmuştur. Kullanılan Bentonite ait Kimyasal içerik Çizelge (3.2) de ve XRD spektrumu (Şekil 3.11) da verilmiştir.

Çizelge 3. 2. Bentonite Ait Kimyasal İçerik

Bileşen	SiO ₂	Al ₂ O ₃	K ₂ O	CaO	MgO	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	Na ₂ O	Kayıp
% Bileşim	70,68	17,8	2,19	1,58	1,42	0,58	0,15	0,12	5,48



Şekil 3.9. Bentonite Ait XRD Spektrumu

3.3. Deneylerin Yapılışı

Deneyler sırasında banyo yöntemi kullanılmıştır. İlk önce katı sıvı oranı tayin edilmiştir. Katı sıvı oranı için 20 ml'lik deney tüpleri, 0,04 gr'lık bentonit kili alınarak, üzerine 10 ml sezyum çözeltisi ilave edildi. 20° C'lık oda sıcaklığında bir dakika ile 10 saat arasında değiştirilen, farklı zaman aralıklarında termostatlı su banyosunda karıştırıldı. Bir sonraki aşamada katı ve sıvı fazlar 3000 rpm'de 45 dakika santrüfij ile ayrıldı ve süzüldü. İkinci aşamada sezyumun kil yüzeyinde ne kadar tutulduğunu görmek üzere her numuneden 5 ml ayrıldı. Bu örnekler gama spektrometresine sayıldı.

3.4. Hesaplamalar

Ölçüm sonuçlarında her numune için aşağıdaki eşitlikler kullanılarak ayrı ayrı hesaplandı.

3.4.1. Adsorpsiyon %

$$\%Ads = \frac{A_0 - A_f}{A_0} \times 100 \quad (3.5)$$

Burada;

A_0 : Standart çözeltinin dakikadaki sayım sayısı

A_f = İşlemden sonra elde edilen sayım miktarı

3.4.2. Dağılım Katsayısı

Dağılım katsayısı denklem (3. 5) den hesaplandı.

$$K_d = \left(\frac{A_0 - A_f}{A_f} \right) \frac{V}{m} \quad (3. 6)$$

Bu denklemde ;

A_0 : Standart çözeltinin dakikadaki sayım sayısı

A_f = İşlemden sonra elde edilen sayım miktarı

V = Çözelti Hacmi(mL)

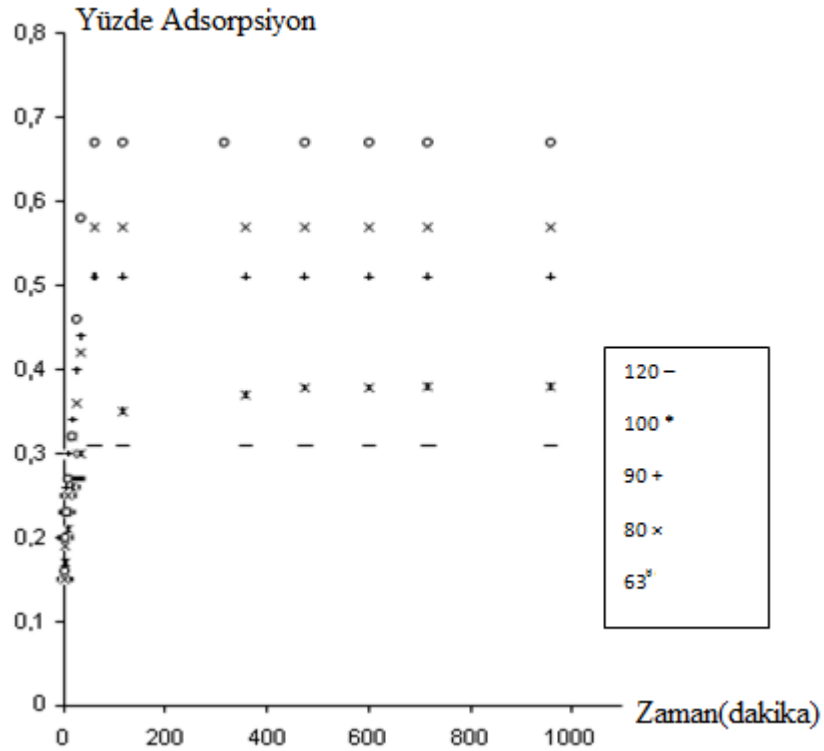
m = Adsorban miktarı (g)

Dağılım katsayısı sıvının katı üzerinde konsantrasyon değeri olarak tanımlanır. Lineer izotermi haricinde dağılım katsayısı, konsantrasyona bağlıdır. Adsorpsiyon olayında dağılım katsayısı, denge sabiti ile aynı anlama gelmektedir [14][15].

