

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ ENERJİ ENSTİTÜSÜ

**SEZYUM (Cs) VE STRONSIYUM (Sr) İÇEREN ATIKLARIN
İMMOBİLİZASYONU İÇİN SERAMİK MATRİSLERİN GELİŞTİRİLMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Neslihan YANIKÖMER

Nükleer Araştırmalar Anabilim Dalı

Radyasyon Bilim ve Teknoloji Programı

ARALIK 2017

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ ENERJİ ENSTİTÜSÜ

**SEZYUM (Cs) VE STRONSIYUM (Sr) İÇEREN ATIKLARIN
İMMOBİLİZASYONU İÇİN SERAMİK MATRİSLERİN GELİŞTİRİLMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**Neslihan YANIKÖMER
(302141014)**

Nükleer Araştırmalar Anabilim Dalı

Radyasyon Bilim ve Teknoloji Programı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Sema ERENTÜRK

ARALIK 2017

İTÜ, Enerji Enstitüsü'nün 302141014 numaralı Yüksek Lisans öğrencisi Neslihan YANIKÖMER, ilgili yönetmeliklerin belirlediği gerekli tüm şartları yerine getirdikten sonra hazırladığı “Sezyum (Cs) ve Stronsiyum (Sr) İçeren Atıkların İmmobilizasyonu İçin Seramik Matrislerin Geliştirilmesi” başlıklı tezini aşağıda imzaları olan jüri önünde başarı ile sunmuştur.

Tez Danışmanı : **Prof. Dr. Sema ERENTÜRK**
.....
~~İstanbul Teknik Üniversitesi~~

Jüri Üyeleri : **Prof. Dr. Üner ÇOLAK**
.....
İstanbul Teknik Üniversitesi

Prof. Dr. Volkan GÜNAY
.....
Yeditepe Üniversitesi

Teslim Tarihi : 17 Kasım 2017
Savunma Tarihi : 15 Aralık 2017

Aileme,

ÖNSÖZ

Bu Yüksek Lisans Tez çalışmasında, önemli fisyon ürünlerinden olan stronsiyum ve sezyumun immobilizasyonu kullanılmak üzere seramik matrisler geliştirilmiş ve atık immobilizasyonu gerçekleştirilip elde edilen atık formu incelenmiştir.

Yüksek Lisans eğitimimin tez aşamasında engin bilgi birikiminden faydalandığım, hem akademisyenliğe hem de hayata dair karşılaştığım sorunlarda tecrübelerini benimle paylaşan çok değerli hocam Sn. Prof.Dr. Sema ERENTÜRK'e hoşgörüsü ve sonsuz sabrından dolayı şükranlarımı sunarım.

Ayrıca, bu yüksek lisans tezi süresince, katkılarını esirgemeyen, hem akademik hem kişisel gelişim alanındaki yakın alaka ve desteğinden dolayı Doç.Dr. Sevilay HACİYAKUPOĞLU'na teşekkürü borç bilirim.

Üretimi yapılan seramiklerin ultrasonik testlerini ve XRD analizini gerçekleştiren, TAEK Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'ne, XRF ve ICP-ES testlerini gerçekleştiren Maylab AŞ. Madeni Yağ Laboratuvarları'na ve FTIR analizi için İTÜ Kimya Bölümü'ne katkılarından dolayı teşekkür ederim.

Son olarak, bu yüksek lisans süresince beni manevi yönden destekleyen değerli aileme, arkadaşlarım Sinan ASAL ve Çağlar TANGÖR'e sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Bu çalışma İstanbul Teknik Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi tarafından desteklenmiştir (Proje Numarası: 39767). Bu Yüksek Lisans çalışmasını destekleyen İTÜ Bilimsel Araştırma Proje Birimi'ne teşekkür ederim.

Kasım 2017

Neslihan Yanıkömer
(Makine Mühendisi)

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖNSÖZ	vii
İÇİNDEKİLER	ix
KISALTMALAR	xi
SEMBOLLER	xiii
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xv
ŞEKİL LİSTESİ.....	xvii
ÖZET	xix
SUMMARY	xxi
1. GİRİŞ	1
2. GENEL BİLGİLER.....	5
2.1 Radyoaktif Atıklar.....	5
2.2 Radyoaktif Atıkların Sınıflandırılması.....	5
2.2.1 Muaf atıklar.....	6
2.2.2 Çok kısa ömürlü atıklar.....	6
2.2.3 Çok düşük seviyeli atıklar.....	6
2.2.4 Düşük seviyeli atıklar.....	6
2.2.5 Orta seviyeli atıklar.....	6
2.2.6 Yüksek seviyeli atıklar.....	7
2.3 Radyoaktif Atık Kaynakları	7
2.4 Radyoaktif Atıkların İmmobilizasyonu.....	10
2.4.1 Radyoaktif atıkların katılaştırılması.....	10
2.4.1.1 Katılaştırmada kullanılan genel yöntemler	10
2.4.1.2 Yüksek düzey atıkların katılaştırılmasında kullanılan malzemeler ...	11
2.5 Doğal Mineraller	17
2.5.1 Zeolitler.....	17
2.5.2 Bentonitler.....	19
2.6 Seramiklerde Sinterleme	21
2.6.1 Sıvı faz sinterleme.....	24
3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR.....	27
3.1 Matris Malzemelerin Hazırlanması	27
3.2 Atık İçeren Seramik Matrisli Malzemelerin Hazırlanması	28
3.3 Atık İçeren Seramik Bileşimlerin Elastik Sabitlerinin Belirlenmesi	31
3.3.1 Ultrasonik test	31
3.3.1.1 Ultrasonik dalga çeşitleri	32
3.4 Atık İçeren Seramik Bileşimlerinin Kimyasal Dayanım Testleri	33
3.5 Atık İçeren Seramik Bileşimlerinin Yapısal Karakterizasyonu	33
3.5.1 FTIR.....	33
3.5.2 XRF.....	34
3.5.3 ICP-ES	35
3.5.4 XRD	35
4. DENEY SONUÇLARI.....	37

4.1 Ön Deneylerin Sonuçları	37
4.1.1 Sinterleme sıcaklığının etkisi	37
4.1.2 Sinterleme süresinin etkisi	38
4.1.3 Bağlayıcı etkisi	39
4.2 Ultrasonik Test Sonuçları	39
4.3 Kimyasal Dayanım Testinin Sonuçları.....	40
4.4 Yapısal Karakterizasyon Testlerinin Sonuçları	43
4.4.1 FTIR analizi sonuçları	43
4.4.2 XRF analizi sonuçları.....	46
4.4.3 ICP-ES analizi sonuçları	48
4.4.4 XRD sonuçları.....	48
5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	53
KAYNAKLAR.....	56
ÖZGEÇMİŞ	61

KISALTMALAR

EW	:Exempt Wastes
FTIR	:Fourier Transform Infrared Spectroscopy
HLW	:High Level Wastes
IAEA	:International Atomic Energy Agency
ICP-ES	:Inductively Coupled Plasma Spectrometry
ILW	:Intermediate Level Wastes
LLW	:Low Level Wastes
VLLW	:Very Low Level Wastes
XRD	:X-ray Diffraction
XRF	:X-ray Fluorescence

SEMBOLLER

ρ	: Yoğunluk	[g/cm ³]
μ	: Poisson Oranı	
E	: Elastisite Modülü	[GPa]

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 2.1 : Atık formu için bazı seramikler (Ewing, 2007).	14
Çizelge 2.2 : Synroc kompozitlerinin özellikleri (DOE, 1981).	15
Çizelge 2.3 : Bazı cam seramik atık sistemlerinin özellikleri (Hayward, 1988; Lutze ve Ewing, 1988; Speranzini ve Hayward, 1984).	17
Çizelge 2.4 : Doğal zeolitlerin oluşumlarına göre cinsleri (Köktürk, 1995).	19
Çizelge 2.5 : Bentonit gruplarının ortalama kimyasal bileşimleri (Bergaya ve Lagaly, 2006; Pusch, 2015).	21
Çizelge 4.1 : Seramik bileşimlerine ait sinterleme sıcaklıkları.	37
Çizelge 4.2 : Sinterleme sürelerine ait denemeler.	38
Çizelge 4.3 : Cs içeren seramik bileşimlerinin E ve μ değerleri.	39
Çizelge 4.4 : Sr içeren seramik bileşimlerinin E ve μ değerleri.	39
Çizelge 4.5 : İmmobilize sezyum içeren seramiklerin ortalama çözünme hızları ve çözelti pH değerleri.	42
Çizelge 4.6 : İmmobilize stronsiyum içeren seramiklerin ortalama çözünme hızları ve çözelti pH değerleri.	42
Çizelge 4.7 : Bentonit matrisli atık içeren seramiklerin elementel analiz sonuçları.	47
Çizelge 4.8 : Zeolit matrisli atık içeren seramiklerin elementel analiz sonuçları.....	47
Çizelge 4.9 : Atık immobilize edilmiş tüm seramik bileşimlerinin özütlenme hızları.	48

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2.1 : Bir reaktör korunda zamanın bir fonksiyonu olarak üreyen yeni radyonüklitler (Ojovan ve Lee, 2013).	8
Şekil 2.2 : Açık ve kapalı yakıt çevrimi şeması (Ojovan ve Lee, 2013).	9
Şekil 2.3 : Farklı atık formlarının şematik gösterimi: a. İnklüzyonlar ve habbeler içeren homojen cam, b. cam matris içinde dağılmış atık parçaları, c. Çözeltide atık fazları bulunduran seramik atık formu, d. Atık parçalarının kaplandığı seramik matriks (Donald ve diğ., 1997).	12
Şekil 2.4 : Zirkolonit ve Hollandit birim hücre yapısı (Aubin-Chevaldonnet ve diğ., 2007; Perera ve diğ., 2004).	16
Şekil 2.5 : Zeolit mineralinin yapısı (Zeolyst International, n.d.).	18
Şekil 2.6 : Montmorillonit yapısı (Montmorillonite, n.d.).	20
Şekil 2.7 : Tozların birbirine kenetlenmesi ve gözenek morfolojisinin değişimi (Ishizaki ve diğ., 1998).	23
Şekil 2.8 : Sıvı faz sinterlemenin aşamaları (German, 1996).	25
Şekil 3.1 : Bilyalı öğütücü ve 40 µm'lik elek.	27
Şekil 3.2 : Hidrolik pres.	28
Şekil 3.3 : Yüksek sıcaklık fırını ve peletler.	29
Şekil 3.4 : Yaşlandırma işlemi koşulları.	33
Şekil 4.1 : a) Bentonit , PbS ve Cs , b) Zeolit, PbS ve Cs, c) Zeolit, ve Cs içeren peletlerinin 600°C'de sinterlenme sonrası görünüşleri.	38
Şekil 4.2 : İmmobilize Cs içeren bentonit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.	41
Şekil 4.3 : İmmobilize Cs içeren zeolit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.	41
Şekil 4.4 : İmmobilize Sr içeren bentonit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.	41
Şekil 4.5 : İmmobilize Sr içeren zeolit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.	42
Şekil 4.6 : Bentonit matrisli sezyum atığı içeren seramiklerin FTIR spektrumları. ..	43
Şekil 4.7 : Bentonit matrisli stronsiyum içeren seramiklerin FTIR spektrumları.	44
Şekil 4.8 : Zeolit matrisli sezyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları.	45
Şekil 4.9 : Zeolit matrisli stronsiyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları. ..	46
Şekil 4.10 : Stronsiyum immobilize edilmiş bentonit matrisli seramiğin XRD spektrumu.	49
Şekil 4.11 : Sezyum immobilize edilmiş bentonit matrisli seramiğin XRD spektrumu.	49
Şekil 4.12 : Sezyum içeren zeolit matrisli seramiğin XRD spektrumu.	50
Şekil 4.13 : Stronsiyum immobilize edilmiş zeolit matrisli seramiğin XRD spektrumu.	50

SEZYUM (Cs) VE STRONSIYUM (Sr) İÇEREN ATIKLARIN İMMOBİLİZASYONU İÇİN SERAMİK MATRİSLERİN GELİŞTİRİLMESİ

ÖZET

Radyoaktif maddelerin başta nükleer reaktörler olmak üzere, kullanıldığı her alanda radyoaktif atıklar oluşmaktadır. Radyoaktif atıkların yönetiminde çevre ve insan güvenliğinin korunması ulusal idarelerin kontrolü altında olsa da temelde uluslararası işbirliği ile oluşturulan ilkeler ve yükümlülükler altında bir denetim mekanizması söz konusudur.

Nükleer reaktörlerde enerji üretimi sonucunda ortaya çıkan yüksek düzey radyoaktif atıkların bertarafı radyoaktif atık yönetiminin en önemli konularındandır. Yüksek enerjili ve uzun yarı ömürlü radyonüklitleri barındıran bu atıkların kalıcı olarak saklanması gerekmektedir. Atıkların kalıcı saklama öncesi, taşınmasının, saklanmasının ve depolanmasının kolay hale getirilmesi için katı bir forma dönüştürülmesi tercih edilen bir yöntemdir. Katılaştırma işlemi ile matris bir malzeme içine hapsedilen radyonüklitlerin çevreye salınımı ve çevreyle olası etkileşimi minimize edilmiş olur.

Seramik malzemeler, nükleer teknolojinin birçok alanında olduğu gibi radyoaktif atıkların immobilizasyonu için de kullanılan malzemelerdir. Bu alanda kullanılan geleneksel malzemeler olan borosilikat camlara karşı yüksek kimyasal ve mekanik dayanım gibi üstünlükleriyle seramikler, son yıllarda yapay ve doğal olarak geliştirilmeye devam edilmektedirler.

Bu çalışmanın amacı, nükleer atık yönetiminde önemli bir yeri olan fisyon ürünlerinden Sezyum ve Stronsiyum'un immobilizasyonu için temel beklentileri sağlayabilen, düşük işlem maliyetli, düşük sıcaklıkta hazırlanabilen, kimyasal kararlılığı yüksek, özütlenabilirliği düşük seramik matrisli malzemeler geliştirmektir.

Bu amaçla, immobilize edilmesi düşünülen fisyon ürünlerinin kalıcı saklama alanlarında tercih edilen doğal mineraller olan zeolit ve bentonit seramiklerin ana matrisi olarak kullanılmıştır. Sezyum ve Stronsiyum'un kimyasal kararlı tuzları kullanarak üretilen atık içeren seramiklerin elastik sabitleri ultrasonik metot ile belirlenmiştir. Yaşlandırma işlemine tabi tutulan seramiklerin kimyasal kararlılığı araştırılmıştır. Atık immobilize edilmiş seramiklerin atık formu olarak performanslarına ilişkin detaylı bilgi, yapısal karakterizasyon testleri ile sağlanmıştır.

Seramik malzemelerden salınan Cs ve Sr miktarlarını belirlemek için ICP-ES ile seramiklerin özütlenme hızları bulunmuştur. Atık immobilizasyonunda kullanılan bir malzeme için en önemli kriterlerden biri radyonüklit salınımını minimize etmek olduğundan, üretilen seramiklerin atık formu olarak performansını değerlendirmek için özütlenme hızları esas alınmıştır.

DEVELOPMENT OF CERAMIC MATRICES FOR IMMOBILIZING CESIUM (Cs) AND STRONTIUM (Sr)

SUMMARY

There are 439 nuclear reactors in the world with a total installed power of 375.9 GWe and 13.5% of the world's electricity generation. By the time of 2030 its planned to have 331 more nuclear reactors to be set into operation. From a typical 1000 MW nuclear power plant produces approximately 30 tons of nuclear waste in a year. All around the world this number is around 12000 tons for a year. With constant growth of energy consumption and needs, these numbers are unavoidably will increase.

In all fields, foremost nuclear reactors, where radioactive materials are used radioactive wastes are produced. Even though public and environmental safety against radioactive wastes are usually under control of national authorities, there is an inspection mechanism which works under the principles and obligations established by international cooperation.

One of the most important aspect of the nuclear waste managment is the disposal of the radioactive wastes that produced by nuclear reactors while energy is being produced. Contain highly energized radiaonuclides with a long half-life these wastes must storage permanently. General way of disposal these wastes are burying them under great depths on earth which makes old mines perfect locations for this purpose. Geological formations like salt, basalt and tuff, because of their resistance against underwater, are suitable locations for geological repositories. These high level wastes which are stored to be contained for thousands of years, need couple of hundred years to lost their activities.

Solidification of the wastes before disposal is a preferred method for the purpose of immobilize the high level radioactive wastes. It is both safe and economical to convert wastes containing high-energy and long-lived radionuclides into solid waste forms by mixing them with chemically compatible binding matrix materials To convert the wastes containing highly energized, long half-life radionuclides into solid waste forms by mixing them with chemically compatible binding matrix materials has both safe and economical advantages. Trapped inside the matrix material by solidification, the possibility of radionuclides effect enviroment is minimized.

Ceramic materials, used for many aspects in nuclear technology, are suitable for immobilization of the radioactive wastes. Against traditonal materials like borosilicate glasses which are broadly used in waste managment, ceramics, with their higher mechanical and chemical durability, are being produced both naturally and artifically in recent years.

Zeolite and bentonite minerals because of their pore sizes and cation exchange capacities in their crystal structers are effective capturing radioactive ions. These minerals show selectiveness based on radionuclides types and are very effective at capturing certain type of radionuclides.

^{137}Cs and ^{90}Sr are the most important fission products of spent fuels. Occupying big part of the high level wastes, one of these radionuclides ^{137}Cs has a half life around 40 years in human body. ^{90}Sr , on the other hand, because of its high level β particles, damages bones and teeth on body when exposed. Contrary to other fission products with their long half life, high activity and ability to deal biological damage, its very important in nuclear waste management to separate cesium and strontium from high volume of wastes and storage effectively.

The aim of this study is to develop ceramic matrix materials have low-cost, high mechanically and chemically durability, low leach rate, low processing temperature, and qualifications to provide fundamental expectations for the immobilization of Cs and Sr from fission products that have an importance in nuclear waste management.

With this goal in mind, natural analogue minerals zeolite and bentonite preferred as main matrix for ceramics because of their concord in geological formation, for permanent storage the fission products which are considered to immobilize. Produced by using Cs and Sr's chemical stable salts, waste immobilized ceramics were tested for their physical and chemical durabilities.

Material production was performed by liquid phase sintering. After the sintering process, it was observed how the phases were formed in the waste immobilized ceramics, and how the cesium and strontium were joined to the structure in two different mineral types.

Determining elastic constants of waste immobilized ceramics is performed by ultrasonic method which is a non-destructive method. With acquired velocity value of longitudinal and shear waves, ceramics elastic moduli (E), and Poisson's ratio (μ) values was calculated.

Results showed that the Poisson's ratio is independent from amount of loading waste, and does not change significantly for similar mineral and waste type's compositions.

It was observed that Elastic moduli of Sr immobilized ceramics is three times higher than Cs immobilized ceramics.

For chemical durability test, aging method test was used. Inside distillate water at 90°C the ceramics were kept for a week, while being checked periodically for mass loss and change of pH value and their unit mass losses was calculated.

As a result of chemical durability tests with waste immobilized ceramics, Sr immobilized ceramics with zeolite matrix have lower leach rates by comparison with the ceramics with bentonite matrix.

Materials detailed information of performance as a waste form was acquired with further characterization tests after durability tests.

The elemental analysis results with XRF showed that the bentonite mineral contained strontium in its own structure. Similarly, it is observed that the zeolite mineral contains strontium in its own structure, even though it is at a lower concentration than the bentonite. However, cesium was not found in the mineral structure.

Amount of Cs and Sr released from ceramic matrices determined by finding leach rates of ceramics with ICP-ES. Because it is an important criterion to assess, leach rate was being taken as a basis for produced ceramics.

Sr immobilized ceramic with bentonite matrix has maximum waste loading capacity which is 55% (wt).

It was observed that the process temperatures of the produced ceramics are lower than the glass matrix immobilization materials unlike their waste loading capacities.

Taking all the results into consideration, it has been determined that the ceramic structures prepared using clay minerals which is the preferred barrier materials of the nuclear waste disposal areas, have usage for immobilization of radioactive wastes.

1. GİRİŞ

Enerji, ekonominin ve son yıllarda çevrenin en önemli unsurlarından biridir. Özellikle nüfus artış hızının yüksekliği, enerji talebini de artırmakta, bu da sınırlı (yenilenemez) enerji arzının hızlı bir şekilde tükenmesine neden olmaktadır. Enerji sektöründeki faaliyetlerin çevreye etkileri günümüzde ciddiye ele alınması gereken boyutlara ulaşmıştır. Atmosfere verilen kirleticilerin ve sera gazlarının büyük bir bölümü enerji üretimi ve tüketimi, ya da çevriminden kaynaklanmaktadır. Ülkemizde son yıllarda yapılan mevzuat düzenlemeleri ile özellikle elektrik tüketimi kaynaklı sera gazı emisyonunun kontrol altına alınması planlanmaktadır. Bu düzenlemeler, enerjinin tasarruflu tüketimi ve elektrik üretiminde yenilenebilir enerjinin ve nükleer enerjinin kullanımına yöneliktir.

Nükleer enerji, fosil yakıtların yerini alabilecek ve küresel talebi büyük ölçüde karşılayabilecek, sera gazı salınımı yapmayan tek güç kaynağıdır. Nükleer enerji kullanımından kaynaklı radyasyona maruz kalma riski kamuoyunda tedirginlik yaratsa da güvenlik standartlarına uygun şekilde işletilen bir nükleer reaktörün yaydığı iyonlaştırıcı radyasyon oldukça düşük miktarlardadır. Gerçekte, standart işletilen bir termik santralin, bir nükleer güç santraline kıyasla atmosfere çok daha yüksek oranlarda radyoaktif madde salınımı yaptığı bilinmektedir.

Nükleer teknoloji başta enerji üretimi nükleer çevrimlerde olmak üzere, endüstriyel tesisler, tıp, tarım, araştırma merkezleri gibi birçok alanda kullanılmaktadır. Nükleer faaliyetlerinin sonucu olarak üretilen atıkların idaresi çevre sağlığı açısından önem teşkil etmektedir. Uranyum ve toryum madenciliği, yakıt bileşenlerinin hazırlanması, zenginleştirme, kullanılan yakıtın yeniden işlenmesi, kullanılmış yakıtın depolanması ve işletme ömrü bitip kapatılan reaktörlerin devreden çıkarılması sırasında atıklar ortaya çıkmaktadır. Nükleer çevrim dışındaki diğer alanlarda radyoizotoplar kullanılmaktadır. Reaktörlerde devamlı olarak üretilen radyoizotoplar da kullanım sonrası atık olarak değerlendirilmektedir.