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1. Adsorbsiyonun Dengeye Ulaşma Zamanının Bulunması

Dengeye erişme süresini tayin etmek üzere 20 ° C de $14,5 \cdot 10^{-5}$ M radyoaktif sezyum ile 5 gr bentonit numunesi beş ayrı boyutta (120 μ m, 100 μ m, 90 μ m, 80 μ m, 63 μ m), 1 saat ile 10 saat arasında çalışıldı. Dengeye gelme süresi 120 dakika olarak belirlendi. Sonuçlar Şekil 4.1’de gösterilmektedir.



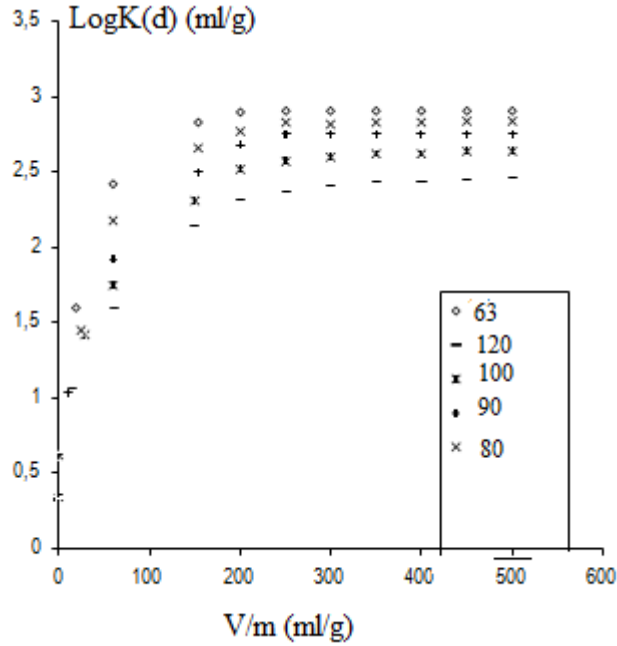
Şekil 4.1. Dengeye Ulaşma Zamanı Grafîği

Sezyum 137 radyoaktif maddesinin bentonit kili üzerine adsorpsiyon davranışı deneysel olarak incelendiğinde, ilk aşamada bentonitin değişen sezyum konsantrasyonlarını kütle bazında ne kadar zamanda adsorpladığını gözlemlemek gerekir. Bu çalışma yukarıda açıklanan koşullarda incelendiğinde, sezyum 137'nin tüm tanecik boyutlarında ve seçilen ortalama CsCI konsantrasyonunda ($14,5 \cdot 10^{-5}$ M) 120 dakikalık muamele sonrasında maksimum kapasiteye ulaştığını, zaman maksimum 10 saat tutulduğunda dahi adsorpsiyon değerinde herhangi bir değişme olmadığı görüldü. Bu nedenle diğer aşamalardaki tüm deneysel işlemler 120 dakika

işlem süresi içinde gerçekleştirildi. Dolayısıyla dengeye gelme süresi 120 dakika olarak bulundu.

4.1.1. Katı Sıvı Oranı Tayini

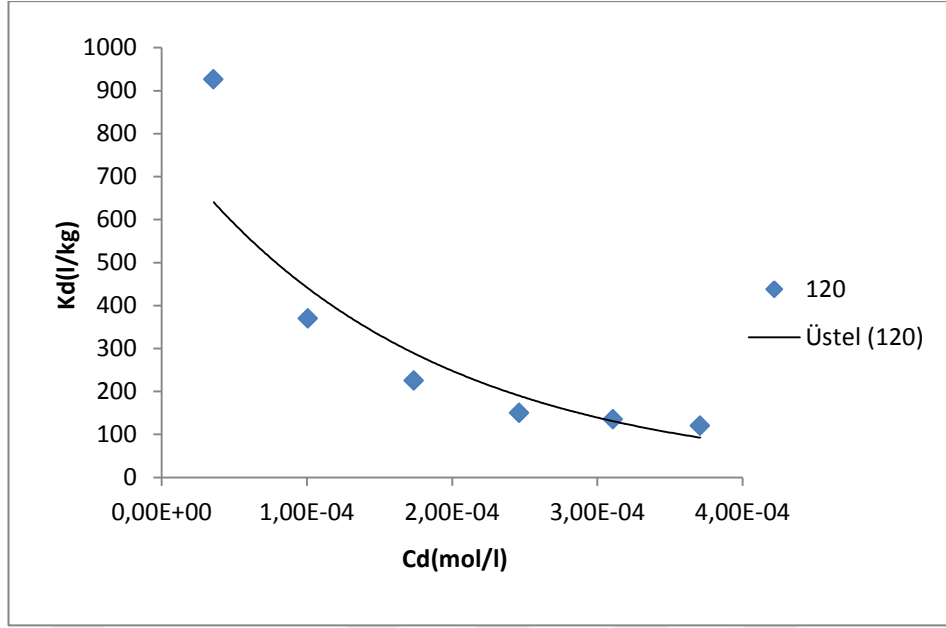
Sezyum çözeltileri ile beş farklı bentonit boyutundaki kil numuneleri üzerinde yapılan adsorpsiyon çalışmasında, katı/sıvı oranını tayin amacıyla hacim sabit alınarak kil miktarları değiştirildi. 20 °C'de $14,5 \cdot 10^{-5}$ M sezyum çözeltisinden 5 ml alınarak 0,01g, 0,02g, 0,04g, 0,1g, 0,2g, 0,4g tartılan kil örnekleri üzerine ilave edildi. Beş ayrı kil boyutunda alınan numuneler için $\log K_d$ ve V/m grafiği çizildi, V/m'nin 140 ml/g olan değeri katı sıvı oranı olarak alındı (Şekil 4.2).



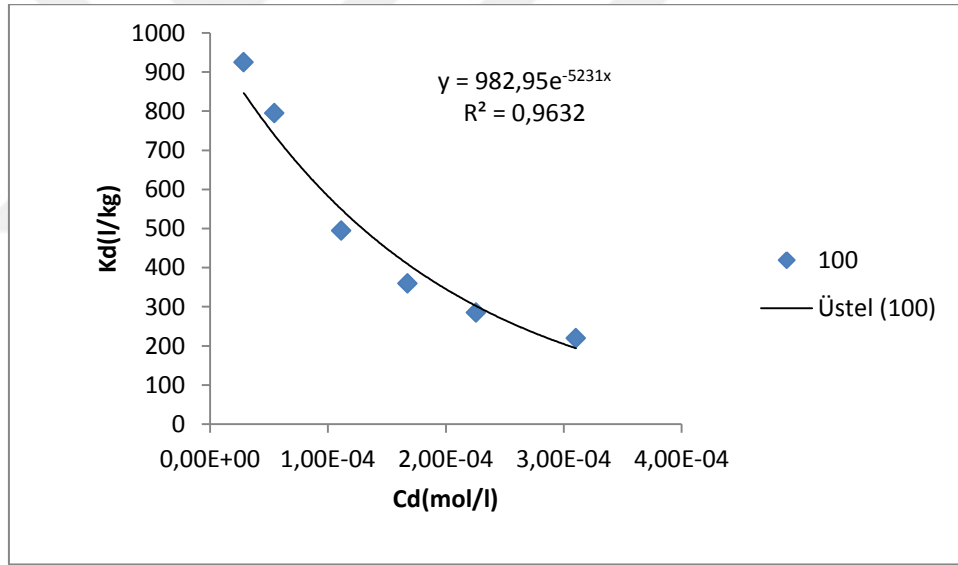
Şekil 4.2. V/m in Tayini

4.1.2. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi

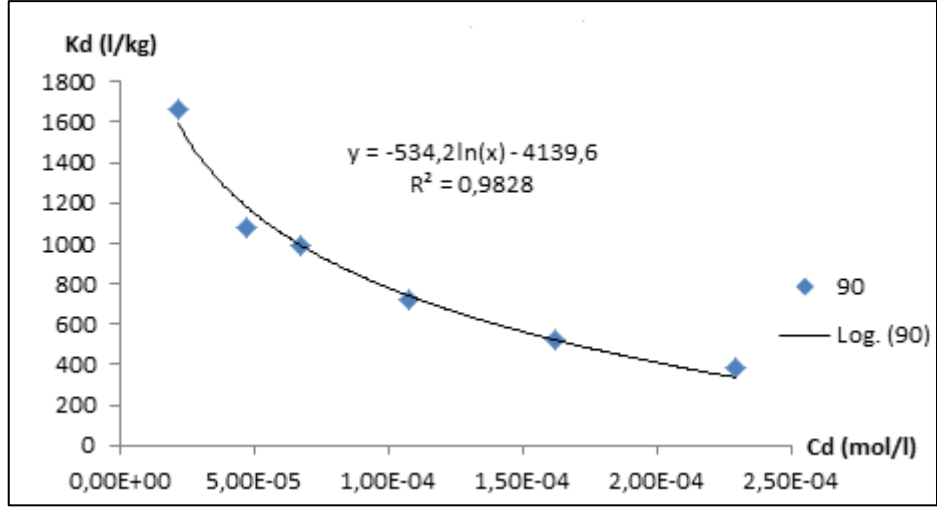
Sezyum çözeltilerinin başlangıç konsantrasyonları $3,6 \cdot 10^{-5}$, $7,2 \cdot 10^{-5}$, $14,5 \cdot 10^{-5}$, $21,4 \cdot 10^{-5}$, $27,8 \cdot 10^{-5}$, $34 \cdot 10^{-5}$ olarak hazırlandı. Başlangıç konsantrasyonu ile adsorplanan madde miktarı K_d arasındaki ilişki (Şekil 4.3), (Şekil 4.4), (Şekil 4.5), (Şekil 4.6), (Şekil 4.7), de gösterilmiştir.