Radyoaktif atıkların idaresi çevre ve insan sağlığı için gerekli limitler göz önünde bulundurularak atığın üretildiği andan tecrit edildiği zamana kadar dikkatle kontrolünü ve bu işlemlerinin tümünün bağımsız kuruluşlarca titizlikle denetlenmesini içermektedir. Radyoizotopların kullanımıyla ilgili düzenlemeleri yapmak ve üretilen radyoaktif atıkların kontrolünü sağlamak için çeşitli çalışmalarla standartlar üreten ve bu konuyla ilgili dünyada yapılan çalışmaları destekleyip uluslararası koordinasyonu sağlayan kurum Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı (IAEA)'dır. Türkiye'de ise radyoaktif madde kullanımı, radyoaktif atıkların kontrolü konuları Türkiye Atom Enerjisi Kurumu (TAEK)'in yetkisinde olup, bu konuyla ilgili yayınlanan tüzük, yönetmelikler ve bu alandaki tüm faaliyetler kurumun denetiminde gerçekleştirilmektedir

Yüksek düzey nükleer atıkların üretimi nükleer yakıt çevriminden kaynaklanmaktadır. Bu tip atıkların saklanması için kalıcı saklama metodu öngörülmektedir. Yüksek düzey atık üreten ülkeler farklı depolama yöntemleri üzerinde çalışmalar yapmaya devam etmektedir. Kalıcı saklama metodu için genel olarak yerin metrelerce derinlerindeki mağaralar, eski madenler tercih edilmektedir. Tuz, bazalt, tüf gibi jeolojik yapılar yeraltı suyuna karşı dirençleri sebebiyle depolama alanı olarak uygun özellik göstermektedirler. Jeolojik depolarda binlerce yıl saklanmaya uygun olarak tasfiye edilen yüksek düzey atıkların aktivitelerini kaybetmeleri için gerekli süre ise birkaç yüzyıldır.

Bir nükleer reaktörde enerji üretimi fisyon tepkimesi ile gerçekleştiğinden yakıt çevriminin hemen her aşamasında radyoaktif atık oluşmaktadır. Bu radyoaktif atıklardan ^{137}Cs ve ^{90}Sr kullanılmış yakıtlardan ortaya çıkan en önemli fisyon ürünleridir (Taylor ve Webster, 1999). Yüksek düzey atıkların radyoaktivitesinin önemli bir kısmını oluşturan bu radyonüklidlerden ^{137}Cs 'nin vücuttaki yarı ömrü 40 yıla yakındır. ^{90}Sr ise yüksek enerjili β parçacıkları barındırdığı için vücuda alındığında kemik ve dişlerde hasara yol açtığı bilinmektedir (Suripto ve Wisnubroto, 2003). Diğer fisyon ürünlerine nazaran uzun yarı ömürleri, yüksek aktiviteleri ve yol açtıkları biyolojik hasarlar göz önünde bulundurulduğunda, radyoaktif atık yönetiminde sezyum ve stronsiyumun geniş atık hacimlerinden ayrılarak tasfiye edilmeleri önem taşımaktadır.

Katılaştırma, yüksek düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonunda oldukça sık tercih edilen bir yöntemdir. Yüksek enerjili ve uzun yarı ömürlü radyonüklidler içeren

atıkların, kimyasal olarak uyumlu bağlayıcı matris malzemelerle karıştırılarak katı atık formlarına dönüştürülmeleri hem güvenli hem de ekonomik avantaj sağlamaktadır. Katılaştırma için kullanılacak bağlayıcı matris malzemenin korozyon ve radyasyona karşı direnç, düşük çözünürlük ve geçirgenlik gibi özelliklere sahip olmaları beklenir (Filter ve Roberson, 1979). Camlar, seramikler ve cam-seramikler yüksek düzey atıkların katılaştırılmasında kullanılan matris malzemelerdir.

Nükleer endüstride yaygın olarak yakıt ve moderatör malzeme olarak kullanılan seramikler büyük miktarlarda radyoaktif atıkların immobilizasyonu için geliştirilmekte olan malzemelerdir. Seramik malzemelerin yüksek düzey atıklar için matris olarak kullanılmasının altında yatan ana düşünce analog minerallerin doğal koşullarda jeolojik dönemler boyunca kararlı durumlarını koruyabilmeleridir (Lee ve diğ., 2006).

Doğal titanat mineralini baz alarak üretilen yapay seramiklere synroc (synthetic rock) denilmektedir. Güç santrali kullanılmış yakıtlarının yeniden işlenmesi sonucu ortaya çıkan atıkların immobilizasyonu için üretilen Synroc -C tipi seramiklerde atık taşıma kapasitesi kütlece % 35'e kadar ulaşmıştır. Bu seramik tipinin 90°C'lik su içerisinde 2000 gün süreyle tutulduğu bir çalışmada tüm elementler göz önünde bulundurularak özütlenme hızının $0,1 \text{ g m}^{-2} \text{ gün}^{-1}$ değerinin altında kaldığı görülmüştür (Donald ve diğ., 1997).

$\text{NaZr}_2(\text{PO}_4)_3$ bileşimiyle tek fazlı sodyum zirkonyum fosfat (NZP) seramiği üzerinde en geniş alanda çalışma yürütülen seramik atık formudur. Sinterleme teknikleri üzerinde gelişmeler yapılarak atık taşıma kapasitesi kütlece %20'lere kadar çıkartılabilmektedir (Boatner ve Sales, 1988; Ewing ve Lutze, 1991).

Proton tip zirkonyum fosfat ($(\text{HZr}_2(\text{PO}_4)_3)$ seramiğinin matris malzeme olarak üretimi ile ilgili bir çalışmada Sr ve Cs immobilizasyonu için etkisi incelenmiştir. Isıl işlem sıcaklığının 650°C ile 1200 °C arasında ve 5 saat süresince tutulduğu bu üretim metodunda atık içeren seramik malzemenin yüksek kimyasal ve termal dayanıma sahip olduğu belirlenmiştir. 700°C sıcaklıkta malzeme özütlenme direnci bakımından üstün özellik göstermiştir (Itoh ve Nakayama, 2002; Nakayama ve Itoh, 2003).

Uygun camların kontrollü kristalizasyonu ile üretilen çok kristalli seramik malzemeler olan cam-seramikler nükleer atık immobilizasyonunda kullanılmaktadırlar. Ana faz olarak Diopsit ($\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$) içeren kalsiyum magnezyum silikat camlarıyla yapılan

çalıřmalarda kristalizasyon sıcaklıęı 800 - 1100°C arasında tutularak cam seramik üretimi gerekletirilmiřtir. Bu sisteme yüklenebilem maksimum simüle nükleer atık kapasitesi kütlece %30'dur (Donald ve dię., 1997). Ca-Ti-silikat cam-seramikleri ile yapılan bir alıřmada ise aęırlıka %50 UO₂ ieren bu malzemenin özünmeye karřı direnlerinin yüksek olduęu belirtilmiřtir (Vance ve dię., 1986).

Sulu ortamlarda radyoaktif sızdırmazlıęın belirlenmesi iin yaygın olarak Özütleme (leaching) testleri kullanılmaktadır. ¹³⁷Cs radyoizotopunun mineral katkılı imentodan özütleme etkilisinin incelendięi bir alıřmada imento hamurunun iine doęal zeolit minerali eklenmiřtir. ¹³⁷Cs gibi kolay özünebilen iyonlar iin zeolit minerali katkısının olumlu sonuçlar verdięi belirtilmiřtir (Nishi ve dię., 1992).

Mineral katkısı olarak bentonit kilinin kullanıldıęı bir bařka alıřmada ise sezyumun özütleme hızının azaltılmasında bentonit katkısının ok önemli bir etkiye sahip olduęu görölmüřtür (Brodda ve Mingxia, 1988).

Bu alıřmada nükleer atık yönetiminde önemli bir yeri olan fisyon ürünlerinden Cs ve Sr'un immobilizasyonu iin temel beklentileri saęlayabilen, düşük iřlem maliyetli, düşük sıcaklıkta hazırlanabilen, fiziksel dayanıklılıęı yüksek, kimyasal dayanıklılıęı yüksek, özütleme hızı düşük, yüksek zırhlama performanslı, seramik matrisli malzemelerin geliřtirilmesi amalanmıřtır. Bu amala, immobilize edilmesi düşünölen fisyon ürünlerinin kalıcı saklama alanlarında tercih edilen jeolojik formasyona uyumlu olması iin doęal minerallerin farklı bileřimleri seramiklerin ana matrisi olarak kullanılmıřtır.

2. GENEL BİLGİLER

2.1 Radyoaktif Atıklar

Radyoaktif atıklar, radyoaktif malzemelerin kullanımıyla ortaya çıkan ya da radyoaktif malzemelerin kontamine etmesiyle ortaya çıkan atıklardır. Radyoaktif atıklar nükleer enerji üretimi, tıbbi amaçlı radyoizotop kullanımı, tarımsal ve endüstriyel amaçlar gibi nükleer enerjinin kullanıldığı çeşitli alanlarda üretilirler.

Radyoaktif malzeme içeren tüm atıklar radyoaktif atık olarak kabul edilmemektedir. Örneğin kalibrasyon amaçlı kullanılan radyasyon kaynakları ve duman dedektörleri düşük radyasyon riski taşıdıklarında radyoaktif atık sınıflandırmasına girmezler. Kullanımdan çıkarıldıklarında radyoaktif atıklar için alınan önlemleri gerektirmezler. Bu gibi atıklar muaf kategorisindedir (Minoru and Momma, 2015).

2.2 Radyoaktif Atıkların Sınıflandırılması

Radyoaktif atık, belirli bir sınır değerinin üzerinde radyoaktiviteye sahip katı, sıvı veya gaz atıklardır. Bu sınır değerler, her ülkenin ürettiği atık özelliklerine göre saptandığından farklı kriterlere sahip çeşitli sınıflandırmalar mevcuttur. Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı (IAEA) tarafından öngörülen sınıflandırmaya göre radyoaktif atıklar;

- Muaf atıklar (Exempt Waste),
- Çok kısa ömürlü atıklar (Very Short Lived Waste),
- Çok düşük seviyeli atıklar (Very Low Level Waste),
- Düşük seviyeli atıklar (Low Level Waste),
- Orta seviyeli atıklar (Intermediate Level Waste),
- Yüksek seviyeli atıklar (High Level Waste),

olmak üzere altı kategoride toplanır (IAEA, 2009).

2.2.1 Muaf atıklar

Muaf atıklar, nükleer düzenleyici kontrol sistemi tarafından radyoaktif olarak tanımlanmamış, oldukça küçük miktarlarda radyoaktif madde içeren atıklardır. Bu atıklar, herhangi bir özel radyoaktif prosedür içermeden depolanabilen atıklardır. Radyoaktif atıklarda halktan bir bireye yılda vereceği doz 0.01 mSv'den daha azsa bu atık muaf atık olarak kabul edilir. Bu dozu sağlayacak radyonüklitin aktivitesi 0.1 Bq/g ile 104 Bq/g arasında değişir (IAEA, 2009).

2.2.2 Çok kısa ömürlü atıklar

Çok kısa ömürlü atıklar, muafiyet seviyesinin üzerinde aktivasyona sahip radyonüklitleri içeren yarı ömrü oldukça kısa olan atıklardır. Bu tür atıklar, aktivasyon seviyeleri muafiyet sınırına erişinceye kadar bekletilirler ve daha sonra da muaf atık olarak sınıflandırılırlar. ¹⁹²Ir ve ^{99m}Tc, tıp ve endüstri sektöründe kullanılan çok kısa yarı ömürlü radyonüklitlerdir (IAEA, 2009).

2.2.3 Çok düşük seviyeli atıklar

Nükleer faaliyetleri durdurulmuş tesislerin sökümü aşamasında ya da mineral ve cevherlerin işlenmesi sırasında açığa çıkan atıklardır. Muafiyet sınırlarının üzerinde aktiviteye sahip olduğu için bu atıklar, çok düşük seviyeli atık olarak sınıflandırılır. Muaf atıkların bertaraf edilmesinde uygulanan sistemin aksine bu atıklarda, radyasyondan korunma ve güvenlik açısından gerekli olan hükümlülükler uygulanır (IAEA, 2009).

2.2.4 Düşük seviyeli atıklar

Muafiyet sınırının üstündeki aktivitelerde radyonüklitler içeren ancak uzun yarı ömre sahip radyonüklitlerin sayısının sınırlı olduğu atıklardır. Bu tür atıkların depolanmasında özel izolasyon sistemleri kullanılır ve yüzeye yakın alanlarda birkaç yüz yıl muhafaza edilebilir. Bu sınıflandırma sistemi içerisinde kısa yarı ömürlü ve yüksek aktiviteli radyonüklitler ile uzun yarı ömürlü düşük aktiviteli radyonüklitleri içerir (IAEA, 2009).

2.2.5 Orta seviyeli atıklar

Uzun yarı ömre sahip radyonüklitleri içeren atıklar, orta seviyeli atıklar olarak tanımlanırlar. Bu tür atıklar, genellikle yerin birkaç yüz metre altındaki ara

derinliklerde özel izolasyon koşulları altında saklanabilirler. Bu sayede, kısa ve orta vadede erozyon etkisine karşı korunmuş olurlar. Ara derinliklerde muhafaza etmenin bir diğer avantajı da, insan faaliyetlerinden gelebilecek olumsuz etkilerin bertaraf edilmesine olanak sağlamasıdır (IAEA, 2009).

2.2.6 Yüksek seviyeli atıklar

Yüksek konsantrasyonlarda kısa ve uzun yarı ömürlü radyonüklitlerin bir arada bulunduğu atıklar, yüksek seviyeli atıklar olarak tanımlanır. Nükleer santrallerde fisyon olayı sonucunda ortaya çıkan bölünme ürünleri genellikle bu sınıfa girmektedir. Yüksek seviyeli atıklarda aktivasyon seviyesi aralığı 104-106 TBq/m³ olarak belirlenmiştir. Yüksek seviyeli atıklar, nihai depolama öncesinde, içerisinde barındırdığı radyonüklitlerin aktivite seviyesi 104 TBq/m³ seviyesine düşene kadar soğutma havuzlarında soğutulur. Daha sonra da, özel bariyer sistemleri ile birlikte yerin oldukça derinliklerine gömülerek depolanır. Yüksek seviyeli atıklar, yarılanma sürelerinden kaynaklı olarak önemli miktarda ısı üretirler. Bu nedenle, ısı yayılımı jeolojik depolama tesisi tasarlanırken göz önüne alınması gereken önemli bir faktördür (IAEA, 2009).

2.3 Radyoaktif Atık Kaynakları

Nükleer atıklar üç temel kaynaktan oluşurlar:

- Enerji üretmek ve askeri amaçlar için kullanılan nükleer yakıt çevrimi,
- Nükleer yakıt çevriminin kullanılmadığı tesisler (endüstriyel tesisler, tıp ve araştırma merkezleri),
- Nükleer kazalar.

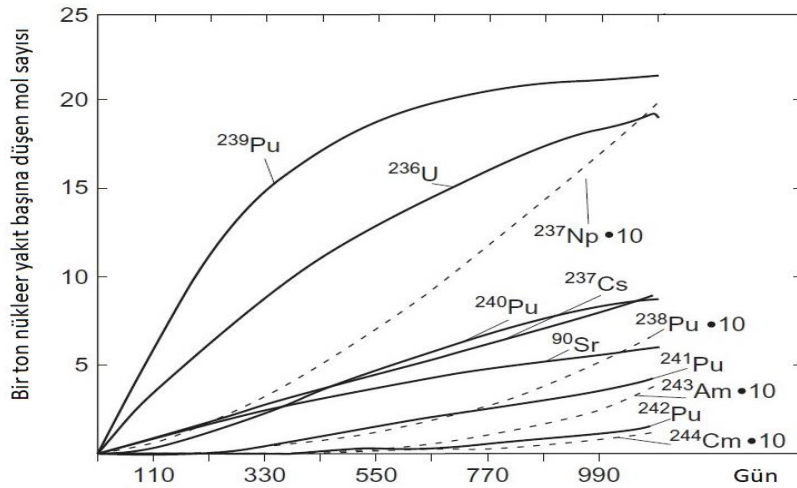
Nükleer yakıt çevrimi, radyoaktif atıkların ana kaynağıdır. Çevrim boyunca yüksek düzey atıklar da dahil her tipten atık üretilmektedir. Açık çevrimde kullanılmış yakıtlar yüksek düzey atık olarak tasfiye edilirken, kapalı çevrimde ise kullanılmış yakıtın yeniden işlenmesinin ardından ortaya çıkan yüksek düzey atıkların tasfiyesi söz konusudur.

Silah amaçlı Pu'un büyük kısmı soğuk savaş ve Sovyetler ile Amerika Birleşik Devleti arasındaki silahlanma yarışından kalmıştır. İngiltere ve Fransa gibi ülkeler Pu'u atık

olarak kabul etmezler çünkü MOX yakıtlarında kullanılmak üzere yeniden işleme tabi tutulurlar (Ojovan ve Lee, 2013).

Nükleer yakıt çevriminin ana amacı elektrik üretmek olduğundan üretilen nükleer atığın miktarı bir yılda üretilen 1 GW elektrik enerjisi başına düşen atık miktarı ile ölçülür. Nükleer enerji küresel elektrik üretiminde önemli bir rol oynamaktadır.

Yakıt çevrimi esnasında çıkan temel radyoaktif kontaminantlar ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{134}Cs ve ^{137}Cs gibi kısa yarıömürlü radyonüklitlerdir. Şekil 2.1’de bir reaktör kalbinde zamanın bir fonksiyonu olarak yeni radyonüklitlerin oluşumu gösterilmiştir. Uranyum oksit yakıtlar %3-5 oranında ^{235}U ve kalan kısımda ^{238}U içerir. Toplam ^{235}U ’in %80’i fisyon reaksiyonu ile tüketilir ve kalan %20’si nötron yakalayıp ^{236}U ’ya dönüşür. ^{236}U nötron yakalayıp ^{237}Np ’ye dönüşür ve bunun %25’i ^{238}Pu ’e dönüştürülür. Tüketilen ^{238}U ’in %93’ü nötron yakalama ile %7’si ise hızlı nötron fisyonu ile ^{239}Pu ’a dönüşür. ^{239}Pu fisildir ve nükleer reaksiyonların son aşamasında ^{243}Am ve ^{244}Cm ’e dönüşür.

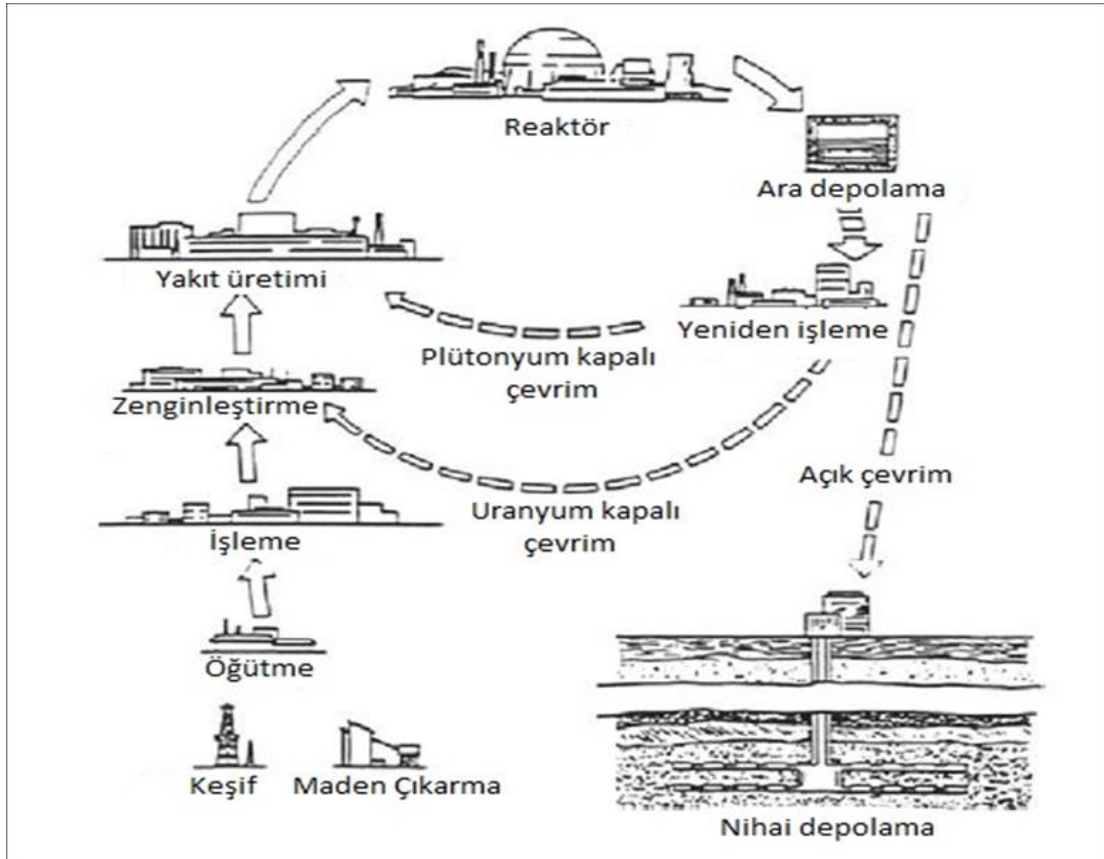


Şekil 2.1 : Bir reaktör korunda zamanın bir fonksiyonu olarak üreyen yeni radyonüklitler (Ojovan ve Lee, 2013).

Bir açık çevrimde, yakıt kullanım ömrünü tamamlayıp reaktörden çıkarıldığında kullanılmış yakıt olarak adlandırılır. Kullanılmış yakıt, yaklaşık %95 ^{238}U , %3 fisyon ürünleri ve transuranik izotoplar, %1 plütonyum ve %1 ^{235}U içerir. Tipik bir basınçlı su reaktöründen (PWR) çıkan 1 kg kullanılmış yakıt başına ortalama 9 g aktinit ve 35 g fisyon ürünü içerir. 1 GW gücünde nükleer güç reaktörünün 1 yıllık kullanılmış yakıtı yaklaşık 30 tondur (Ojovan ve Lee, 2013).