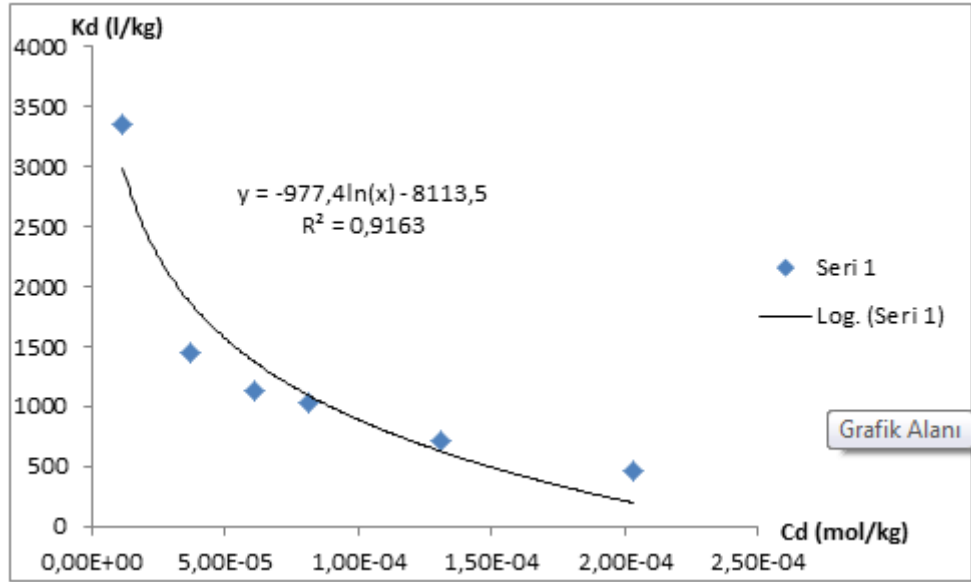
Şekil 4.3. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi(120 μ m)



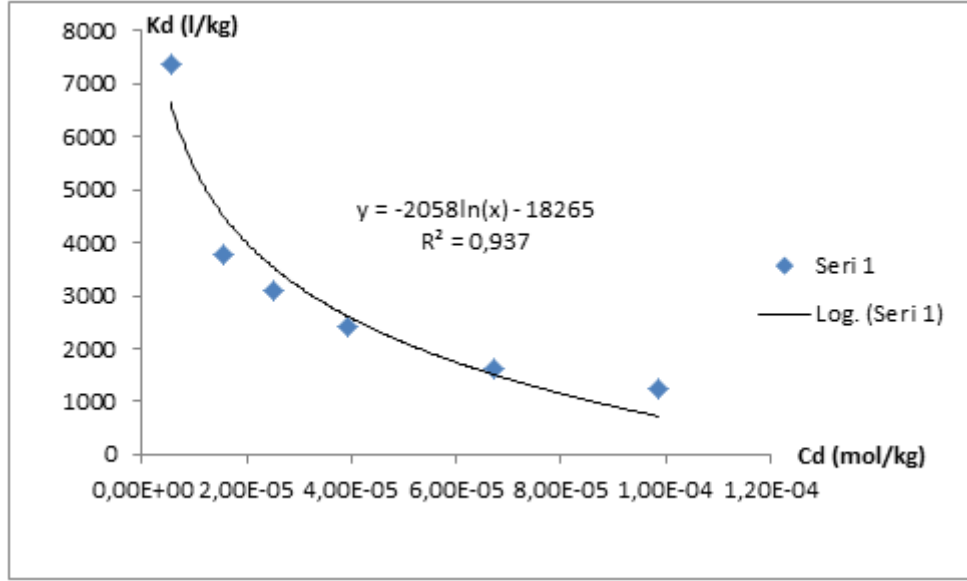
Şekil 4.4. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi(100 μ m)



Şekil 4.5. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi(90µm)



Şekil 4.6. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi(80µm)

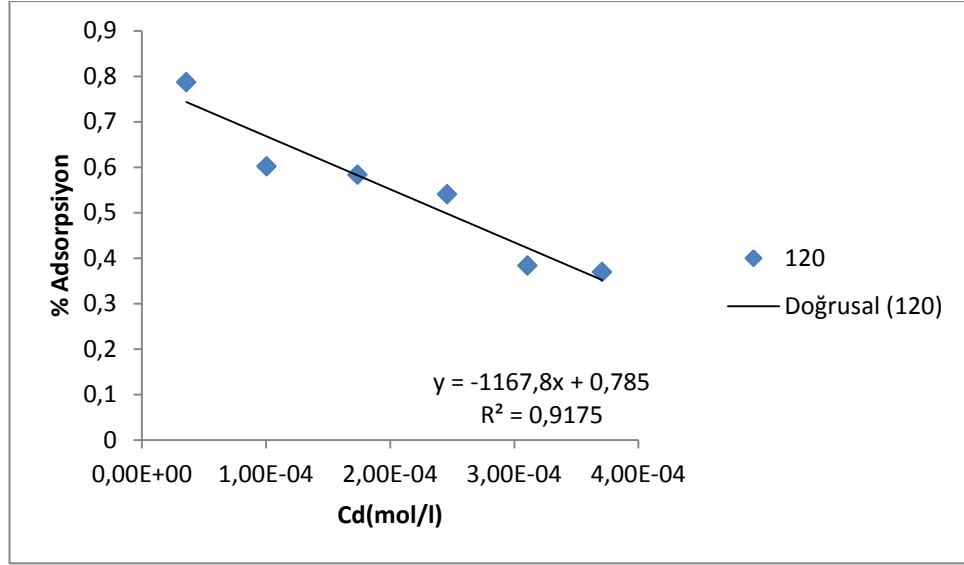


Şekil 4.7. Başlangıç Konsantrasyonu İle K_d Değerinin Değişmesi(63µm)

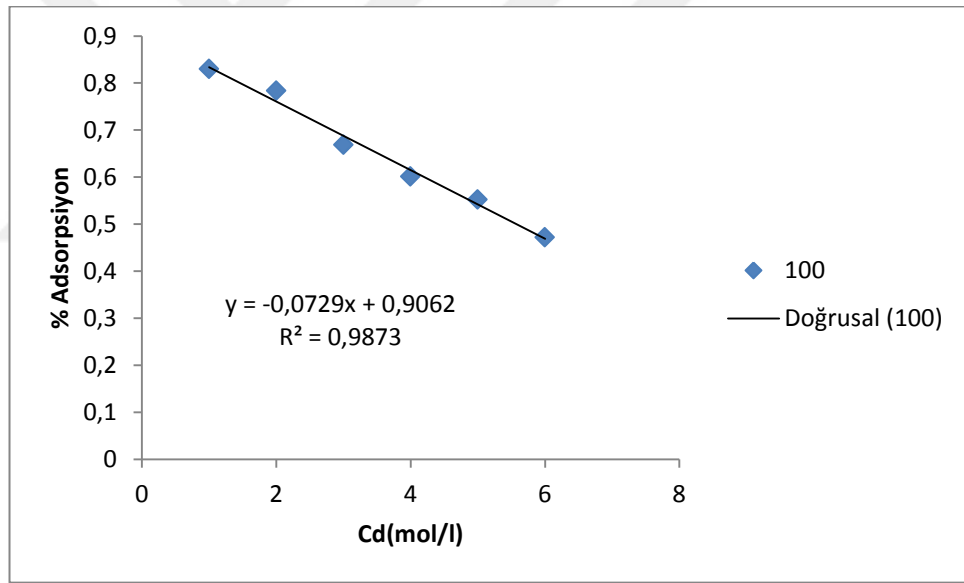
$K(d)$ Dağılım katsayısıdır. Yapılan deney sonuçlarından elde edilen matematiksel ifadeler tüm bentonit boyutları ve konsantrasyonlar için $K(d)$ ile başlangıç konsantrasyonu arasında logaritmik bir ifade bulunmuştur. Bu ifadelerin tümü %90 üzerinde elde edilen logaritmik fonksiyonlarla örtüşmektedir.