Kapalı çevrim, kullanılmış yakıtı yeniden işleme ile kullanılabilir haldeki U ve Pu’un ayrılmasını ifade eder. Kullanılmış yakıtın yeniden işlenmesi ile ortaya çıkan sulu

yüksek düzey atıklar, $^{134,135,137}\text{Cs}$, ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{131}I gibi fisyon ürünleri, minör aktinitler ve ^{51}Cr , ^{59}Fe gibi aktifleşmiş radyonüklitleri içerir. Kullanılmış yakıtın yeniden işlenmesi ile oluşan 1 ton yüksek düzey atığın aktivitesi genelde $10^{16} - 10^{17}$ Bq dir (Hidaka ve Yuan, 2012). Yüksek düzey atık miktarı ve içeriği, yeniden işleme teknolojisinin yanı sıra ülkeden ülkeye değişen reaktör ve atık karakteristiğine de bağlıdır. Şekil 2.2’de açık ve kapalı çevrim şematik olarak görülmektedir.



Şekil 2.2 : Açık ve kapalı yakıt çevrimi şeması (Ojovan ve Lee, 2013).

Yakıt çevrimi kullanmayan tesisler, düşük miktarda ama çeşit olarak geniş aralıkta atık üretirler. Bu atıklar birçok endüstriyel kullanıcının radyonüklitleri, nükleer araştırma merkezlerinin de dahil edilebileceği araştırma merkezleri ve tıp merkezlerinden çıkarlar. Küçük ölçekli nükleer araştırma merkezlerinde radyoizotoplar, araştırma reaktörlerinde ya da hızlandırıcılarda üretilir. Elde edilmek istenen radyoizotoplar ayrılması ve işlenmesi sıcak hücrelerde ya da laboratuvarlarda gerçekleştirilir. Bu işlemler esnasında üretilen radyoaktif atıkların çoğu uzun ve kısa yarıömürlü radyoizotopların karışımı halindedir.

Öngörülemeyen nükleer kazalardan kaynaklanan nükleer atıklar, olağandışı radyoaktif atık olarak isimlendirilir ve Three Miles, Çernobil veya Fukişima gibi reaktör kazaları sonucu oluşmuşlardır.

2.4 Radyoaktif Atıkların İmmobilizasyonu

İmmobilizasyon, radyoaktif atıkların atık formu haline dönüştürülerek bu atıkların taşınmasının, saklanması ve depolanmasının kolay hale getirilmesi işlemidir. Radyoaktif atıkların atık formu haline getirilmesi katılaştırma, gömme veya kapsülleme işlemleriyle gerçekleştirilir. Yüksek düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonu, radyonüklitlerin kimyasal olarak uygun bir matris yapısının bünyesine hapsedilmesiyle gerçekleştirilir. Genel olarak çimento, polimer, cam, camsı seramik veya seramik olan bu matrislerde atığın matris yapısı içine atomik boyutta bağlanması sağlanır (Jantzen ve diğ. 2013). İmmobilizasyon, radyonüklit içeren atığın çevreye geçiş veya yayılma ihtimalini azaltır.

2.4.1 Radyoaktif atıkların katılaştırılması

Doğrudan çevreye salınan gaz ve sıvı atıklar haricinde, radyoaktif atıklar ya gömülerek elden çıkartılmak için ya da varillere doldurularak tüm işlemlerden geçtikten sonra nihai olarak katı bir forma dönüştürülerek elden çıkartılırlar.

Katılaştırma yapılacak atıklar sıvı, süspansiyon (çamur), tortu veya kuru katı partiküller şeklinde olabilirler. Katılaştırma işlemi, atığın katılaştırma ajanı ya da bağlayıcı ile karıştırılmasıyla gerçekleştirilir. Bağlayıcılar, atık ile kimyasal reaksiyona girebilir; atığı içine hapseden mikroskobik hücreler oluşturabilir veya atığı münferit partiküller halinde kaplayabilir (Brownstein, 1981).

Radyoaktif atık tesisinde radyonüklitlerin hapsedilmesi ve üretilen atık formunun beklenen güvenlik performansını sağlaması, tercih edilen katılaştırma yöntemine bağlıdır (Hench ve diğ., 1984).

2.4.1.1 Katılaştırmada kullanılan genel yöntemler

Çimentolaştırma

Çimento ve çimento kompozitler, düşük düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonunda oldukça sık kullanılan bir yöntemdir. Çimentolaştırma düşük

maliyet, işlem kolaylığı, daha yüksek giderim ve kabul edilebilir kalitede ürün elde edilmesi nedeniyle avantaj gösterir. Uygun katkılı çimento formülasyonları, atığın karakterizasyonunu iyileştirmek için geliştirilmiştir (Vargese ve diğ., 1995).

Çimentolaştırma işlemi, özel durumlarda orta düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonu için de kullanılmaktadır. Bu sayede, büyük miktarlarda atıkların işlendiği alanlarda çalışanların radyasyona maruziyeti en düşük dozlarda tutulmuş olur (Raj ve diğ., 2006).

Çimentolaştırma ile katılaştırma işlemi üretilen atık formunun mekanik özellik bakımından zayıf ve korozyon direncinin düşük olması sebebiyle uzun dönem depolama için gerekli ihtiyacı karşılayamamaktadır.

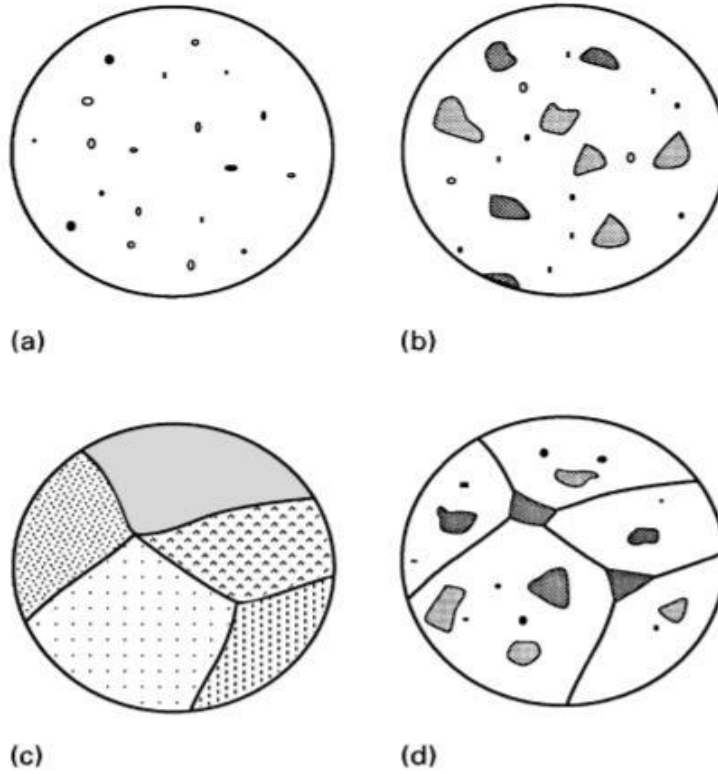
Vitrifikasyon

Vitrifikasyon yöntemi ile yüksek düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonu sağlanmaktadır. Bu teknoloji için kullanılan ilk immobilize edici malzeme camdır (Lee ve diğ., 2006). Bu yöntem ile yüksek düzeyli radyoaktif atıklar camlaştırılarak uzun yıllar boyunca bozulmayan ve kimyasal kararlılığını koruyan bir nihai ürün ortaya çıkartılır (Özgener, 2009). Birçok radyonüklitin cam bünyesine hapsedilebilmesi hapsedilebildiği ve atık hacmine kıyasla küçük hacimde nihai ürünler elde edilebildiğinden camlaştırma tercih edilen bir yöntemdir. Yakılarak toz haline getirilen atık, fırında camla karıştırılarak bir cam türü haline dönüştürülür. Sıvı halindeki cam, çelik varillere dökülerek soğutulup katılaştırılır. Oluşan bu cam, suya son derece dayanıklıdır. Ancak, %10'u bir milyon yılda suda çözünebilir. 1 GW(e)'lik bir santralin 1 yıllık atığı her biri 400 kg kapasiteli yaklaşık 14 varile sığmaktadır (Donald ve diğ. 1997).

2.4.1.2 Yüksek düzey atıkların katılaştırılmasında kullanılan malzemeler

Nükleer atıkların katılaştırılmasında en yaygın olarak kullanılan malzemeler camlardır. Bazı seramik türleri camlara nazaran üstün özellikleriyle ön plana çıksa da üretim teknolojisinin karmaşık ve maliyetinin yüksek oluşu nedeniyle dezavantajlı durumdadırlar. Cam ve seramiklerin arasında bir grup olan cam-seramikler, üretimi için camlarla aynı teknolojinin kullanılması ve kimyasal kararlılık bakımından camlardan üstün oluşlarıyla ön plana çıkmaktadır.

Çeşitli cam, seramik ve cam-seramik bileşimler ile yapılan çalışmalarda, radyoaktif atıkların, matris sistem içinde tamamen çözünüp katı-katı çözeltiler oluşturduğu veya matris içinde dağılıp kompozit yapı oluşturarak immobilizasyon işleminin gerçekleştirildiği gözlemlenmiştir. Şekil 2.3'te bu mekanizmalar şematik olarak gösterilmiştir.



Şekil 2.3 : Farklı atık formlarının şematik gösterimi: a. İnküzyonlar ve habbeler içeren homojen cam, b. cam matris içinde dağılmış atık parçaları, c. Çözeltide atık fazları bulunduran seramik atık formu, d. Atık parçalarının kaplandığı seramik matriks (Donald ve diğ., 1997).

Camlar

Üretim teknolojisinin kolay ve bilinir olması, yüksek miktarlarda üretime izin vermesi gibi özellikleriyle camlar, nükleer atıkların saklanması yaygın olarak kullanılan malzemeler haline gelmiştir (Hayward, 1988).

Borosilikat camları en çok tercih edilen malzemelerdir ve yüksek düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonunda ilk nesil atık formu olması sebebiyle tek yeterli referans atık formudur (Lee ve diğ., 2006). Borosilikat camların, sivil veya askeri kullanım atığı uranyum ve plütonyumun immobilizasyonu için uygun bir konak ana matris malzeme

olduğu düşünülmektedir. Taylor ve arkadaşları tarafından yürütülen bir çalışmada yüksek oranlarda reaktör yakıtından üreyen elementler ve fisyon ürünleri için özel olarak tasarlanmış borosilikat camlar, plütonyumun immobilizasyonu uygulamaları için de tercih edilebilecek atık formu özellikleri göstermiştir (1988).

Yüksek düzey radyoaktif atıkların immobilizasyonu için fosfat camların sızdırma oranının, borosilikat camlara göre 10-100 kat daha düşük olduğu ancak termal kararlılığının ciddi derecede düşük olduğu bilinmektedir. Ancak, aktinit oksitlerini borosilikat bileşimlere göre daha iyi çözebildiği için özellikle demir fosfat camları, nükleer silah ve sivil uygulamalar sonrası üretilen plütonyumun immobilizasyonu için umut vadeden malzemelerdir (Donald ve diğ., 1997; Kumar ve Lin, 1991).

Yüksek oranda silikat içeren camların, borosilikat bileşimlerine göre sızdırmaya karşı dirençlerinin daha iyi olduğu bilinmektedir. Fakat, yüksek proses sıcaklığı gerektirdiklerinden yapılan çalışmalar sınırlı kalmıştır (Lee ve diğ., 2006).

Nükleer atık immobilizasyonu için çalışılan diğer bir cam ise alümina silikat camlardır. Bu camların çevre koşullarında tamamen çözünmesi için 20 milyon yıl gerekmektedir. Kimyasal kararlılığı ve borosilikat camlara kıyasla üstün sızdırma direnci ile düşük alkali alümina silikat camların potansiyel ikinci nesil atık formu olduğu düşünülmektedir (Clark ve diğ., 1986).

Seramikler

Yüksek miktarlarda yüksek düzey atığın immobilizasyonu için seramik atık formlarının kullanımı ile ilgili çalışmalar, 1950'lerin sonunda çok fazlı seramikler ile başlamıştır. Seramik malzeme kullanımının altındaki ana neden, kristal fazların geniş bir spektrumdaki kimyasal türleri latis içerisine alabilmesidir (Wang ve Liang, 2012).

Bir seramiğin atık alma kapasitesinin yüksek olması kadar, uzun dönem depolama koşullarında sızdırmaya karşı direncinin yüksek olması da gereklidir. Seramiklerin potansiyel bir çok avantajından 5 tanesi atık formu olarak tercih edilmelerinde önem teşkil etmektedir. Bunlar;

- Bir çok kristal faz için düşük sızdırma oranı,
- Uzun dönem radyasyon hasarına karşı direnç,
- Yüksek atık taşıma kapasitesi,

-Yüksek termal ve mekanik kararlılık,

-Kolay işleme ve düşük maliyettir.

Çizelge 2.1 atık formu için bazı seramik adaylarını özetlemektedir. Bu malzemelerin ortak özelliği, üç boyutlu kafes yapılarının çok yüzlü bir metal oksidin ortak kenar veya tepe noktasıyla şekillenmeleridir. Bu yapılarda radyonüklid katyonları kolaylıkla kafes yapının içine hapsolabilirler.

Çizelge 2.1 : Atık formu için bazı seramikler (Ewing, 2007).

Kompozisyon tipi	Mineral adı	Genel formül
Basit oksitler	Zirkonya	ZrO ₂
	Piroklor	(Na, Ca, U) ₂ (Nb, Ti, Ta) ₂ O ₆
	Perovskit	CaTiO ₃
Kompleks oksitler	Zirkonolit	CaZrTi ₂ O ₇
	Holandit	BaTi ₈ O ₁₆
	Spinel	MgAl ₂ O ₄
	Zirkon	ZrSiO ₄
	Torit	ThSiO ₄
Silikatlar	Britolit	(Ca, Ce) ₅ (SiO ₄) ₃ (OH, F)
	Titanit	CaTiSiO ₄ O
	Monazit	LnPO ₄
	Ksenotim	YPO ₄
Fosfatlar	NZP	NaZr ₂ (PO ₄) ₃
	p-zirkonyum fosfat	HZr ₂ (PO ₄) ₃
	Th-pirofosfat	Th ₄ (PO ₄)P ₂ O ₇

En geniş çapta araştırılmış seramik atık formu, NZP (NaZr₂(PO₄)₃) olarak gösterilen tek fazlı sodyum zirkonyum fosfattır. NZP seramik atık formlarının önemli bir özelliği, yüksek atık taşıma kapasitesine sahip olmalarıdır. NZP baz alınarak simüle edilmiş

atık formlarıyla yapılan çalışmalarda, bileşenlerinin serbest kalması için makul bir direnç gösterdiği görülmüştür. NZP yapısının çözünme oranının kuartz kristaline kıyasla 20000 kez daha uzun zaman alacağı gösterilmiştir (Lutze ve Ewing, 1988; Scheetz ve diğ., 1994).

En bilinen seramik teknolojisi Synroc (synthetic rock), 1970’lerde Avustralya’da geliştirilmiştir. Synroc, titanat bazlı bir seramiktir. İçerisinde Cs, Ba ve Rb’un immobilizasyonu için Hollandit ve $BaAl_2Ti_6O_{16}$, Sr ve çeşitli aktinitlerin immobilizasyonu için Zirkolonit ve titanyum oksitleri gibi çeşitli mineral fazları barındırır.

Synroc üretimi, cam atık formlarından daha kompleks olmasına rağmen, Synroc matrislerin sızdırmaya karşı dirençlerinin camlardan daha üstün olduğu bilinmektedir (Ringwood ve diğ., 1980).

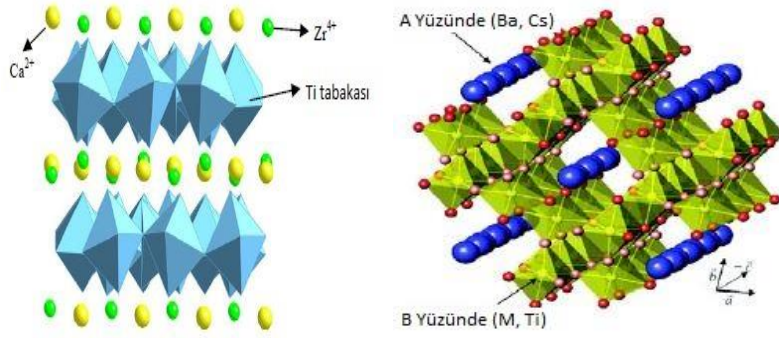
Çizelge 2.2’de Synroc seramiklerinin bazı özellikleri özetlenmiştir. Synroc atık formlarında atık taşıma kapasitesi kütlece %60-65 aralığına çıkartılmıştır.

Çizelge 2.2 : Synroc kompozitlerinin özellikleri (DOE, 1981).

Eğme mukavemeti	65 MPa
Basma mukavemeti	350 MPa
Elastisite modülü	$1,4 \times 10^3$ MPa
Mikrosertlik	> 950 g/mm ²
Yoğunluk	4 – 6 g/cm ³
Isıl iletkenlik	2 W/Mk
Isıl genleşme katsayısı	11×10^{-6} °C
Özütlenme hızı	$10^{-2} - 10^{-3}$ g/(m ² gün)

Synroc seramiklerinin en dayanıklı fazları Zirkolonit ve Hollandit’tir. Zirkolonit radyasyona karşı direnci ve kimyasal kararlı fazıyla aktinitleri barındırmak için uygundur. Hollandit ise radyoaktif sezyumun immobilizasyonu için en iyi adaydır (Wang ve Liang, 2012). Çünkü yapısındaki Ti^{4+} iyonları β bozunumu boyunca elektron tuzağı gibi hareket etmektedir.

Şekil 2.4’te sırasıyla Zirkolonit ve Hollandit birim hücrelerinin stereografik görseli görülmektedir.



Şekil 2.4 : Zirkolonit ve Hollandit birim hücre yapısı (Aubin-Chevaldonnet ve diğ., 2007; Perera ve diğ., 2004).

Cam-Seramikler

Yüksek düzey radyoaktif atıkların katılaştırılarak immobilizasyonu için cam-seramiklerin kullanımı, cam-seramiklerin kimyasal dirençlerinin camlardan daha yüksek oluşu ve üretiminde cam teknolojisinin kullanılması ile seramiklere göre kolay üretilmesi sebebiyle avantajlıdır. Camlarla kıyaslandığında kristalizasyon için ikinci bir ısıtılma ihtiyacı duymaları dezavantajlarıdır (Yılmaz ve Günay, 1999).

Yüksek düzey radyoaktif atıkların depolanması için önerilen birkaç cam-seramik sistemine ait özellikler Çizelge 2.3'te verilmiştir.

Bu örnek sistemlerden Diopsit'in ana faz olduğu kalsiyum magnezyum silikat cam-seramiklerine ağırlıkça %30 civarında atık yüklenebilmiştir ve oldukça düşük sızdırma oranları gözlemlenmiştir (Donald ve diğ., 1997).

CANDU atıkları için potansiyel atık formu olarak Sfin içeren sistemlerle çalışılmıştır. Birçok doğal kayada bulunan bu sistemlerle üretilen kalsiyum titanat silikat cam-seramiklerin kimyasal kararlılığının, mekanik dayanımının ve radyasyon direncinin borosilikat camlardan daha iyi olduğu belirtilmiştir. Bu özellikleriyle Sfin esaslı cam-seramikler, yüksek düzey radyoaktif atıkların saklanması en önemli adaylardan biri haline gelmiştir (Donald ve diğ., 1997).

Borosilikat camlara göre üstün kimyasal, termal ve mekanik özelliklere sahip diğer bir sistem ise bazalt cam-seramiklerdir. Ticari ve askeri nükleer atıkların saklanması için demir bakımından zenginleştirilmiş bazalt cam-seramikler ile yapılan çalışmalarda ağırlıkça %50'ye varan oranlarda atık yüklemesi yapılabilmektedir. Ayrıca, bu camlara aktinit taşıyıcı fazlar içinde en uygunu olan Zirkolonit'i oluşturmak için TiO_2 ve ZrO_2

ilave edilmiştir. Bu sistemlerin tek dezavantajı kristallenme sürelerinin 50 - 100 saat gibi uzun zaman gerektirmesidir (Donald ve diğ., 1997; Sarkisov, 1989).

Çizelge 2.3 : Bazı cam seramik atık sistemlerinin özellikleri (Hayward, 1988; Lutze ve Ewing, 1988; Speranzini ve Hayward, 1984).