4.1.3. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi

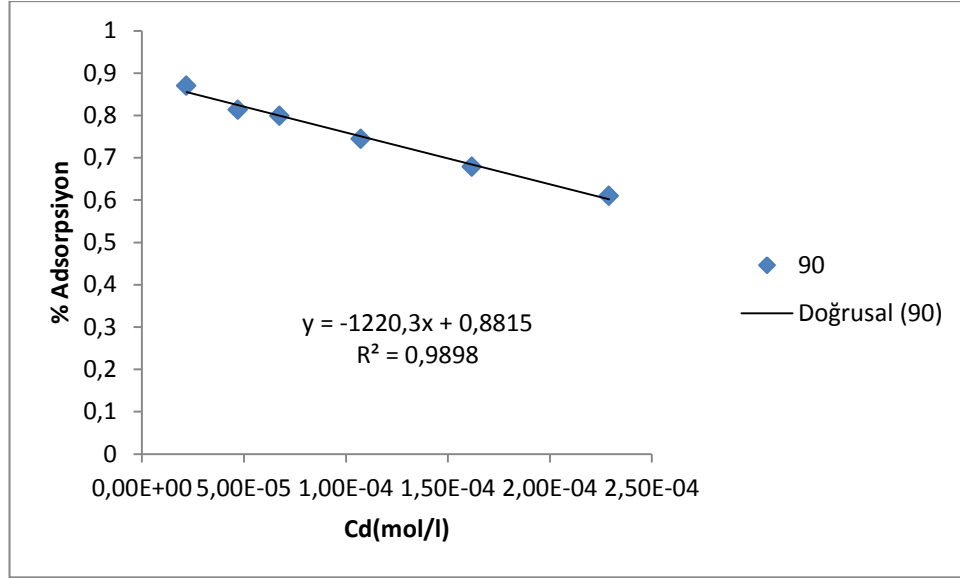
Sezyum çözeltilerinin başlangıç konsantrasyonları $3,6 \cdot 10^{-5}$, $7,2 \cdot 10^{-5}$, $14,5 \cdot 10^{-5}$, $21,4 \cdot 10^{-5}$, $27,8 \cdot 10^{-5}$, $34 \cdot 10^{-5}$ olarak hazırlandı. Başlangıç konsantrasyonu ile % Adsorpsiyon arasındaki ilişki (Şekil 4.8), (Şekil 4.9), (Şekil 4.10), (Şekil 4.11), (Şekil 4.12), de gösterilmiştir.



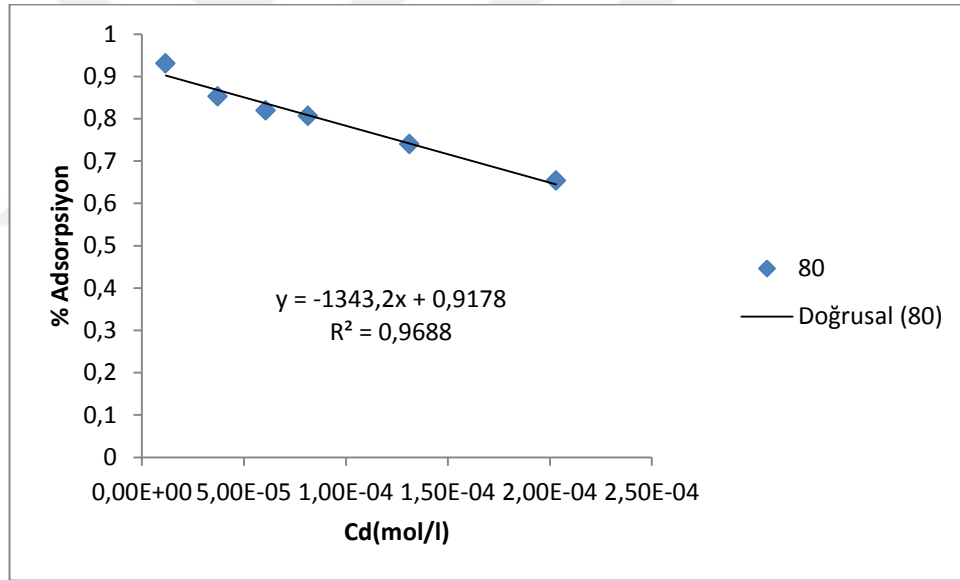
Şekil 4.8. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (120µm)



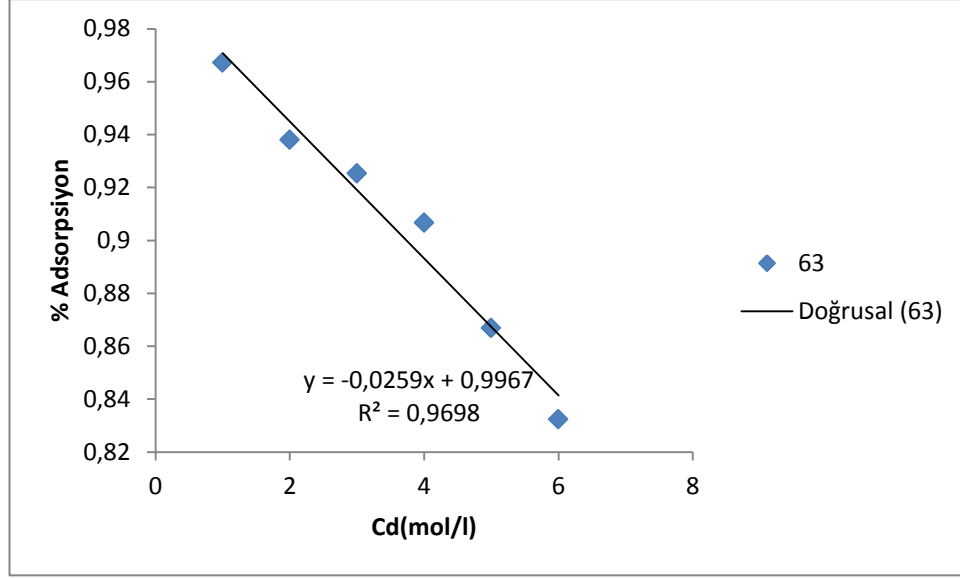
Şekil 4.9. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (100µm)



Şekil 4.10. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (90µm)



Şekil 4.11. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (80µm)



Şekil 4.12. Başlangıç Konsantrasyonu İle % Adsorpsiyon Değerinin Değişmesi (63µm)

Başlangıç konsantrasyonu ile %Adsorpsiyon değerlerinin arasında lineere yakın bir ilişki vardır. Bunun anlamı şudur. Bu adsorpsiyon deneylerinde kullanılan CsCl konsantrasyonu arttıkça, % Adsorpsiyon azalmıştır. Buna karşı kil boyutu küçüldükçe kilin yüzey alanı büyüdüğü için % Adsorpsiyon değeri kil boyutuna bağlı olarak lineer artmıştır. Veri eğrisinin örtüşme ihtimali tüm sonuçlarda % 90'dan daha büyük bulunmuştur. Bu sonuçlar yapılan deneylerin hassasiyetini göstermektedir.

5. SONUÇ VE YORUM

Radyoaktif atık yönetimi son yıllarda nükleer enerji kullanan ülkeler açısında oldukça sıkıntılı süreçlerin başlamasına neden olmuştur. Bir çok yöntem olmasına karşın ülkelerin bunlar üzerinde ortak bir karara varması mümkün olmadığı için çözümler hep kısa vadeli ve araştırma boyutunda kalmıştır.

Genel olarak kil mineralleri adsorpsiyon malzemesi olarak kullanılan oldukça kullanışlı bir malzemedir. Bu nedenle radyoaktif atık depolama sistemlerinde yüksek adsorpsiyon özelliğine sahip killerin birer izolasyon maddesi olarak kullanılması araştırılmaya değer bir konu olarak görülmüştür.

Çalışmada kullanılan Cs-137 çevresel açıdan büyük riskler oluşturan, uzun yarı ömürlü fisyon ürünü bir çekirdektir. Bu nedenlerden dolayı çalışmada tercih edilmiştir.

Radyoaktif atık depolama sistemlerinde kullanılan kil türleri çok çeşitli olup, literatürde bu konuda pek çok çalışma bulunmaktadır. Bununla birlikte, çalışmalarda kullanılan deney koşulları ve yöntemleri de farklılıklar göstermektedir. Bu çalışmada Çanakkale yöresinden elde edilmiş bentonit kil numunesi kullanılmıştır. Kil numunesinin kimyasal içeriğinde % 70,68 oranında SiO₂, %17,8 oranında Al₂O₃ bulunmaktadır. Diğer kimyasal elementlerin çok düşük oranda olduğu gözlemlenmiştir.

Deneysel çalışmalar sırasında kullanılan kilin en küçük boyutunda (60µm) XRD incelemesi yapılmıştır. XRD (X-Ray Diffraction) optik mikroskopi yöntemleri ile belirlenemeyecek kadar küçük tane boyutuna sahip minerallerin kristal yapı özelliklerine göre tanımlanmasında kullanılan bir tekniktir. Çalışmalarda kullanılan Çanakkale yöresine ait killerde saf bentonit minerali olduğu gözlemlenmiştir.