Kod	Yoğunluk (g/cm ³)	T _m (°C)	MOR (MPa)	Elastik modül (GPa)	Vickers sertlik (10 ⁴ Pa)	Kırılma tokluğu (MPa m ^{1/2})	Termal genleşme (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	Termal iletkenlik (Wm ⁻¹ K ⁻¹)	Özgül ısı (Jg ⁻¹ K ⁻¹)
Selsiyan	3,1	-	-	-	-	0,95	7,9–10,8	1,3	-
Fresnoit	3,7	-	-	-	-	-	8,0-10,0	1,3	-
Sfin	2,78	-	-	-	-	-	6,4	-	0,71
Sfin	2,95	-	110	103	650	1,4	6,5	2,2	0,71
Diopsit	3,01	1185	630	-	-	-	8,6	1,77	-
PNC 62									
Diopsit	2,94	1120	600	-	-	-	8,4	1,58	-
PNC 718									

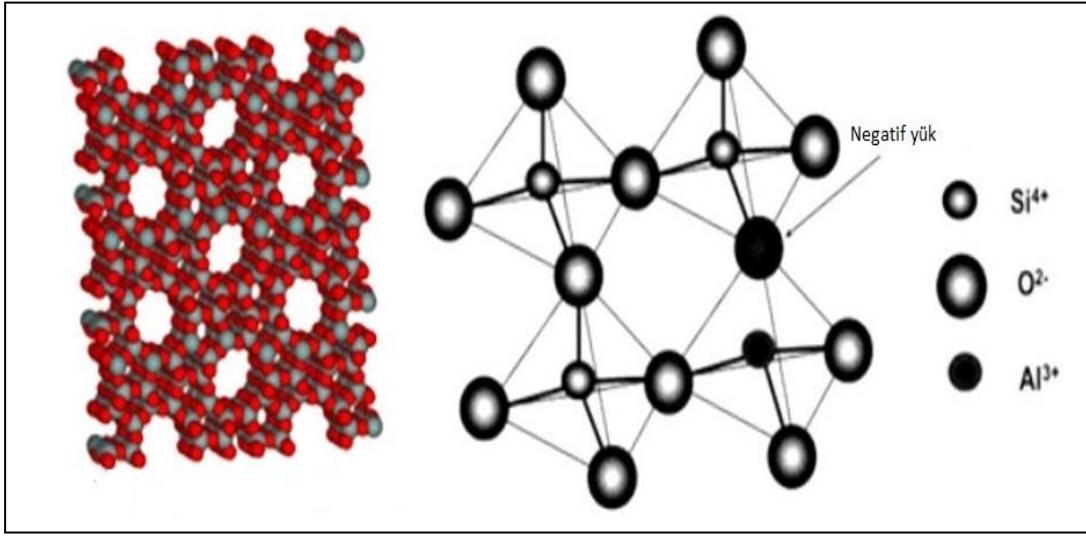
2.5 Doğal Mineraller

2.5.1 Zeolitler

Zeolit kelime olarak "Kaynayan Taş" anlamındadır. Isıtıldığında patlayarak dağılması nedeni ile bu isim verilmiştir. Kafes yapılarında alüminyum, silis ve oksijen, gözeneklerinde ise katyon ve su içeren mikro gözenekli kristal katılardır. Silis ve alüminyum atomları ortak oksijen atomu sayesinde birbirlerine tetrahedral olarak bağlanırlar (Zeolyst International, n.d.). Zeolitler, alkali ve toprak alkali metallerin kristal yapıya sahip sulu alümina silikatları olup çerçeve silikatlar grubundadır. İskelet yapılarındaki Si/Al oranları, içerdikleri katyon cinsi ve miktarlarındaki bazı farklılıklara rağmen $(M^+, M^{+2})O \cdot Al_2O_3 \cdot 9SiO_2 \cdot nH_2O$ genel formülü ile ifade edilebilirler. Burada, M^+ bir alkali katyon olup genellikle Na^+ veya K^+ , nadiren de Li^+ olur. M^{+2} ise bir toprak alkali katyondur ve genellikle Mg^{+2} , Ca^{+2} , Fe^{+2} nadiren de Ba^{+2} , Sr^{+2} olur (Gülen ve diğ., 2012).

Herhangi bir zeolit kristalinin en küçük yapı birimi SiO_4 veya AlO_4 dörtyüzlüleridir. Si ve Al dörtyüzlülerinin oluşturduğu birincil yapı ünitelerinin birleşmesi ile tek ve çift halkalı ikincil yapı üniteleri ve yüksek simetrik parametreler meydana gelir. Bu çok yüzlü ve ikincil yapı ünitelerinin üç boyutta değişik şekillerde dizilmesi ile de

mikro gözeneklere sahip zeolit iskeleti ortaya çıkar (Köktürk, 1995). Şekil 2.5'te zeolit mineralinin moleküler yapısı gösterilmektedir.



Şekil 2.5 : Zeolit mineralinin yapısı (Zeolyst International, n.d.).

Dörtüzlüler ve bunları birbirine bağlayan ikincil yapı üniteleri arasında yer alan bu mikro gözenekler, mikro pencerelerle birleşip bir, iki veya üç boyutlu boşluk sistemleri ve/veya kanalları oluşturur. Zeolit minerallerinin en önemli özelliği; bu boşluklar ve bu boşluklara kolayca girebilen ve yer değiştirebilen sıvı ve gaz molekülleri ile toprak alkali iyonlardan ileri gelen "moleküler elek" olmalıdır.

Birçok zeolit kanal genişlikleri birkaç angstrom boyutundaki moleküllerin geçmesine uygundur. Zeolitlerin kristal yapısında yabancı moleküllerin barınabileceği boşluk miktarı, toplam hacmin %20-50'sine ulaşabilir (Lowe, 1983). Bu özellikleri sanayide adsorban olarak kullanılmalarını sağlar.

Bilinen 150 tür zeolit mineralinden 40'ı doğada büyük miktarlarda ve oldukça saf rezervler halinde bulunmaktadır. Bu zeolit türlerinden ancak 14 tanesinin endüstriyel önemi vardır. Çizelge 2.4'te doğal zeolitlerin oluşumlarına göre cinsleri gösterilmektedir. Bunlar içinde doğada en çok rastlanan tabii zeolit mineralleri şunlardır: filipsit, şabazit, hollandit, lamontit, natrolit, stilbit, eriyonit ve klinoptilolit (Köktürk, 1995).

Zeolitler, yüksek seçicilik, az çözünürlük, radyasyona karşı dayanıklılık ve yüksek iyon değiştirebilme kapasitesine sahip olmaları nedeniyle nükleer alanda kullanılmaktadır. Özellikle radyoizotopların depolanması, radyoaktif atıkların idaresi ve radyonüklidlerin adsorpsiyonunda kullanımları son derece önemlidir (Öter,

2002). Ayrıca nükleer santral atıklarındaki ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co ve, ^{45}Ca gibi izotoplar klinoptilolit ve mordenitler türleri tarafından tutulabilmektedir (Ames, 1961).

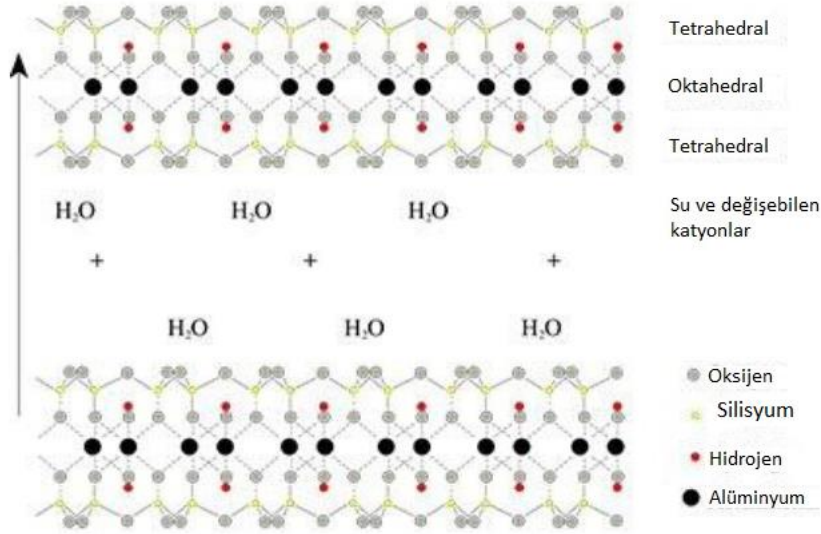
Çizelge 2.4 : Doğal zeolitlerin oluşumlarına göre cinsleri (Köktürk, 1995).

Oluşum tipi	Sıcaklık (°C)	Cinsi
Derin deniz çökeltileri	4-5	Filisit, klinoptilonit, analsim
Bozunma		Filisit, klinoptilonit, şabazit, erionit, mordenit
Alkali ve tuzlu göller	20-50	Gismodin, fojasit, gonaidit, natrolit, analsim
Süzülen yeraltı suları (bazik tefra)		Holandit
Süzülen yeraltı suları (asidik tefra)		Filipsit, şabazit, erionit, mordenit, tomsonit, mesolit
Sığ gömülme diyajenizi (Düşük ısıli hidrotermal)	25-100	Skolesit, holandit, stilbit
Sığ gömülme diyajenizi (Orta ısıli hidrotermal)	100	Lamonit, analsim
Düşük metamorfizma	200	Warakit, yugovarialit, analsim
Primer magmatik		Analsim

Ülkemizdeki zeolit oluşumları klinoptilolit, hölandit ve analsim minerallerinden oluşmaktadır. Diğer zeolit minerallerine daha az rastlanılmıştır. Türkiye’deki zeolit sahaları, 20 milyon tonluk zeolitik tüf rezervi ile Manisa - Gördes ve kolaylıkla işletilebilir nitelikte yaklaşık 500 milyon ton rezervi ile Balıkesir - Bigadiç bölgesindedir. Diğer bölgelerde detaylı bir çalışma yapılmamış olup, ülkemiz genelinde toplam rezervin 50 milyar ton civarında bulunduğu tahmin edilmektedir (Köktürk, 1995).

2.5.2 Bentonitler

Bentonitler, montmorillonit grubu kil mineralleridir. Volkanik küllerin ve tüflerin ayrışmasıyla meydana gelen montmorillonitler bentonit kayaların oluşturur. Kayaç ufalandığında yağlı ve sabunumsu bir his bırakır. Şekil 2.6’da montmorillonit mineralinin kristal yapısı görülmektedir.



řekil 2.6 : Montmorillonit yapısı (Montmorillonite, n.d.).

Silisyum ve alüminyum arasında kuvvetli bir baę olmasına karřın birim tabakalar zayıf Van der Waals kuvvetleri ile baęlanmışır. Aralarında su molekülü ve yapılarında pozitif yük noksanlığını karřılayan deęiřebilen kasyonlar bulunur. Birim tabakalar arasındaki zayıf Van der Waals nedeni ile tabaka aralarına deęiřik iyonlar, organik moleküller ve su girerek bentonitlere adsorpsiyon özellięi kazandırırılar (Bergaya ve Lagaly, 2006).

Bentonitler, kendi aęırlılıęının 5 katına kadar suyu absorbe edebilme özellięine sahiptir. Bu özellięine göre, Ca Bentonit (řiřmeyen), Na Bentonit (řiřen), Ara Bentonit (Na ve Ca karışımı) olmak üzere 3 gruba ayrılmaktadır (Akın ve Çelik, 1995). Bentonit gruplarının kimyasal bileřimi, Çizelge 2.5'te görölmektedir.

Özellikle Na Bentonitin kolloidal özellik göstermesi, su ve bazı organik sıvı ortamlarda hacimce řiřmesi ve yüksek poroziteye sahip olması bu minerallere oldukça geniř bir kullanım alanı saęlar. Bentonitlerin kullanıldığı bařlıca sektörler, döküm, ilaę, kozmetik, deterjan, gıda ve seramik olarak sıralanabilir (Malayoęlu ve Akar, 1995).

Bentonitler nükleer endüstride ise radyasyon zırhlaması için çimento karışımının içerięinde ve radyoaktif atık idaresinde nihai depolama için seęilen jeolojik sistemlerde bariyer malzemesi olarak kullanım alanı bulmaktadır. Bentonitlerin tercih edilme sebepleri;

-Uranyum, fisyon ve aktivasyon ürünlerini (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{147}Pm , ^{155}Eu , ^{239}I , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am) adsorplama yeteneği,

-Plastisitesi,

-Isıl iletkenlikleri,

-Bariyerlerin uzun süre korunmasını sağlayan reolojik özellikleridir (Seliman ve diğ., 2014).

Çizelge 2.5 : Bentonit gruplarının ortalama kimyasal bileşimleri (Bergaya ve Lagaly, 2006; Pusch, 2015).

Bileşen (%)	Na-Bentonit	Ca-Bentonit	Aratip
SiO_2	64	59	62
Al_2O_3	21	19,7	15,9
Fe_2O_3	3,5	5,9	3,0
MgO	2,3	5,5	2,6
CaO	0,5	1,7	4,5
Na_2O	2,6	0,2	2,0

Bentonit Türkiye’de magmatik kayalar ve volkanik çökeltilerin içinde düzensiz şekillerde yataklanmış halde bulunmaktadır. Türkiye’nin potansiyel toplam bentonit rezervi 281.000.000 tondur. Türkiye’nin önde gelen bentonit yataklarından bazıları Edirne, Ankara, Eskişehir, Kütahya, Balıkesir, Tokat illerinde yer almaktadır (İpekoğlu ve diğ., 1997).

2.6 Seramiklerde Sinterleme

Şekillendirilmiş toz karışımının ana bileşeninin, ergime sıcaklığının altında ısıtılması ile tozlar arasında bağ oluşturulması işlemine sinterleme adı verilir. Sinterlemenin itici gücü toplam yüzey alanının azaltılması ile sistemin toplam serbest enerjisinin azaltılmasıdır (German, 1985). Sinterleme sıcaklığı malzemedan malzemeye değişiklik gösterir.

Sinterlemenin temel sebebi, endüstrinin birincil olarak ilgilendiği, sertlik, mukavemet, yorulma ömrü, elektrik iletkenliği, ısıl genleşme, manyetik uygunluk ve korozyon direnci gibi parça özelliklerini iyileştirmektir (German, 1996). Sinterleme işlemi

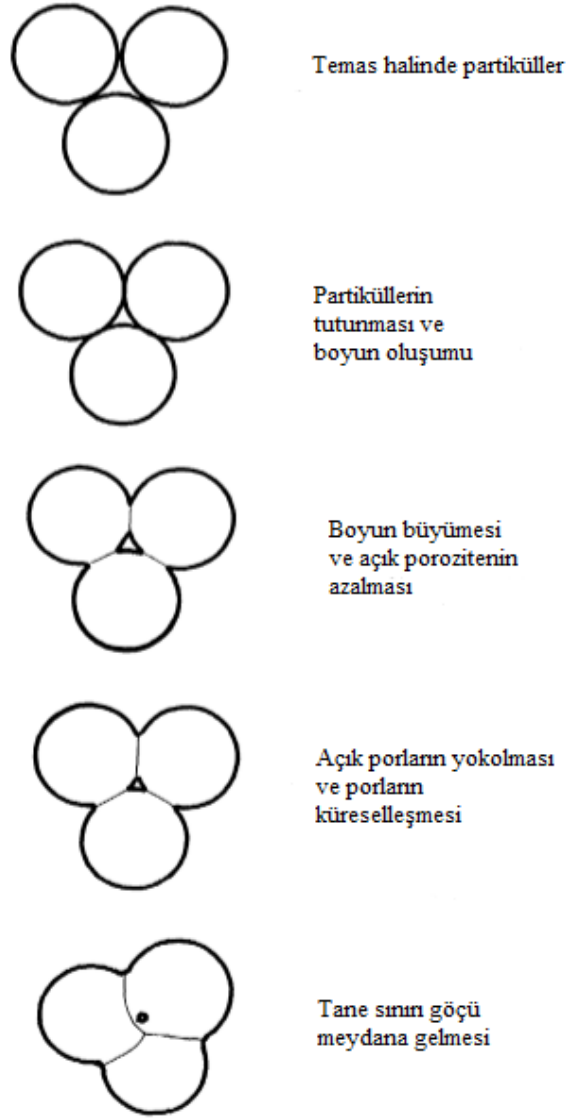
sıkıştırılmış toz kütleler zayıf olduğundan ürüne gereken bu özellikleri kazandırmak için uygulanır. Sinterleme, yüksek sıkıştırılabilirliği olan parçacıklarda düşük sıcaklıkta uygulandığında sıfır boyutsal değişim elde edilebilir. Dolayısıyla bağ oluşumu herhangi bir büzölmeye veya yoğunlaşmaya sebep olmadığından yüksek kesinliğe ulaşılır. Seramik malzemelerde sıkıştırılabilirliğin az olması preslemede yüksek yoğunluğa çıkılmasını zorlaştırmaktadır. Bu nedenle büzüşmenin olduğu yüksek sıcaklıkta sinterleme yapılması bu maddeler için uygundur. Dahası seramiklerde kalan gözenekler çatlak gibi davranarak dayanımını zamanla azaltır. Sonuç olarak, mekanik özelliklerin iyi olması için tam yoğunluğa ulaşılacak istenir (De Jonghe ve Rahaman, 2003).

Seramik tozları, şekillendirme esnasında sıkışarak malzemedeki porozite miktarı bir miktar azalır. Kuruma ile de tozlar tamamen birbiri ile temas haline gelir. Ancak, malzeme henüz kompakt hale gelmemiştir. Tozlar arasında boşluklar mevcuttur. Seramik malzemenin cinsine, tane boyutuna ve şekillendirme işlemine bağlı olarak %25-60 mertebesinde porozite içerir. Mukavemet saydamlık ısı iletkenliği gibi özellikler için yapıda mevcut porozitenin giderilmesi gerekir. Pişme esnasında, difüzyon hızlandığından birbiri ile temas halinde olan tozlar arasında özellikle yüzeyde yer alan karşılıklı atom difüzyonu sonucu tozlar birbirine aralarında boyun oluşturarak kenetlenir. Böylece, porozite miktarı azalır ve yoğunlaşma sağlanır (Erdal, 2006). Bu esnada gözeneklerin şekilleri de küreleşir. İdeal bir sinterleşme sonunda porozite tamamen ortadan kalkar ve malzeme kompakt bir kitle haline gelir. Şekil 2.7’de sinterleşme esnasında tozların birbirine kenetlenmesi ve porozite miktarı ile gözenek morfolojisinin değişimi görölmektedir.

Sinterleme mekanizması, tamamen malzemenin taşınımına dayanır ve başlıca, atomların yayınması (yüzey ve hacimsel) ile viskoz akışı kapsar. Malzemenin taşınımını kolaylaştırmak için işlem ancak yüksek sıcaklıkta gerçekleştirilir. Sinterleşmeyi sağlayan itici güç, serbest yüzey enerjisindeki azalmadır (German, 1996).

Sinterlenecek bileşime ve ısı işlem boyunca hangi ikincil fazların oluştuğuna bağlı olarak seramiklerde sinterlemenin dört türü vardır:

Katı halde sinterleme: Difüzyon ile malzeme taşınımını içerir. Bu işlem için gerekli itici güç, boyun bölgesi ile tozun yüzeyi arasında meydana gelen serbest enerji farkıdır. Sinterleme sıcaklığı genellikle erime noktasının 0.5 ile 0.9’u arasındadır.



Şekil 2.7 : Tozların birbirine kenetlenmesi ve gözenek morfolojisinin değişimi (Ishizaki ve dig., 1998).

Sıvı faz sinterleme: Sinterleme sıcaklığında orijinal katı karışımın hacimce yüzde birkaçı kadar miktarda bir sıvı görülür. Sıvı faz sinterlemesi endüstride maliyet ve üretim kolaylığı avantajlarından dolayı çoğunlukla tercih edilmektedir. Bu yöntemde sıvı faz kütle transferini, yoğunlaşmayı, mikro yapı genişlemesini hızlandırır.

Camlaştırma: Isıtma esnasında genellikle orijinal hacmin %25'inden fazla miktarda sıvı hacmi görülür. Sıvı hacmin porlara akışıyla yoğun bir ürün elde edilir.

Viskoz sinterleme: cam partiküllerinden oluşan kütle yumuşama sıcaklığının üzerinde ısıtılır. Yüzey geriliminin etkisi altında camın viskoz akışı ile yoğunlaştırma gerçekleştirilir (Somiya, 2013).

2.6.1 Sıvı faz sinterleme

Sıvı faz sinterlemesi bazı özelliklere sahip çok bileşenli sistemlere uygulanabilmektedir. Sinterleme işleminin herhangi bir safhasında oluşan sıvı faz, gözenekleri doldurarak yayını ve yoğunluk artışını hızlandırmaktadır. Yüksek performansta parça üretimi günümüzde önemli olduğu için sıvı faz sinterlemesi gibi teknikler malzeme mühendisliği için önerilmektedir.

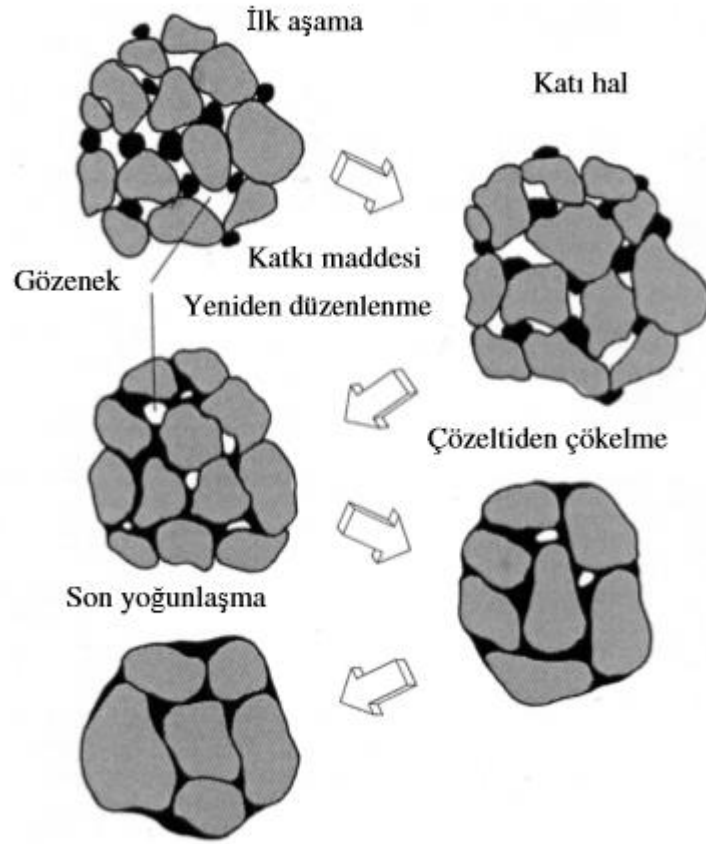
Sıvı faz sinterlemesinde sıvı faz oluşumu için iki ana mekanizma vardır. Bunlardan birincisi, farklı kimyasal bileşimlerde toz karışımı kullanmaktır. Sinterleme sırasında farklı bileşimdeki tozların etkileşimi sonucunda sıvı faz oluşur. İkincisi ise sıvı fazın toz karışımında bulunan bileşenlerden bir tanesinin ergimesi veya ötektik faz oluşumu ile oluşmasıdır. Sıvı faz sinterlemesini;

- 1) Geçici sıvı faz sinterlemesi
- 2) Sürekli sıvı faz sinterlemesi
- 3) Solidüs üstü sinterleme
- 4) Reaksiyonlu sinterleme olarak dörde ayırabiliriz.

Bu sınıflandırmada, oluşan sıvı fazın çözünme durumuna göre sinterleme sırasında alaşım oluşumu ile ortadan kalkması (geçici SFS veya reaktif sinterleme) veya sinterleme süresince iç yapıda sürekli olarak bulunabilmesi (sürekli SFS) göz önünde bulundurulur. Farklı bir yöntemde ön alaşımlı tozun katı – sıvı sıcaklığı arasında sinterlenmesi suretiyle sıvı + katı karışımı oluşturarak yapılan solidus üstü sinterlemedir (German, 1985).

Sıvı faz sinterlemenin aşamaları Şekil 2.8’de görülmektedir.

Başlangıçta tozlar kompakt halde yalnızca temas halinde durmaktadır. Sıvı faz sıcaklığına kadar ısıtma işlemi esnasında katı faz sinterlemesi oluşur. Isınma devam ettikçe sıvı oluşumu başlar. Isıtma yüzeyden olduğundan ilk erime yüzeyde olur ve çevresel daralma gerilimleri ısıtma hızlı ise parçada çatlağa neden olabilir. Oluşan sıvı içerde parçacıkların arasına ve tane sınırlarına dolur. Sıvı kapiler kuvvetle yeniden düzenlenmeye ve yoğunlaşmaya neden olur. Sıvı tanelerin etrafını sardığında katı sıvının içinde çözüldüğünden dolayı tanelerin boyutunda küçülme olur. Katı aniden yüksek yoğunluğa ulaşır ve gözenekleri doldurması için sıvıyı bırakır (Erdal, 2006).



Şekil 2.8 : Sıvı faz sinterlemenin aşamaları (German, 1996).

Islatan sıvılar için katı-sıvı yüzey enerjisi katı-gaz yüzey enerjisinden daha azdır. Bu da toplam yüzey enerjisinin düşmesine neden olur. Yeniden düzenlenme esnasında viskoziteden dolayı kapiler hareketler engellenir. Bu da gözenekli yapının azaltılması ile viskozitenin artmasına zamanla yoğunlaşmanın azalmasına neden olur. Bu esnada yeterli sıvı oluşmuşsa tam yoğunluk mümkündür. Ancak yeniden düzenlenme tanelerin birbirine dokunmasından ve katı faz yayınımdan dolayı engellenir. Yeniden düzenlenme esnasında yoğunlaşma yavaşladıkça çözünürlük ve yayılım daha baskın hale gelir. Bu ikinci aşamaya çözeltiden çökelme denir. Bunun sonucunda büyük taneler daha da büyür küçük taneler ortadan kalkar. Sonuç olarak tane boyutu büyürken tane sayısı azalır. Çözelti çökmesi büyüyen tanelerin boşluğu daha iyi doldurmasından dolayı sadece tane büyümesine değil, yoğunlaşmaya da neden olur.

Sıvı faz sinterlemesinin son aşaması katı yapının yoğunlaşması ile belirlenir. Yoğunlaşma yavaştır, çünkü birbirine değen katı taneler vardır. Son aşamada baskın olan birbirine değen katı tanelerin yoğunlaşması katı faz sinterlemesi başlangıçta da

vardır. Ancak bu kadar etkin değildir. Mikro yapı genişlemesi devam eder ve kalan gözeneklerin içinde gaz varsa kompaktın önceki aşamaya göre genişlemesine neden olur. Son aşama uzun tutulursa malzemenin özellikleri bozulur. Bu nedenle uygulamada kısa sinterleme süresi tercih edilir (German, 1996).

3. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

3.1 Matris Malzemelerin Hazırlanması

Bu çalışmada, yüksek düzey radyoaktif atıkların seramik malzemeler içinde uygun bir şekilde immobilize edilebilmesi için, Türkiye’de geniş yatakları bulunan zeolit ve bentonit mineralleri katılaştırma malzemesinin ana matrisi olarak kullanılmıştır. Ana matris malzeme olarak kullanılan mineraller, Balıkesir Bigadiç yöresine ait zeolit ve Tokat Reşadiye yöresine ait bentonit mineralleridir. Doğal mineraller, Fusion Frequency Marka FFBM-3A Model tungsten karbür hazneli ve bilyalı öğütücüde öğütülüp, 40 µm’lik elekten elenmiştir (Şekil 3.1a ve b). Elenen mineraller, nemlerinin uzaklaştırılması için Heraeus Marka D-6450 Model etüvde 110°C’de 3 saat bekletilmiştir (Şekil 3.2).



Şekil 3.1 : Bilyalı öğütücü ve 40 µm’lik elek.

Ana matris seramikleri hazırlamak için toplam ağırlığı 1,5 g olacak şekilde ham mineraller Shimadzu Marka AUW220D Model terazide tartıldıktan sonra agat havanda homojen bir şekilde karıştırılıp 13 mm’lik kalıpta Fusion Frequency Marka hidrolik preste 10 MPa’lık bir basınç altında preslenmiştir.

Zeolit mineralinin pelet olarak basılmasında karşılaşılan sorunlar nedeniyle, bağlayıcı olarak toplam ağırlığın ¼’ü oranında boroksit (B_2O_3) eklenerek peletler basılmıştır. Daha sonra, boroksit ile hazırlanan peletlerde yaşanan sorunlar nedeni ile bağlayıcı olarak sodyum karbonat (Na_2CO_3) ilave edilmiştir.

Çalışmanın bundan sonraki bölümlerinde, doğal minerallere ve bağlayıcılara ait kısaltmalar Çizelge 3.1’de verildiği gibi kullanılmıştır.

Çizelge 3.1 : Malzemelere ait kısaltmalar.

Malzeme	Kısaltma
Zeolit	ZE
Bentonit	BN
Boroksit	BA

3.2 Atık İçeren Seramik Matrisli Malzemelerin Hazırlanması

Atık taşıma kapasitesini belirleyebilmek ve farklı atık oranlarında atık formunun özelliklerini inceleyebilmek için 8 farklı atık oranı seçilmiştir.

Zeolit ve bentonit minerallerinin tüm atık oranı ve atık tiplerinde toplam ağırlığı 1,5 g olacak şekilde Shimadzu Marka AUW220D Model terazide tartılmıştır. Bu bileşimler homojeniteyi sağlamak için agat havanda karıştırılıp 13 mm’lik kalıpta Perkin Elmer marka hidrolik preste 10 ton altında preslenmiştir (Şekil 3.2). Zeolit ile pelet üretimini mümkün kılmak için bağlayıcı olarak boroksit (B_2O_3) ve sodyum karbonat (Na_2CO_3) kullanılmıştır.



Şekil 3.2 : Hidrolik pres.

Atık tipi olarak fisyon ürünlerinden olan ^{90}Sr ve ^{137}Cs 'nin immobilizasyonunu inceleyebilmek amacıyla $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ ve CsNO_3 'ın kimyasal kararlı tuzları kullanılmıştır. Çizelge 3.2'de atık içeren seramik bileşimlerine ait atık tipi ve oranları verilmiştir.

Basılan peletler son işlem olarak Nabertherm marka fırında kademeli olarak sıcaklığı yükseltilerek sinterlenmiştir (Şekil 3.3). Farklı sinterleme sıcaklıkları ve süreleri uygulanarak peletlerin fiziksel özelliklerindeki değişiklikler gözlemlenmiştir.



Şekil 3.3 : Yüksek sıcaklık fırını ve peletler.

Porozite, bir malzemenin mekanik ve termal özelliklerini ve ortam içinde bulunan malzemelerden dolayı korozyon ve mekanik aşınma davranışlarını etkiler. Prensipinde, bir numunedeki porların hacmi, onları doldurmak için gerekli sıvının ağırlığından hesaplanır. Her ne kadar porların çoğu kullanılan sıvı tarafından doldurulabilir ise de (açık porlar), bazı porlar kapalıdır ve sıvı onları dolduramadığı için bu porlar hesaplanan değer içinde yer almazlar. Bu yüzden hesaplanan porozite ve katı yoğunluk değerleri etkin porozite ve görünür katı yoğunluğu olarak adlandırılır.

$$V = \frac{M_{dh} - M_{ds}}{\rho} \quad (3.1)$$

$$V_b = \frac{M_{dh} - M}{\rho} \quad (3.2)$$

$$n = \frac{V_b}{V} \times 100 \quad (3.3)$$

Denklem 3.1'de görünür hacim V ile gösterilmiştir. Burada M_{dh} su emdirilmiş numunenin havadaki ağırlığını, M_{ds} su içerisindeki numunenin ağırlığını, ρ ise kuru numunenin yoğunluğunu ifade etmektedir. Denklem 3.2'de açık boşlukların hacmi V_b

numunenin kuru kütlesi ise M ile gösterilmiştir. Etkin porozite değeri n ile ifade edilmiştir (Denklem 3.3).

Çizelge 3.2 : Atık içeren seramik bileşimlerine ait atık oranları.

Seramik Bileşimleri	Atık tipi	Atık oranı (%)
0,78BN•0,22Cs	CsNO ₃	22
0,71BN•0,29Cs	CsNO ₃	29
0,63BN•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,56BN•0,44Cs	CsNO ₃	44
0,49BN•0,51Cs	CsNO ₃	51
0,41BN•0,59Cs	CsNO ₃	59
0,34BN•0,66Cs	CsNO ₃	66
0,31BN•0,69Cs	CsNO ₃	69
0,78(0,75ZE•0,25BA)•0,22Cs	CsNO ₃	22
0,71(0,75ZE•0,25BA)•0,29Cs	CsNO ₃	29
0,63(0,75ZE•0,25BA)•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,56(0,75ZE•0,25BA)•0,44Cs	CsNO ₃	44
0,49(0,75ZE•0,25BA)•0,51Cs	CsNO ₃	51
0,41(0,75ZE•0,25BA)•0,59Cs	CsNO ₃	59
0,34(0,75ZE•0,25BA)•0,66Cs	CsNO ₃	66
0,31(0,75ZE•0,25BA)•0,69Cs	CsNO ₃	69
0,78BN•0,22Sr	Sr(NO ₃) ₂	22
0,71BN•0,29Sr	Sr(NO ₃) ₂	29
0,63BN•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37
0,56BN•0,44Sr	Sr(NO ₃) ₂	44
0,49BN•0,51Sr	Sr(NO ₃) ₂	51
0,41BN•0,59Sr	Sr(NO ₃) ₂	59
0,34BN•0,66Sr	Sr(NO ₃) ₂	66
0,31BN•0,69Sr	Sr(NO ₃) ₂	69
0,78(0,75ZE•0,25BA)•0,22Sr	Sr(NO ₃) ₂	22
0,71(0,75ZE•0,25BA)•0,29Sr	Sr(NO ₃) ₂	29
0,63(0,75ZE•0,25BA)•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37
0,56(0,75ZE•0,25BA)•0,44Sr	Sr(NO ₃) ₂	44
0,49(0,75ZE•0,25BA)•0,51Sr	Sr(NO ₃) ₂	51
0,41(0,75ZE•0,25BA)•0,59Sr	Sr(NO ₃) ₂	59
0,34(0,75ZE•0,25BA)•0,66Sr	Sr(NO ₃) ₂	66
0,31(0,75ZE•0,25BA)•0,69Sr	Sr(NO ₃) ₂	69
0,63(0,5BN•0,5PbS)•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,63(0,375ZE•0,375PbS•0,25BA)•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,63(0,5BN•0,5PbS)•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37
0,63(0,375ZE•0,375PbS•0,25BA)•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37
0,34(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,66Cs	CsCl	66
0,34(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,66Cs	CsCl	66
0,34(0,49BN•0,49PbS•0,02Na ₂ CO ₃)•0,66Cs	CsCl	66
0,34(0,49ZE•0,49PbS•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,66Cs	CsCl	66
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	CsNO ₃	29
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	CsNO ₃	44
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	CsNO ₃	29
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	CsNO ₃	37
0,56(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	CsNO ₃	44
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	Sr(NO ₃) ₂	29
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Sr	Sr(NO ₃) ₂	44
0,41(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,59Sr	Sr(NO ₃) ₂	59
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	Sr(NO ₃) ₂	29
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	Sr(NO ₃) ₂	37

Bazı seramik bileşimlerine ait etkin porozite değerleri Çizelge 3.3'te verilmiştir.

Çizelge 3.3 : Atık içeren seramik bileşimlerinin etkin porozite değerleri.

Seramik Bileşimleri	Görünür Hacim $V[g/cm^3]$	Açık Boşlukların Hacmi $V_b[g/cm^3]$	Etkin Porozite %
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	31,180	0,129	0,415
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	38,108	0,176	0,461
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	40,455	0,257	0,636
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	33,687	0,083	0,246
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	38,702	0,143	0,370
0,56(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	40,525	0,210	0,519
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	37,248	0,057	0,153
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	37,122	0,064	0,171
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Sr	41,372	0,103	0,249
0,41(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,59Sr	36,666	0,023	0,064
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	44,783	0,129	0,289
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	35,814	0,141	0,395

3.3 Atık İçeren Seramik Bileşimlerin Elastik Sabitlerinin Belirlenmesi

3.3.1 Ultrasonik test

Hazırlanan seramik bileşimlerinin fiziksel dayanım testleri Atom Enerjisi Kurumu Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'nde Krautkramer marka USM25 model cihaz kullanılarak ultrasonik yöntemle yapılmıştır. Ultrasonik test yöntemi, malzemedeki hataların saptanması, hata yerinin tespiti, bu hataların nedenlerinin araştırılması ve değerlendirilmesi amacıyla yapılmaktadır.

Ultrasonik testin temel prensibi, ses dalgalarının boşlukta iletilmeyişiştir. Bu nedenle, iyi bir iletken olan katı malzemelerde ilerleyen ses dalgaları sadece malzemenin sınırlarında değil, içerisindeki boşluk ve inklüzyonlarda da geri yansıyacaktır. Ultrasonik test tekniğinin çalıştığı frekans aralığı 0.5-10 MHz'dir (Türker ve diğ., 2011).

Ultrasonik test metodunda prob (transduser) adı verilen düzenekler kullanılmaktadır. Probların üretiminde kullanılan malzemeler ise yüksek frekanslarda enerji üretimine uygun olan piezoelektrik kristallerdir. Piezoelektrik etki ile üretilen titreşimlerin probun malzeme yüzeyine teması ile malzemenin içine iletilirler. Ultrasonik problemler ile elektrik enerjisinin ultrasonik enerjiye (mekanik) dönüşümü tersinirdir. Verici prob

ile üretilen ultrasonik dalgalar malzeme içinde yayılırken farklı özellikteki ara yüzeylerden kısmen geçer veya yansır. Alıcı proba gelen dalgalar burada tekrar elektrik titreşimlere dönüştürülür ve ultrason cihazının ekranına düşen görüntüler yardımıyla malzemedeki hatalar belirlenir (Birks ve diğ., 1991).

3.3.1.1 Ultrasonik dalga çeşitleri

Malzeme içindeki ultrasonik dalga çeşitlerinin en önemlileri, ortam parçacıklarının titreşim şekli ve yayılma yönüne göre boyuna, enine ve yüzey dalgaları olmak üzere üç çeşittir.

Boyuna dalgalar titreşim yönü ile aynı yönde yayılarak ve yayıldığı ortamın parçacıklarını iterek hareket eder. Boyuna dalga hızı C_B ile ifade edilir. Bu dalgalar katı, sıvı ve gaz ortamlarda yayılabildiğinden ultrasonik testte en çok kullanılan dalgalardır.

Enine dalgaların yayılma yönü titreşim yönüne dik olduğunda kesme dalgaları olarak da bilinirler. Yayıldıkları ortamın parçacıklarına çapraz yönde çekme uyguladıklarından sadece katılarda yayılabilirler. Enine dalgalar C_E ile ifade edilirler ve hızları boyuna dalgaların yarısı kadardır.

Sadece malzeme yüzeyinde yayılan yüzey dalgalarına Rayleigh dalgaları da denir. Yüzey dalgalarının hızı, enine dalgaların hızının yaklaşık %90'ıdır ve C_Y ile ifade edilirler. Malzeme yüzeyinden en fazla bir dalga boyu derinlikte yayılabilirler. Yüzey ve yakınındaki çatlakların tespitinde, karmaşık yüzeyli malzemelerin testlerinde kullanışlı olmaktadır (Birks ve diğ., 1991).

Ultrasonik test ile bir malzemenin boyuna, enine ve yüzey dalgalarının hızlarını ölçmek; malzemenin elastik sabitlerini belirlemeyi sağlamaktadır. Elastik sabitler malzemenin atomları arasındaki bağ kuvvetleri hakkında bilgi verir (Matori ve diğ., 2013).

Enine ve boyuna dalgaların hızları kullanılarak çeşitli elastik sabitlerin hesaplandığı bağıntılar Denklem 3.4 ve Denklem 3.5'te verilmektedir:

$$C_B = \sqrt{\frac{E}{\rho} \frac{1 - \mu}{(1 + \mu)(1 - 2\mu)}} \quad (3.4)$$

$$C_E = \sqrt{\frac{E}{\rho} \frac{1}{2(1 + \mu)}} = \sqrt{\frac{G}{\rho}} \quad (3.5)$$

Burada, C_B :boyuna dalga hızı, C_E :enine dalga hızı, E : esneklik veya young modülü, G : kesme modülü, μ : poisson oranı, ρ : özkütledir (Krautkrämer ve Krautkrämer, 2013).

3.4 Atık İçeren Seramik Bileşimlerinin Kimyasal Dayanım Testleri

Atık içeren seramik bileşimlerine yaşlandırma işlemi uygulanarak kimyasal dayanımları test edilmiştir. İşlem öncesi hassas terazide kütleleri belirlenen peletler, 50 mL distile su içeren polipropilen kaplara bir ip ile asılarak 7 gün boyunca 90°C sıcaklıktaki etüvde bekletilmişlerdir (Şekil 3.4). Bu süre içerisinde belirli aralıklarla peletler tartılmış ve pH değerleri ölçülmüştür. Daha sonra peletlerin kütle kayıpları ve yüzey alanları dikkate alınarak zamana bağlı birim ağırlık kayıpları hesaplanmıştır. Birim ağırlık kayıplarından yola çıkılarak her bir peletin ortalama çözünme oranları (g/(cm².gün) cinsinden hesaplanmıştır.



Şekil 3.4 : Yaşlandırma işlemi koşulları.

3.5 Atık İçeren Seramik Bileşimlerinin Yapısal Karakterizasyonu

3.5.1 FTIR

İnfrared spektroskopisi (IR), malzeme analizinde yetmiş yılı aşkın süredir kullanılan bir tekniktir. Bir infrared spektrumu, atomlar arası bağların titreşim frekansına karşılık gelen absorpsiyon piklerini gösterir. Her bir farklı malzemenin atomları farklı kombinasyonlardan oluştuğundan iki farklı malzeme aynı infrared spektrumuna sahip

olamaz. Bu nedenle de, infrared spektroskopisi malzemelerin nitel analizinde geçerli bir yöntemdir (Thermo Nicolet Corporation, 2001)

Fourier dönüşümlü infrared spektroskopisi (FT-IR), infrared spektroskopisinin bazı sınırlamalarını aşmak için geliştirilen bir spektroskopik yöntemdir. İnfrared spektroskopisinde tüm infrared frekanslarının tek tek ölçülmesinden kaynaklı olarak tarama işleminin yavaş ilerleyişi temel problemidir. Fourer dönüşümlü infrared spektroskopisinde “interferometre” isimli optik bir cihazın yardımıyla bu sorun çözülmüştür. İnterferometre tüm infrared frekansları barındıran tek tip bir sinyal üretir. Tüm frekansları aynı anda malzeme üzerine gönderir ve dedektör tarafından “interferogram” adı verilen bir sinyal olarak kaydedilerek bilgisayar sistemine aktarılır. Bilgisayar sisteminde saniyeler içerisinde spektruma dönüştürme tamamlanır (Thermo Nicolet Corporation, 2001).

Hazırlanan seramik peletler hiçbir ön işleme tabii tutulmaksızın spektrumları İTÜ Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölümü’nde mevcut Perkin-Elmer FT-IR Spectrum One Marka FT-IR Spektrometresinde alınmıştır.

3.5.2 XRF

X-ışınları Floresans (XRF) spektroskopisi elementel kompozisyonu belirlemede kullanılan önemli yöntemlerden biridir. Bu yöntem, oksijenden büyük atom numarasına sahip elementlerin analizinde kullanılmaktadır.

X-ışını tüpünden saçılan X-ışınları, malzeme atomlarındaki elektronlara çarparak, bazı elektronları bulundukları yörüngeden koparır. Atomun yeniden kararlı hale geçebilmesi için üst yörüngelerin birisinden bir elektron, kopan elektronun yerine geçer. Bu şekilde, atom tekrar kararlı hale geçer. Bu geçiş sırasında ikincil bir X-ışını salınır. İkincil X-ışınları elementlere özgü olduğundan karakteristiktir ve cihazın detektörü tarafından algılanır. Bir bilgisayar programı yardımıyla tekrar sayılarından elementlerin yüzde oranları hesaplanır (Willard ve diğ., 1988).

X-ışını floresans spektrometreleri çalışma prensibi bakımından enerji dağılımlı (EDXRF) ve dalga boyu dağılımlı (WDXRF) olmak üzere iki farklı gruba ayrılır. Enerji dağılımlı XRF spektrometrelerindeki detektörler örnek içerisindeki elementlerden gelen farklı enerjili karakteristik X-ışınlarını ölçebilme ve ayırma özelliğine sahiptir. Dalga boyu dağılımlı XRF ise, örnekten yayımlanan karakteristik ışınlarını dalga boyuna göre ölçen bir sistemdir (Skoog ve Leary, 1985).

Hazırlanan seramik peletler, Maylab AŞ. Madeni Yağ Laboratuvarında Rigaku marka NEXCG Model kartezyen geometri polarize enerji dağılımlı Pd anotlu X-ışını tüplü X-Işını Flüoresans spektrometresinde yapılmıştır. 10 dk'lık sayımlar yapılarak gerçekleştirilmiştir.