Bu çalışmada kullanılan Çanakkale yöresinden temin edilen bentonit kili, adsorpsiyon yöntemi ve Cs-137 radyonükliti kullanılarak banyo yöntemi ile çalışıldığında oldukça yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip olduğu tespit edilmiştir.

KAYNAKLAR

- [1] Martin. J "Radyasyon ve Radyasyondan Korunma Fiziği" Palme Yayıncılık, 245-265, Ankara, (2013).
- [2] UĞUR. F. A " Kil Minerallerinin Radyoaktif Maddeleri Tutma Özelliklerinin, Kilin Yapısına Ve İşlem Koşullarına Bağlılığının İncelenmesi" Doktora Tezi, Adana, (2005).
- [3] TAEK <http://www.taek.gov.tr/>
- [4] IAEA <https://www.iaea.org/>The International Atomic Energy Agency (IAEA)
- [5] IAEA (1970) Radiation Protection
- [6] IAEA (2014) Nuclear Energy
- [7] KEÇELİ. G., 2004, Sezyum ve Stronsiyum İyonlarının Toprak Fraksiyonları Üzerine Adsorpsiyon Kinetiği ve Termodinamiği. Doktora Tezi, İstanbul Üniv.
- [8] CREMERS A., ELSEN A., PRETER P. D., MAES A., (1988), Quantitative Analysis of Radiocesium Retention in Soils. Nature (Macmillan Mag. Ltd) 335, (6187) 247-249.
- [9] KRANE, K. S "Nükleer Fizik 2.Cilt", Palme Yayıncılık, Ankara, 444-445 (2002).
- [10] SORENSON.S "Physics in Nuclear Medicine (Fourth Edition)", UK, 435-439(2013).
- [11] ICRP (International Commission Radiation Protection) (1990)(No:60)
- [12] KNOLL. G, Radiation Detection and Measurement, 4th Edition
- [13] AKSOYOĞLU S., (1990), Cesium Sorption on Mylonite, Journal of Radioanal. And Nucl. Chem., Articles, Vol. 140, no.2, 301-313.
- [14] KHAN ACADEMY <https://www.Khanacademy.org>
- [15] E. GONZALES-PRADAS, M. VILLAFRANCA-SANCHEZ, A. Gallego-Campo, D. Urena-Amate&M. Socias-Viciana., 1996, J. Chem. Tech. Biotechnol, Vol 69, 173-178.
- [16] ERTEN H. N., GÖKTÜRK H, HATİPOĞLU S., EYLEM C. (1989), Radyoaktif Cs⁺, Sr⁺⁺ Ve Ba⁺⁺ İyonlarının Kil Mineralleri Ve Toprak Fraksiyonları Tarafından Adsorplanması. Radyoak. Atık. Çevre Ve Sağlık Semp. Bildirileri (Boğaziçi Ün. Yay.) 451- 464.
- [17] FAHAD A.A., ALI A. W., SHIHAB R.M., (1989) Mobilization And Fractional Of Cs- 137 İn Calcareus Soils. J. Radioanal. Nucl. Chem. 130 (1), 195-201.

[18] FRIENDLANDER G., KENNEDY J. W., MACIES E. S., MILLER J. M., 1981, Nuclear And Radiochemistry, 3 Rd Edition Isbn-0-471-9. John Wiley& Sons Inc. Usa.

[19] Gezer F 2011, Fosfojips'in Doğal Radyoaktifliğinin Belirlenmesi, Çukurova Üniversitesi Yüksek Lisans Tezi, 82s

[20] NCRP 97, 1988, 'National Council on Radiation Protection and Measurements; Measurements of Radon and Radon Daughters in Air', NCRP Report No.97



ÖZGEÇMİŞ

- 1. Adı Soyadı** : Emin SERİNER
2. Doğum Tarihi : 19.12.1980
3. Ünvanı : Öğretmen
4. Öğrenim Durumu : Lisans

Derece	Bölüm/Program	Üniversite	Bitirme Yılı
Lisans	Fizik	Çukurova Üniversitesi	2002

5. Yayınlar: Uluslararası bilimsel toplantılarda sunulan ve bildiri kitabında basılan bildiriler

F.A. UĞUR, E. SERİNER “Investigation Of Radionuclides Used In Nuclear Medicine For Diagnostic Purposes”, International Workshop on Theoretical and Experimental Studies Nuclear Application and Technology, “TESNAT, 2015”, Poster Sunumu