3.5.3 ICP-ES

ICP-ES katı ve sıvı örneklerin hızlı, ucuz, hassas ve doğru biçimde, niteliksel, niceliksel ya da yarı-niceliksel olarak ölçülmesini sağlayan bir analiz tekniğidir. İndüktif Eşleşmiş Plazma (ICP) ve Emisyon Spektrometresi (ES) olmak üzere iki ünitenin bileşiminden oluşmuştur. Numunedeki elementler, ICP'de iyonlaştırıldıktan sonra emisyon spektroskopisine (ES) gönderilir ve burada kütle/yük (m/z) oranlarına göre ayrılıp ölçülür. Bu teknikte, elektromanyetik indüksiyonla argon 10,000 K sıcaklığa çıkartılarak plazma elde edilir. Argon plazmasıyla numune iyonlaştırılarak kütle spektrometrisine gönderilir. Burada kütle/yük (m/z) oranlarına göre ayrılıp ölçüldükten sonra element derişimleri elektron çoğaltıcı bir dedektör tarafından ölçülür. Tüm element derişimlerinin saptanması, 1-2 dakika arası süren bu yöntemde sıvı numuneler direkt, katı örnekler ise çözeltiye alınarak ölçülür. Birçok element için gözlenebilme sınırı ng/L'nin (ppb ve daha düşük derişimler) altındadır. Çok sayıda elementi aynı anda analiz edebilme özelliği sayesinde, nitel analizlerde ve izotop oranlarının belirlenmesinde olduğu gibi, başta metalik elementler olmak üzere periyodik tablodaki elementlerin büyük çoğunluğunun nicel ve yarı-nitel tayinlerinde de yaygın olarak kullanılmaktadır. ICP-ES'in çalışma aralığı diğer yöntemlere oranla oldukça geniştir. Birçok element için pg-mg/L arasında kalibrasyon grafikleri çizilebilmektedir ve bu farklı derişime sahip birçok elementin aynı anda analizine olanak sağlamaktadır (Akdeniz Üniversitesi, 2017).

Seramik örneklerin 7 günlük 90°C'de gerçekleştirilen yaşlandırma testinden sonra seramikten salınan elementlerin miktarını tayin edebilmek için, içerisinde tutuldukları suyun elementel analizleri Maylab AŞ. Madeni Yağ Laboratuvarında mevcut ICP-ES cihazında yapılmıştır.

3.5.4 XRD

X-Işını Kırınım yöntemi (XRD), kristal malzeme atomlarının boşuk ve dizilişlerine ait bilgilerin doğrudan elde edebildiği bir yöntemdir. Bunu yanı sıra metal, polimer ve diğer katı malzemelerin fiziksel özelliklerini daha net şekilde anlamaya yardım

etmektedir. Bu yöntem temel olarak, her kristal faz için ayrı bir X ışını kırınım profili olmasına dayanır. Her bir kristalin faz için bu kırınım profilleri bir nevi parmak izi gibi o kristali tanımlar. X-Işını Kırınım analiz metodu, analiz sırasında numuneyi tahrip etmez ve az miktardaki numunelerin dahi analizlerinin yapılmasını sağlar. X-Işını Kırınım cihazıyla kayaçların, kristalin malzemelerin, ince filmlerin ve polimerlerin hem kalitatif hem de kantitatif değerlendirmelerinin yapılması mümkündür (Skoog, 1985).

Hazırlanan seramik bileşimlerinin XRD analizleri Atom Enerjisi Kurumu Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'nde yapılmıştır.

4. DENEY SONUÇLARI

4.1 Ön Deneylerin Sonuçları

4.1.1 Sinterleme sıcaklığının etkisi

Seramik oluşumuna sinterleme sıcaklığının etkisini incelemek için ana matris olarak bentonit ve zeolit mineralleri kullanılarak farklı atık oranında farklı bileşimlere sahip peletler basılmıştır. Atık olarak sezyum ve stronsiyumun kimyasal olarak kararlı tuzları CsNO_3 ve $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ kullanılmıştır. Hazırlanan seramik peletler 300°C , 400°C , 500°C ve 600°C sıcaklıklarda 1 saat tutularak optimum sinterleme sıcaklığı belirlenmeye çalışılmıştır. Çizelge 4.1’de hazırlanan seramik bileşimleri ve çıkılabilen en yüksek sinterleme sıcaklıkları gösterilmiştir.

Çizelge 4.1 : Seramik bileşimlerine ait sinterleme sıcaklıkları.

Seramik Bileşimi	Sinterleme Sıcaklığı [$^\circ\text{C}$]
0,63BN•0,37Cs	600
0,63(0,5BN•0,5PbS)•0,37Cs	400
0,63BN•0,37Sr	600
0,63(0,5BN•0,5PbS)•0,37Sr	500
0,63(0,75ZE•0,25BA)•0,37Cs	600
0,63(0,375ZE•0,375PbS•0,25BA)•0,37Cs	500
0,63(0,75ZE•0,25BA)•0,37Sr	500
0,85(0,375ZE•0,375PbS•0,25BA)•0,15Sr	500

0,63(0,5BN•0,5PbS)•0,37Cs ve 0,63(0,375ZE•0,375PbS•0,25BA)•0,37Cs kodlu peletlerde 300°C sıcaklıkta başlayan yüzeysel çatlaklar, son sinterleme sıcaklıklarında genişleyerek yüzeyi porlu hale getirmiştir (Şekil 4.1.a ve 4.1.b). 0,63(0,75ZE•0,25BA)•0,37Cs kodlu pelette 300°C sıcaklıkta sinterleme sonrası yüzeyde beyaz kabarcıklar gözlemlenmiştir (Şekil 4.1.c). Sıcaklık artışıyla kabarcıklarda değişim olmazken, seramik yüzeyde de çatlak oluşumu gözlenmemiştir.

Genel olarak içeriğinde PbS bulunan tüm seramiklerde yüksek sinterleme sıcaklıklarında yapıda bozulma görülmüş ve daha yüksek sıcaklıklara çıkılamamıştır.



Şekil 4.1 : a) Bentonit , PbS ve Cs , b) Zeolit, PbS ve Cs, c) Zeolit,ve Cs içeren peletlerinin 600°C’de sinterlenme sonrası görünüşleri.

4.1.2 Sinterleme süresinin etkisi

Sinterleme süresinin etkisini incelemek için Çizelge 4.2’de verilen seramik bileşimleri belirlenen sıcaklıklarda farklı sürelerde sinterlenmiştir. İlk denemelerde 600°C’de 1 saat sinterlenen peletlerin tamamı ergimeye başladığından daha sonra düşük sıcaklıkta sinterleme süresi artırılarak seramiklerin fiziksel dayanımındaki değişimler incelenmiştir. Sinterleme sıcaklığı kademeli arttırılarak ani şekil değişimleri önlenmeye çalışılmıştır. Ardından istenen sinterleme sıcaklığı olan 500°C’ye çıkarılarak 4 ila 72 saat arasında değişen sinterleme işlemleri gerçekleştirilmiştir. Farklı sürelerinde sinterlenen seramikler fiziksel dayanım testlerine tabii tutulmuştur. 60 saatin üzerinde sinterlemelerde ultrasonik sinyal alınabilmiş ve fiziksel dayanımda artış tespit edilmiştir.

Çizelge 4.2 : Sinterleme sürelerine ait denemeler.

Seramik Bileşimi	1.Deneme Sinterleme Sıcaklığı ve süreleri	2.Deneme Sinterleme Sıcaklığı ve süreleri	3.Deneme Sinterleme Sıcaklığı ve süreleri
0,78BN•0,22Cs			
0,71BN•0,29Cs	600°C	300°C	
0,63BN•0,37Cs	1 saat	2 saat	
0,70BN•0,30Cs			
0,34(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,66Cs			
0,34(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,66Cs			300°C 2 saat
0,34(0,49BN•0,49PbS•0,02Na ₂ CO ₃)•0,66Cs			500°C 2 saat
0,34(0,49ZE•0,49PbS•0,02Na ₂ CO ₃)•0,66Cs			

4.1.3 Bağlayıcı etkisi

Zeolit mineralinin ana matris olarak kullanıldığı seramik bileşimlerinde pelet basımında yaşanan sorunlar nedeniyle bağlayıcı olarak ilk önce boroksit (B_2O_3) ve daha sonra ise sodyum karbonat (Na_2CO_3) kullanılarak farklı atık oranlarında ve bileşimlerde seramikler hazırlanmıştır. Tüm atık oranlarında B_2O_3 kullanılarak hazırlanan peletlerde sinterleme sonrasında çatlak oluşum miktarı artarken, Na_2CO_3 ile hazırlanan peletlerde sezyumlu atıklarda %44, stronsiyumlu atıklarda %59 atık oranına kadar gözle fark edilebilir çatlak oluşumu gözlenmemiştir.

4.2 Ultrasonik Test Sonuçları

Yukarıdaki parametrelerde saptanan seramik bileşimleri, sinterleme sıcaklığı ve sinterleme süresinde hazırlanan sezyum ve stronsiyum içeren iki farklı ana matrise sahip seramiklerin fiziksel dayanım testleri ultrasonik metot ile malzemelerin tahribatsız muayenesi yapılmıştır.

Ultrasonik testler sonucunda elde edilen boyuna ve enine dalga hızları kullanılarak seramiklerin elastisite modülü (E), ve Poisson oranı (μ) değerleri hesaplanmış ve Çizelge 4.3 ve 4.4'te verilmiştir.

Çizelge 4.3 : Cs içeren seramik bileşimlerinin E ve μ değerleri.

Seramik Bileşimleri	C_B [m/s]	C_E [m/s]	ρ [g/cm ³]	E GPa	μ
0,71(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	3408	1700	1,78	14	0,19
0,63(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	3240	1605	1,68	12	0,21
0,56(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	2800	1410	1,56	8	0,20
0,71(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	3460	1724	1,63	13	0,33
0,63(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	3710	1850	0,38	3	0,33
0,56(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	3750	1870	0,36	3	0,33

Çizelge 4.4 : Sr içeren seramik bileşimlerinin E ve μ değerleri.

Seramik Bileşimleri	C_B [m/s]	C_E [m/s]	ρ [g/cm ³]	E GPa	μ
0,71(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	5500	3390	1,67	46	0,19
0,63(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	5222	3178	1,61	39	0,21
0,56(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,44Sr	5140	3140	1,55	37	0,20
0,41(0,98BN•0,02Na ₂ CO ₃)•0,59Sr	3788	2432	1,62	22	0,15
0,71(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	5288	2982	1,87	42	0,27
0,63(0,98ZE•0,02Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	5194	2824	1,73	36	0,29

Elastisite modülü malzemenin karakteristik bir özelliğidir. Bir malzemenin elastisite modülü ile şekil değişimine direnci arasında doğrusal bir ilişki vardır. Elastisite modülü birim uzama başına oluşan gerilme miktarını göstermektedir.

Çizelge 4.3'te sezyum içeren seramik bileşimlerine ait veriler değerlendirildiğinde, ana matrisin bentonit olduğu bileşimlerde atık oranının artmasıyla elastisite modülü değerlerinde azalma görülmüştür.

Zeolit minerali içeren bileşimlerde ise atık oranının %29'den %37'ye çıkmasıyla, elastisite modülü değerlerinde ciddi bir azalma gözlenmiştir.

Stronsiyum içeren seramik bileşimlerine ait veriler Çizelge 4.4'te verilmiştir. Bu seramik bileşimlerinde de artan atık oranıyla ters orantılı olarak elastisite modülü değerlerinde bir miktar azalma görülmektedir.

Genel olarak her iki atık türü de değerlendirildiğinde, en yüksek elastisite ve kayma modülü değerlerine $0,71(0,98\text{BN}\cdot 0,02\text{Na}_2\text{CO}_3)\cdot 0,29\text{Sr}$ bileşiminde ulaşılmıştır. Stronsiyum içeren seramik bileşimlerinin sezyum içeren bileşimlere göre daha yüksek elastisite değerlerine sahip olduğu görülmektedir.

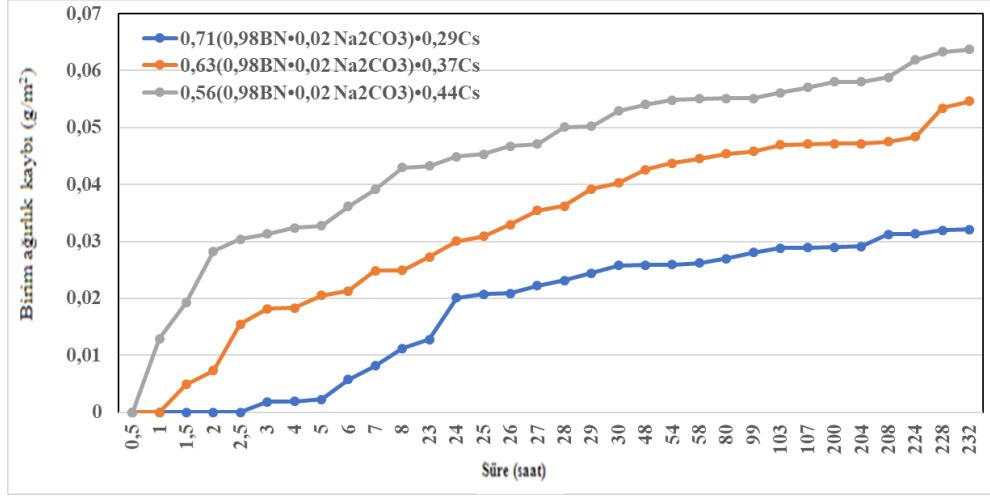
4.3 Kimyasal Dayanım Testinin Sonuçları

Atık içeren seramik bileşimleri 50 mL bidistile su içeren polietilen kaplar içerisinde etüvde 90°C sıcaklıkta 1 hafta bekletilmişlerdir. Yaşlandırma işlemine tabi tutulmuş seramik bileşimlerinin yüzey alanları dikkate alınarak zamana bağlı birim kütle kayıpları hesaplanmıştır.

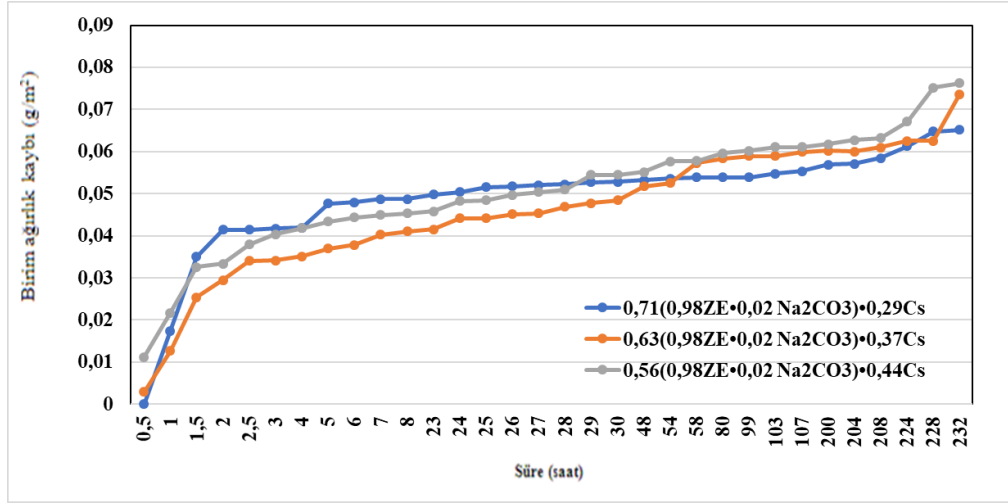
Şekil 4.2 ve Şekil 4.3'te sırasıyla bentonit ve zeolit ana matrisli sezyum immobilize edilmiş örneklerin, yüzey alanlarına bağlı birim ağırlık kayıplarını gösteren grafikler gösterilmiştir.

Bentonit ve zeolit ana matrisli stronsiyum immobilize edilmiş örneklere ait birim ağırlık kayıpları ise Şekil 4.4 ve Şekil 4.5'te verilmiştir.

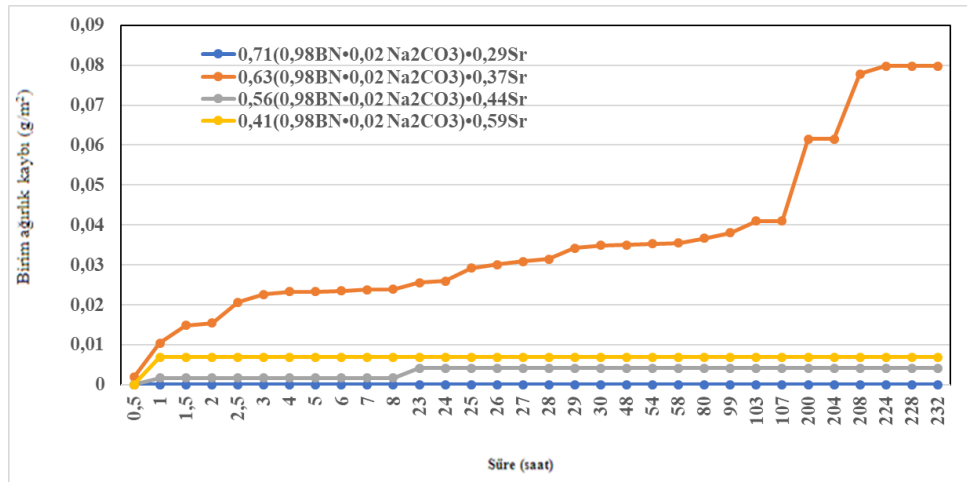
Çizilen grafikler sonucunda hesaplanan ortalama çözünme değerleri ve yaşlandırma işlemi sonucunda bidistile suyun ilk ve son pH değerleri sezyum içeren seramikler için Çizelge 4.5'te, stronsiyum içeren seramikler için ise Çizelge 4.6'da verilmiştir.



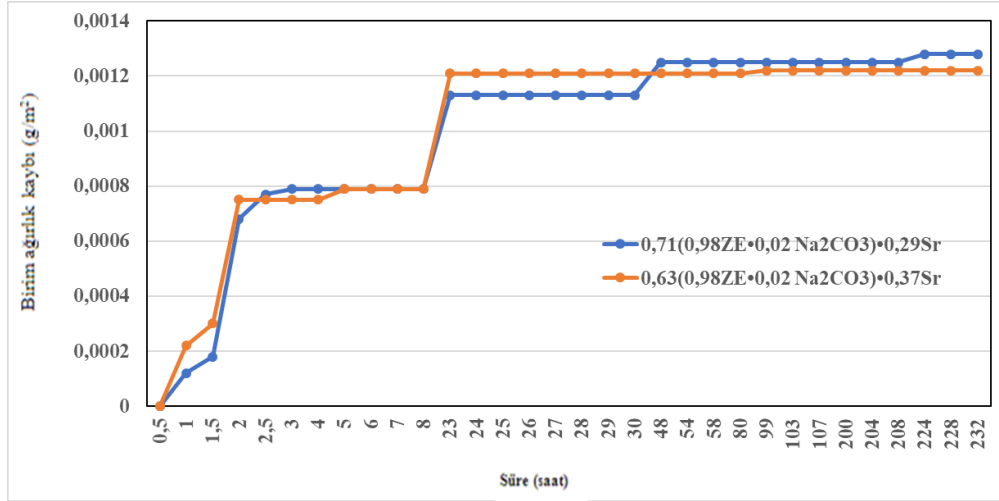
Şekil 4.2 : İmmobilize Cs içeren bentonit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.



Şekil 4.3 : İmmobilize Cs içeren zeolit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.



Şekil 4.4 : İmmobilize Sr içeren bentonit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.



Şekil 4.5 : İmmobilize Sr içeren zeolit ana matrisli seramiklerin birim ağırlık kayıplarının zamana bağlı değişimi.

Çizelge 4.5 : İmmobilize sezyum içeren seramiklerin ortalama çözünme hızları ve çözelti pH değerleri.

Seramik Bileşimleri	Ortalama Çözünme Hızları [g/cm ² .gün]	pH ₁	pH ₂
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	0,026	8	11
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	0,043	7	11
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	0,055	9	11
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	0,055	7	11
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	0,057	8	11
0,56(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	0,059	8	11

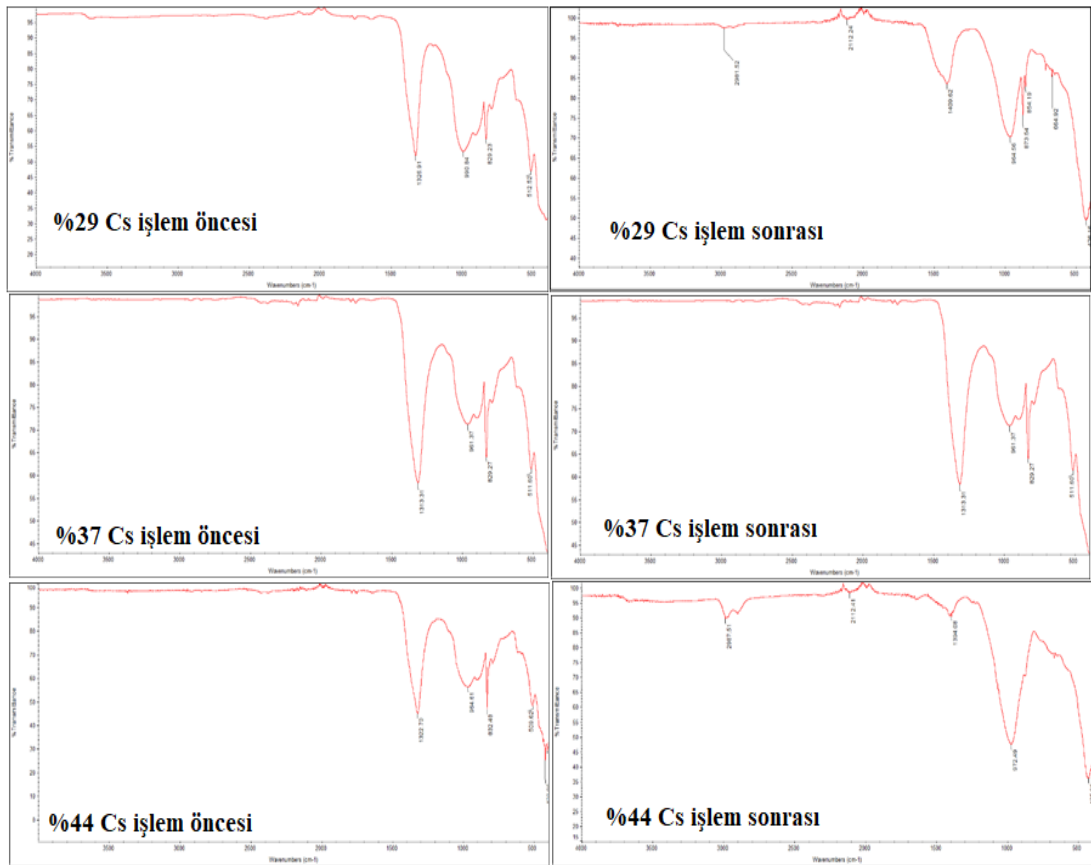
Çizelge 4.6 : İmmobilize stronsiyum içeren seramiklerin ortalama çözünme hızları ve çözelti pH değerleri.

Seramik Bileşimleri	Ortalama Çözünme Hızları [g/cm ² .gün]	pH ₁	pH ₂
0,71(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	0	10	11
0,63(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	0,047	10	11
0,56(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Sr	0,004	10	11
0,41(0,98BN•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,59Sr	0,007	9	11
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	0,001	10	11
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	0,001	7	11

4.4 Yapısal Karakterizasyon Testlerinin Sonuçları

4.4.1 FTIR analizi sonuçları

Hazırlanan farklı atık oranlarında sezyum ve stronsiyum içeren seramiklerin FTIR analizleri, özellikle parmak izi bölgesi olarak kabul edilen malzemeye özgü piklerin görüldüğü $1500-400\text{ cm}^{-1}$ dalga boyu aralığı dikkate alınarak değerlendirilmiştir. Spektrumlar, her bir seramik örneğinin yaşlandırma işlemi öncesi ve sonrası seramiklerin yapılarındaki değişimleri göstermektedir. Bentonit matrisli sezyum atığı içeren seramiklerin spektrumları Şekil 4.6’da verilmiştir.

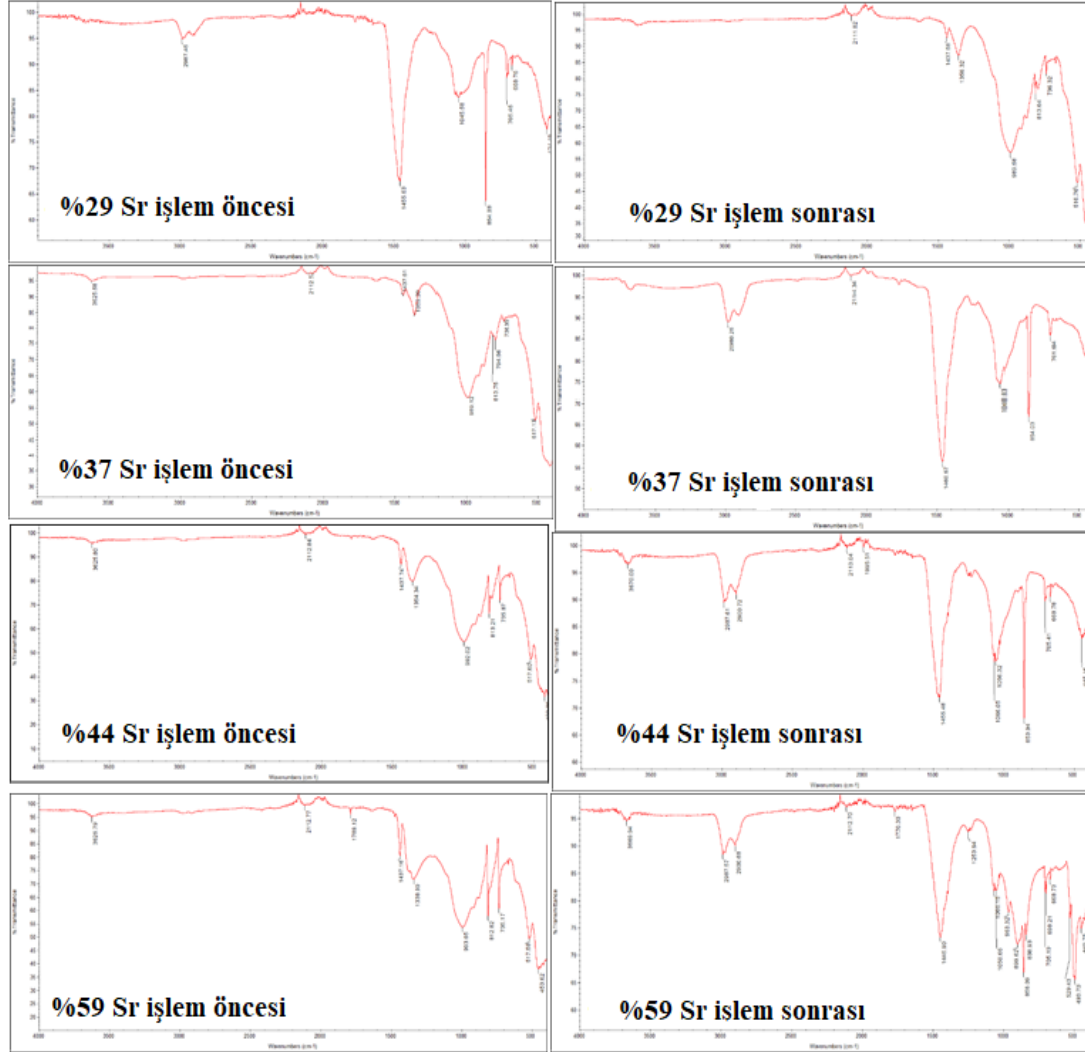


Şekil 4.6 : Bentonit matrisli sezyum atığı içeren seramiklerin FTIR spektrumları.

Bentonit ve sezyum içeren seramiklerin infrared spektrumlarının parmak izi bölgesinde gözlenen bandların tümü incelendiğinde, yaşlandırma işlemi öncesi seramiklerde 466 cm^{-1} civarında gözlenen band Si-O-Si bükülmelerini, 524 cm^{-1} civarında gözlenen band Al-O-Si bükülmelerini, 842 cm^{-1} civarında gözlenen band Al-OH-Mg bükülmelerini, 960 cm^{-1} civarında gözlenen bandlar ise Si-O bükülmelerini göstermektedir.

İşlem sonrası bentonit matrisli %29 atık oranında sezyum içeren seramikte AlFeOH deformasyonunun başladığı belirlenmiştir. Sezyum atığının miktarı arttıkça bu bağ kaybolmaktadır. 1300-1400 cm^{-1} civarında gözlenen H_2O bağı işlem sonrasında deformasyona uğramaktadır.

Bentonit matrisli stronsiyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları Şekil 4.7’de verilmiştir.

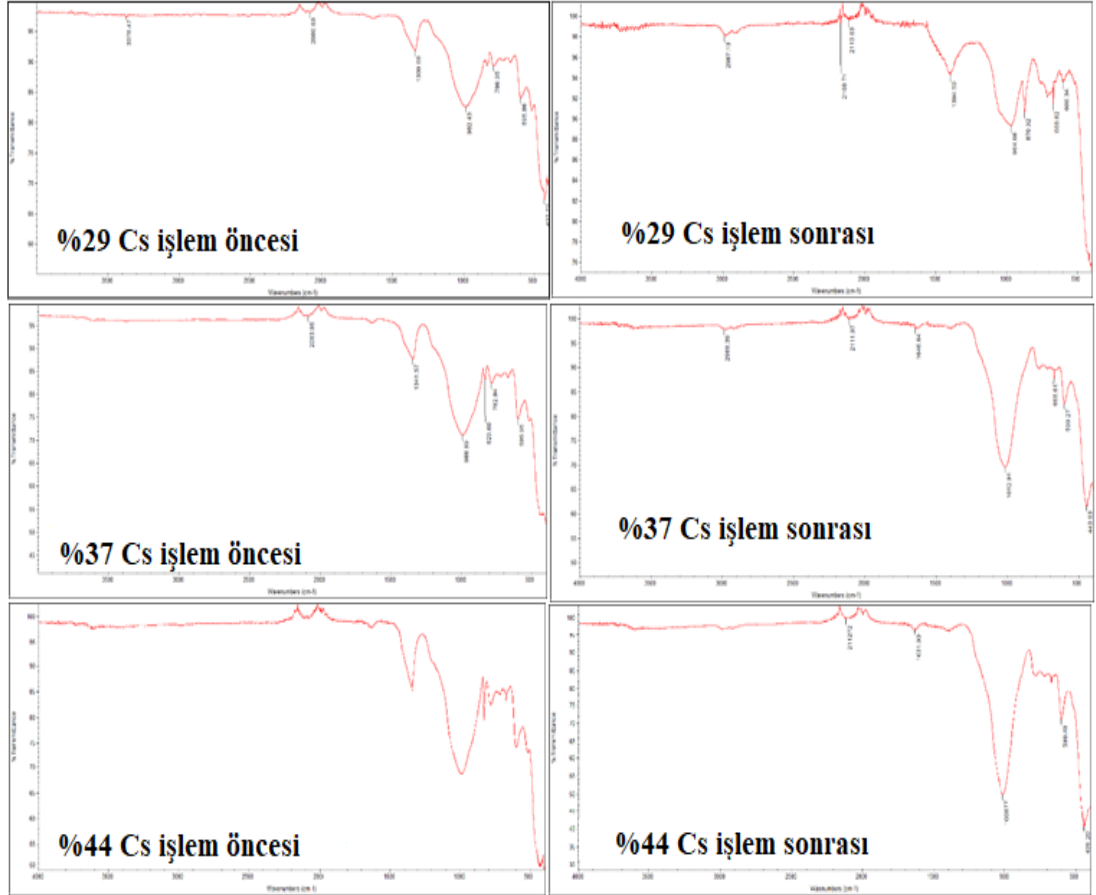


Şekil 4.7 : Bentonit matrisli stronsiyum içeren seramiklerin FTIR spektrumları.

Bentonit ve stronsiyum içeren seramiklerin infrared spektrumlarının parmak izi bölgesinde gözlenen bandların tümü incelendiğinde, işlem öncesi seramiklerde 420-460 cm^{-1} civarında Si-O-Si bükülmelerini, 524 cm^{-1} civarında Al-O-Si bükülmelerini, 700-730 cm^{-1} civarında kuartzın Si-O bükülmelerini, 842 cm^{-1} civarında gözlenen band Al-OH-Mg bükülmelerini, 890 cm^{-1} civarında AlFeOH deformasyonu, 960 cm^{-1} civarında gözlenen bandlar ise Si-O bükülmelerini göstermektedir.

İşlem sonrası bentonit+Sr seramiklerinde AlMgOH deformasyonunun şiddeti artmaktadır. Stronsiyum atığının miktarı arttıkça AlFeOH deformasyonunun şiddeti de artış göstermektedir. 2260-2090 cm^{-1} gözlenen Si-H bağları ve 3600 cm^{-1} de gözlenen O-H gerilmesi işlem sonrası bir değişim göstermemektedir.

Zeolit matrisli sezyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları Şekil 4.8’de verilmiştir.

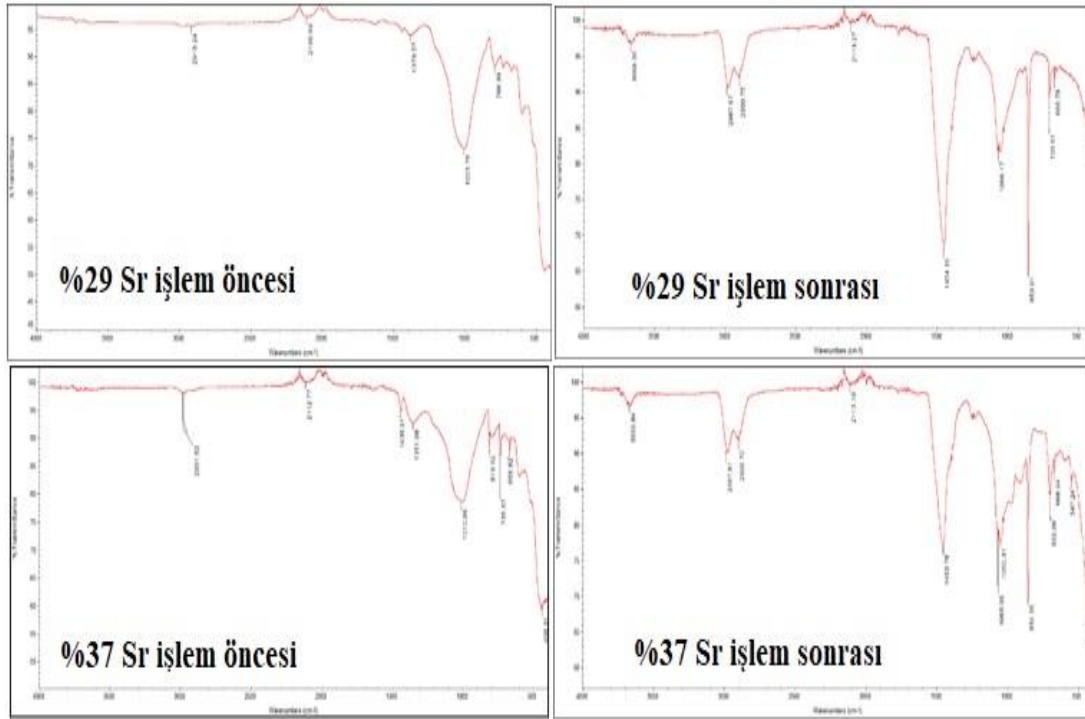


Şekil 4.8 : Zeolit matrisli sezyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları.

Spektrumun parmak izi bölgesinde zeoliti tanımlayan 1135 ve 725 cm^{-1} 'deki bantlar iç tetrahedralların asimetrik ve simetrik gerdirme bandlarını, 1020 ve 792 cm^{-1} 'deki bantlar harici bağlantıların asimetrik ve simetrik germe bandlarıyla ilişkilidir.

Sezyum içeren zeolit seramiklerinde işlem sonrası 870 cm^{-1} civarında Al-OH-Fe band bükülmelerinin olduğu sezyum miktarı arttıkça bu bandın kaybolduğu gözlenmiştir. 660 cm^{-1} 'de gözlenen Al-O+Si-O titreşim bandları işlem sonrası zeolit yapısında meydana gelmektedir.

Şekil 4.9 zeolit matrisli stronsiyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumlarını göstermektedir.



Şekil 4.9 : Zeolit matrisli stronsiyum içeren atık seramiklerin FTIR spektrumları.

400 ila 1300 cm^{-1} aralığında zeoliti tanımlayan spektrumda, 1135 ve 725 cm^{-1} 'deki bantlar iç tetrahedraların asimetrik ve simetrik gerdirme bandlarını, 1020 ve 792 cm^{-1} 'deki bantlar harici bağlantıların asimetrik ve simetrik germe bandları ile ilişkilidir.

Stronsiyum içeren zeolit seramiklerinde işlem sonrası 840 cm^{-1} civarında AlMgOH deformasyonları olduğu görülmektedir. 1040 cm^{-1} 'de gözlenen Si-O bükülmelerinin şiddeti artmaktadır. Yine işlem sonrası 520 cm^{-1} 'de Al-O-Si deformasyonları oluşmaktadır.

4.4.2 XRF analizi sonuçları

XRF analizi ile bentonit matrisli sezyum ve stronsiyum atık içeren seramik örnekleri için elde edilen elementel analiz sonuçları Çizelge 4.7'de, zeolit matrisli sezyum ve stronsiyum atık içeren seramik örnekleri için elde edilen elementel analiz sonuçları ise Çizelge 4.8'de verilmiştir.

Çizelge 4.7 : Bentonit matrisli atık içeren seramiklerin elementel analiz sonuçları.

Elementler (mg/kg)	%29Cs	%37Cs	%44Cs	%29Sr	%37Sr	%44Sr	%59Sr
Na ₂ O	42900	60258	29323	42476	41473	32572	20990
MgO	8947	4974	3435	19949	19693	13238	9726
Al ₂ O ₃	79445	82317	54665	140623	131672	117374	95105
SiO ₂	257872	287661	186924	597877	568457	579704	535197
K ₂ O	7537	9734	7825	10228	9603	7204	4839
CaO	24269	31592	23795	31076	29832	22783	14863
Fe ₂ O ₃	29174	23509	25552	23183	19833	14955	8455
SrO	1020	818	733	130368	175512	209659	309188
Cs ₂ O	546000	485681	658000				
ZnO	163	136	138	17	1	1	
SnO ₂	290	0	1				
TiO ₂		11433	8232	3089	2860	1894	1161
As ₂ O ₃		11	15				
BaO				337	352		
PbO	61	38	28		1		
P ₂ O ₅	617	834	486				
SO ₃	862	1003	508	778	713	618	476

Çizelge 4.8 : Zeolit matrisli atık içeren seramiklerin elementel analiz sonuçları.

Elementler (mg/kg)	%29Cs	%37Cs	%44Cs	%29Sr	%37Sr
Na ₂ O	30273	22994	29222	32350	23774
MgO	13819	9641	9405	9550	7606
Al ₂ O ₃	100165	85317	84340	96003	89518
SiO ₂	499186	449300	444992	662982	640117
K ₂ O	24893	17690	14756	25062	22715
CaO	12588	11667	7227	13605	12294
Fe ₂ O ₃	6514	6188	4893	6230	5401
SrO	437	356	253	152204	197070
Cs ₂ O	304778	361834	403060	382	189
ZnO	56	47	68	1	1
SnO ₂	153	67	103	38	
TiO ₂	3781	6577	1	722	677
As ₂ O ₃	31	29	21	51	44
PbO	33	24	16	1	1
P ₂ O ₅	399	335	441	226	
SO ₃	588	514	548		

4.4.3 ICP-ES analizi sonuçları

Atık immobilize edilmiş tüm seramik bileşimlerinin özütlenme hızları, seramiklerin yaşlandırma işlemi öncesi ve sonrası çözeltiye geçen element konsantrasyonları dikkate alınarak hesaplanmıştır. Sonuçlar Çizelge 4.9’da verilmiştir.

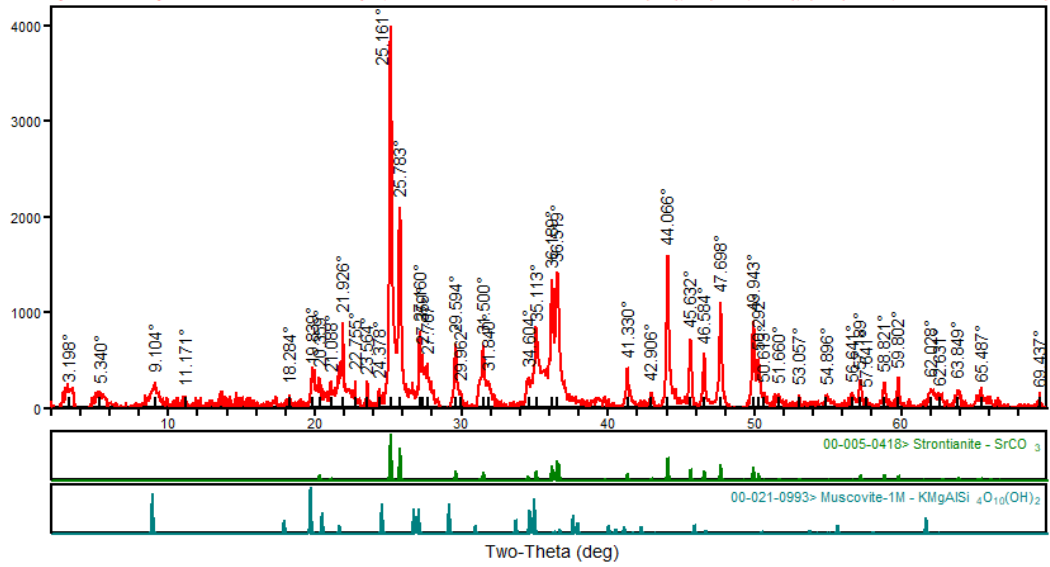
Çizelge 4.9 : Atık immobilize edilmiş tüm seramik bileşimlerinin özütlenme hızları.

Seramik Bileşimleri	W ₀ (g)	Yüzey alanı cm ²	LR _{Cs} (g cm ⁻² gün ⁻¹)	LR _{Sr} (g cm ⁻² gün ⁻¹)
0,71BN•0,29Cs	1,3260	4,04	0,0659	
0,63BN•0,37Cs	1,2998	4,23	0,0445	
0,56BN•0,44Cs	1,1077	4,04	0,0157	
0,71BN•0,29Sr	1,2342	4,23		0,0899
0,63BN•0,37Sr	1,2866	4,11		0,0821
0,56BN•0,44Sr	1,1751	3,80		0,0645
0,41BN•0,59Sr	1,0025	3,83		0,0623
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Cs	1,2260	3,93	0,0470	
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Cs	1,2280	4,21	0,0992	
0,56(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,44Cs	1,0384	4,16	0,0795	
0,71(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,29Sr	1,1943	4,60		0,0617
0,63(0,98ZE•0,02 Na ₂ CO ₃)•0,37Sr	1,1771	4,83		0,0998

Stronsiyum atık içeren seramiklerde, ana matris içinde atık oranı arttıkça özütlenme hızının düştüğü gözlenirken sezyum atık içeren seramiklerde ise özütlenme hızının arttığı belirlenmiştir.

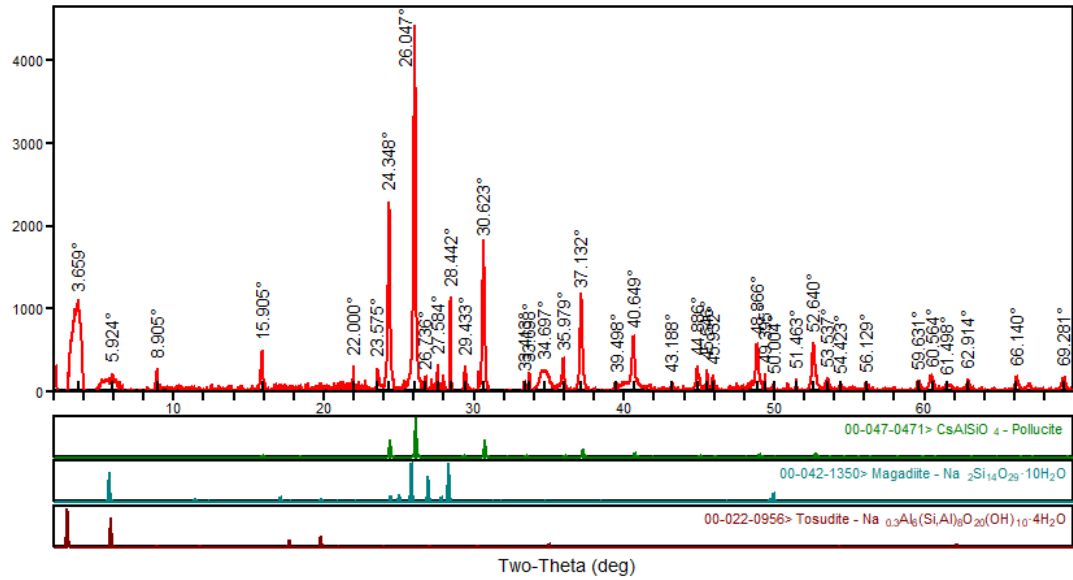
4.4.4 XRD sonuçları

Sezyum ve stronsiyum immobilize edilmiş seramik bileşimlerinden aynı atık oranına sahip 0,63(0,98BN•0,02Na₂CO₃)•0,37Sr, 0,63(0,98BN•0,02Na₂CO₃)•0,37Cs, 0,63(0,98ZE•0,02Na₂CO₃)•0,37Sr ve 0,63(0,98ZE•0,02Na₂CO₃)•0,37Cs kodlu örneklerin XRD spektrumları alınmıştır. Stronsiyum immobilize edilmiş bentonit örneğine ait spektrum Şekil 4.10’da verilmiştir.



Şekil 4.10 : Stronsiyum immobilize edilmiş bentonit matrisli seramiğin XRD spektrumu.

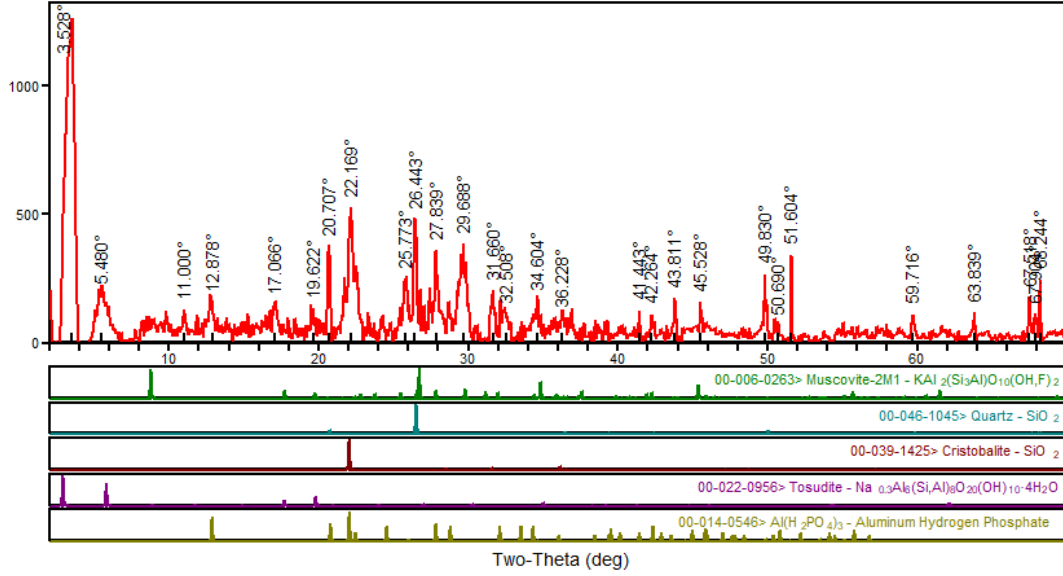
0,63(0,98BN•0,02Na₂CO₃)•0,37Sr kodlu örnekte oluşan ana fazın Muskovit (KMgAlSi₄O₁₀(OH)₂) olduğu ve immobilize edilmesi için yapıya katılan stronsiyumun bentonit ile kimyasal reaksiyona girerek Stronsiyanit (SrCO₃) oluşturduğu görülmüştür. Sezyum içeren bentonit örneğine ait XRD spektrumu Şekil 4.11’de verilmiştir.



Şekil 4.11 : Sezyum immobilize edilmiş bentonit matrisli seramiğin XRD spektrumu.

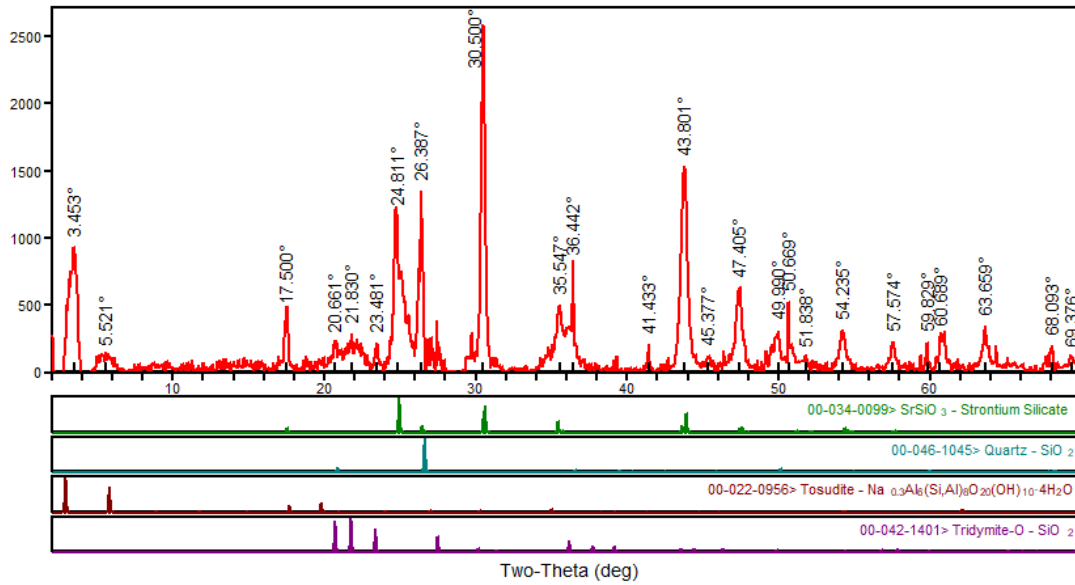
0,63(0,98BN•0,02Na₂CO₃)•0,37Cs kodlu örnekte Tosudit (Na_{0.3}Al₆(SiAl)₈O₂₀(OH)₁₀•4H₂O) ve Magadit (Na₂Si₁₄O₂₉•10H₂O) fazlarının oluştuğu

görülmüştür. Atık sezyum kimyasal reaksiyona girerek yapıda Polusit (CsAlSiO_4) olarak yer almıştır. Sezyum içeren zeolit örneğine ait XRD spektrumu Şekil 4.12’de verilmiştir.



Şekil 4.12 : Sezyum içeren zeolit matrisli seramiğin XRD spektrumu.

0,63(0,98ZE•0,02 Na_2CO_3)•0,37Cs kodlu örnekte ortaya çıkan fazların Muskovit ($\text{KAl}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH},\text{F})_2$), Kuartz (SiO_2), Kristobalit (SiO_2), Tosudit ($\text{Na}_{0.3}\text{Al}_6(\text{SiAl})_8\text{O}_{20}(\text{OH})_{10}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$) ve $\text{Al}(\text{H}_2\text{PO}_4)_3$ olduğu görülmüştür. Stronsiyum içeren zeolit örneğine ait XRD spektrumu Şekil 4.13’te verilmiştir.



Şekil 4.13 : Stronsiyum immobilize edilmiş zeolit matrisli seramiğin XRD spektrumu.

0,63(0,98ZE•0,02Na₂CO₃)•0,37Sr kodlu örnekte ortaya çıkan fazların Tridimit (O-SiO₂), Kuartz (SiO₂), Tosudit (Na_{0.3}Al₆(SiAl)₈O₂₀(OH)₁₀.4H₂O) olduğu ve atık stronsiyumun zeolit ile kimyasal reaksiyona girerek yapıda Stronsiyum silikat (SrSiO₃) olarak tutulduğu görülmüştür.

5. SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu çalışmada, nükleer atık yönetiminde gelişmekte olan katılaştırma malzemelerinden birisi olan seramik matrisler içerisinde önemli fisyon ürünleri olan sezyum ve stronsiyumun immobilize edilmesi incelenmiştir. Seramiklerde ana matris olarak nükleer atık alanlarında sıklıkla kullanılan killerden zeolit ve bentonit kullanılmıştır.

Hazırlanan seramik matrislerin fiziksel ve kimyasal dayanımında önemli rol oynayan sinterleme sıcaklığı ve sinterleme süresi öncelikli olarak saptanmış ve bentonit matrisli seramiklerde sinterleme sıcaklığı 500°C, sinterleme süresi ise 52 saat olarak belirlenmiştir. Zeolit matrisli seramiklerde ise en uygun sinterleme sıcaklığı 500°C, sinterleme süresi ise 72 saat olarak bulunmuştur. Seramik matrislerin hazırlanmasına etki eden en önemli parametrenin sinterleme süresi olduğu saptanmıştır.

Zeolit mineralinin ana matris olarak kullanıldığı seramik bileşimlerinde, pelet basmada karşılaşılan sorunlar nedeniyle bu tür seramiklerde bağlayıcılar kullanılmıştır. Bağlayıcı olarak boroksit (B_2O_3) ve sodyum karbonat (Na_2CO_3) kullanılarak farklı atık oranlarında seramikler hazırlanmış ve en uygun bağlayıcının Na_2CO_3 olduğuna karar verilmiştir.

Hazırlanan atıklı seramiklerin fiziksel dayanım testleri tahribatsız test ile gerçekleştirilmiştir. Bu test sonucunda elde edilen boyuna ve enine dalga hızları kullanılarak her bir seramiğin elastisite modülü (E) ve Poisson oranı (μ) değerleri hesaplanmıştır. Elde edilen sonuçlardan, Poisson oranının atık oranından bağımsız olduğu benzer bileşimler için çok değişmediği saptanmıştır. Stronsiyum atıklı seramiklerin elastisite modülünün sezyum atıklı seramiklere göre yaklaşık 3 kat daha yüksek olduğu belirlenmiştir. Kimyasal dayanım testi sonuçları incelendiğinde, sezyum içeren atıklı seramiklerin ilk pH değerlerinin 7-8'den pH 11'e kadar çıktığı, stronsiyum içeren seramiklerde ise 9-10'dan pH 11'e kadar yükseldiği saptanmıştır. Her bir atıklı seramiğin ortalama çözünme hızları incelendiğinde, stronsiyum atık içeren zeolit matrisli seramiklerde bu değerlerin bentonit matrislilere göre daha düşük olduğu belirlenmiştir. Sezyum içeren atık seramiklerde ise ortalama çözünme hızları çok büyük bir farklılık göstermemektedir.

Seramik atık formlarının yapısal karakterizasyonlarının değerlendirilmesi, FTIR analizleri, XRF analizleri ve özütlenme hızının tayini ile yapılmıştır.

FTIR analizinden elde edilen sonuçlara göre, stronsiyum içeren zeolit seramiklerinde korozyon sonrası AlMgOH deformasyonları, Si-O bükülmelerinin şiddeti artma ve Al-O-Si deformasyonlarının olduğu saptanmıştır. Sezyum içeren zeolit seramiklerinde ise korozyon sonrası Al-OH-Fe band bükülmelerinin olduğu ve Al-O+Si-O titreşim bandlarının meydana geldiği belirlenmiştir. Korozyon sonrası bentonit matrisli stronsiyum içeren seramiklerde AlMgOH deformasyonunun şiddeti arttığı, Si-H bağları ve O-H gerilmesinin korozyon sonrası bir değişim göstermediği saptanmıştır. Bentonit matrisli sezyum içeren seramikte ise AlFeOH deformasyonunun başladığı görülmektedir.

XRF ile gerçekleştirilen elementel analiz sonuçları, bentonit mineralinin kendi yapısı içerisinde de stronsiyum içerdiği, ancak mineral yapı içerisinde sezyum bulunmadığı görülmüştür. Yine benzer şekilde zeolit mineralinin de kendi yapısı içinde bentonite oranla daha düşük konsantrasyonda olsa da stronsiyum içerdiği görülmektedir.

Kimyasal dayanım testleri sonrası seramik malzemelerin içerisinde 7 gün 90°C’de bekletildiği bidistile suyun analiz sonuçları incelendiğinde, hem bentonit hem de zeolit mineralinin yapısında bulunan Na ve Mg’un kolaylıkla yapıdan ayrılarak çözelti ortamına geçtiği saptanmıştır. Bunun yanı sıra, bentonit matrisli seramiklerde stronsiyumun özütlenme hızının sezyuma göre daha yüksek olduğu, zeolit matrisli seramiklerde ise çok fazla bir farklanmanın olmadığı belirlenmiştir.

XRD analizi sonrası elde edilen spektrumlar göz önüne alınarak sıvı faz sinterleme sonrası seramiklerde oluşan fazlar incelenmiştir. Bentonit matrisli seramiklerde her iki atık türünde de kimyasal reaksiyon gerçekleşmiş ve oluşan fazda atık immobilize edilmiştir. Zeolit matrisli seramiklerde stronsiyum ile kimyasal reaksiyon gerçekleşirken, atık olarak sezyum içeren seramiklere ait spektrumlarda sezyum içeren faza rastlanmamıştır. Yapı içerisinde sezyumun tutulumunun atığın bağlayıcı tarafından kaplanmasıyla gerçekleştiği düşünülmektedir.

Elde edilen tüm sonuçlar göz önüne alındığında, nükleer atık alanlarının tercih edilen bariyer malzemelerinden olan killeri kullanarak hazırlanan seramik yapıların nükleer atıkların immobilize edilmesinde kullanılabileceği, cam matrisli immobilizasyon malzemelerine göre proses sıcaklıklarının düşük atık alma kapasitelerini daha yüksek

olduđu belirlenmiřtir. Bu t r malzemelerin bileřimlerinde yapılacak bazı deęiřikliklerle kimyasal ve fiziksel dayanımlarının daha y kselebilir. Bu amala, bařlangı denemelerde alıřtıęımız doęal kurřun minerali ieren bileřimler konusunda daha detaylı alıřmalar yapılabilir.

KAYNAKLAR

- Akdeniz Üniversitesi.** (2017). İndüktif Olarak Eşleştirilmiş Plazma - Kütle Spektrometresi (ICP-MS). Erişim: 14 Ağustos 2017, <http://gidaarge.akdeniz.edu.tr/cihazlar.i31.induktif-olarak-eslestirilmis-plazma-kutle-spektrometresi-ic>
- Akın, Y. ve Çelik, M.** (1995). Montmorillonit tipi killerin elektrokinetik davranışı, *Endüstriyel Hammaddeler Sempozyumu*, İzmir, Türkiye. 21-22 Nisan.
- Ames, L.** (1961). Cation sieve properties of the open zeolites chabazite, mordenite, erionite and clinoptilolite, *American Mineralogist*, 46(9-10), 1120-1131.
- Aubin-Chevaldonnet, V., Caurant, D., Dannoux, A., Gourier, D., Charpentier, T., Mazerolles, L., & Advocat, T.** (2007). Preparation and characterization of (Ba, Cs)(M, Ti) 8O_{16} (M= Al 3^{+} , Fe 3^{+} , Ga 3^{+} , Cr 3^{+} , Sc 3^{+} , Mg 2^{+}) hollandite ceramics developed for radioactive cesium immobilization, *Journal of Nuclear Materials*, 366, 137-160.
- Bergaya, F., & Lagaly, G.** (2006). General Introduction: Clays, Clay Minerals, and Clay Science. In F. Bergaya, B.K.G. Theng, G. Lagaly (Eds.), *Handbook on clay science* (Vol. 1, pp.1-18). Retrieved from <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1572435205010019>
- Birks, A. S., Green, R. E., & McIntire, P.** (1991). *Ultrasonic Testing*. Colombus, OH: American Society for Nondestructive Testing.
- Boatner, L., & Sales, B.** (1988). Monazite. In W. Lutze, R.C. Ewing (Eds.), *Radioactive waste forms for the future* (Vol. 21, pp.495-564). Retrieved from https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:21065072
- Brodde, B. G., & Mingxia, X.** (1988). Leaching of chlorine, cesium, strontium and technetium from cement-fixed intermediate level liquid waste. In W. Lutz, R.C. Ewing (Eds.), *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XII* (pp.481-488). Pittsburgh, PA: Materials Research Society.
- Brownstein, M.** (1981). Radioactive Waste Solidification. *ASME Short Course, Radioactive Waste Management, for Nuclear Power Reactors and Other Facilities*. Kingston, Tennessee: GTS Duratek.
- Clark, D. E., White, W. B., & Machiels, A. J.** (1986). *Nuclear Waste Management II*. American Ceramic Society.
- De Jonghe, L. C., Rahaman, M. N.** (2003). Sintering of Ceramics. In S. Somiya (Ed.), *Handbook of Advanced Ceramics: Materials, Applications, Processing, and Properties*, (pp.187-263). Waltham, USA: Elsevier.
- DOE, U.S.** (1981). Nuclear Waste Materials Handbook (Test Methods). (Report DOE/TIC-1400). Washington, Pasific Northwest Laboratory.

- Donald, I., Metcalfe, B., & Taylor, R. J.** (1997). The immobilization of high level radioactive wastes using ceramics and glasses. *Journal of Materials Science*, 32(22), 5851-5887.
- Erdal, L.** (2006). *Baryum hegza ferritin sıvı faz sinterlesmesi ve mikroyapı incelemeleri*. (Yüksek lisans tezi). Gazi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara.
- Ewing, R. C., & Lutze, W.** (1991). High-level nuclear waste immobilization with ceramics. *Ceramics International*, 17(5), 287-293.
- Ewing, R. C.** (2007). Ceramic matrices for plutonium disposition. *Progress in Nuclear Energy*, 49(8), 635-643.
- Filter, H., & Roberson, K.** (1979). Solidification of low-level radioactive wastes from nuclear power plants. In M.W. Carter, A.A. Moghissi, B. Kahn (Eds.), *Management of low-level radioactive waste* (Vol. 1, pp.605-623). New York: Pergamon Press.
- German, R. M.** (1985). *Liquid Phase Sintering*. New York: Plenum Press.
- German, R. M.** (1996). *Sintering Theory and Practice*. New York: John Wiley & Sons.
- Gülen, J., Zorbay, F. ve Arslan, S.** (2012). Zeolitler ve kullanım alanları. *Karaelmas Fen ve Mühendislik Dergisi*, 2(1), 63-68.
- Hayward, P. J.** (1988). The use of glass ceramics for immobilising high level wastes from nuclear fuel recycling. *Glass Technology*, 29(4), 122-136.
- Hench, L., Clark, D., & Campbell, J.** (1984). High level waste immobilization forms. *Nuclear and Chemical Waste Management*, 5(2), 149-173.
- Hidaka, S., & Yuan, W.** (2012). *Radioactive Waste: Sources, Types and Management*. New York: Nova Science.
- IAEA** (2009). *Classification of Radioactive Waste*. Retrieved from http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1419_web.pdf
- İpekoğlu, B., Kurşun, İ., Bilge, Y. ve Barut, A.** (1997). Türkiye bentonit potansiyeline genel bir bakış. İçinde H. Köse, V. Arslan (Editörler), *Endüstriyel Hammaddeler Sempozyumu*, 2, (s.51-69). İzmir.
- Ishizaki, K., Komarneni, S., & Nanko, M.** (1998). *Porous Materials*. New York: Springer.
- Itoh, K., & Nakayama, S.** (2002). Immobilization of cesium by crystalline zirconium phosphate. *Journal of Materials Science*, 37(8), 1701-1704.
- Jantzen, C., Lee, W., & Ojovan, M.** (2013). Radioactive waste (RAW) conditioning, immobilization, and encapsulation processes and technologies: overview and advances. In W.E. Lee, M.I. Ojovan, C. Jantzen (Eds.), *Radioactive Waste Management and Contaminated Site Clean-up* (pp.171-272). Cambridge: Woodhead.
- Köktürk, U.** (1995). Zeolit madenciliği ve çevre sağlığına etkileri. İçinde Köse, Kail (Editörler), *Endüstriyel Hammaddeler Sempozyumu* (s.21-22). İzmir.
- Krautkrämer, J., & Krautkrämer, H.** (2013). *Ultrasonic testing of materials*. New York: Springer.

- Kumar, B., & Lin, S.** (1991). Redox state of iron and its related effects in the CaO–P₂O₅–Fe₂O₃ glasses. *Journal of the American Ceramic Society*, 74(1), 226-228.
- Lee, W., Ojovan, M., Stennett, M., & Hyatt, N.** (2006). Immobilisation of radioactive waste in glasses, glass composite materials and ceramics. *Advances in Applied Ceramics*, 105(1), 3-12.
- Lowe, B. M.** (1983). An equilibrium model for the crystallization of high silica zeolites. *Zeolites*, 3(4), 300-305.
- Lutze, W., & Ewing, R. C.** (1988). Summary and evaluation of nuclear waste forms. In W. Lutze, R.C. Ewing (Eds.), *Radioactive Waste Forms for The Future*, (pp. 699-740). New York: Elsevier Science.
- Malayoğlu, U. ve Akar, A.** (1995). Killerin sınıflandırmasında ve kullanım alanlarının saptanmasında aranan kriterlerin irdelenmesi. İçinde Köse, Kail (Editörler), *Endüstriyel Hammaddeler Sempozyumu* (s.125-142). İzmir.
- Matori, K. A., Zaid, M. H. M., Aziz, S. H. A., Kamari, H. M., & Wahab, Z. A.** (2013). Study of the elastic properties of (PbO) x (P₂O₅) 1– x lead phosphate glass using an ultrasonic technique. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 361, 78-81.
- Minoru, O., & Momma, T.** (2015). Radyoaktif atık tedavisi teknolojileri. In S. Nagasaki, S. Nakayama (Eds.), *Radioactive Waste Engineering and Management* (pp.119-151). Japan: Springer.
- Montmorillonite.** (n.d.). *Wikimedia*. Retrieved August 10, 2017, from <https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Montmorillonit.png>
- Nakayama, S., & Itoh, K.** (2003). Immobilization of strontium by crystalline zirconium phosphate. *Journal of the European Ceramic Society*, 23(7), 1047-1052.
- Nishi, T., Matsuda, M., Chino, K., & Kikuchi, M.** (1992). Reduction of cesium leachability from cementitious resin forms using natural acid clay and zeolite. *Cement and Concrete Research*, 22(2-3), 387-392.
- Ojovan, M. I., & Lee, W. E.** (2013). *An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation*, (2nd. ed.). Jordon Hill: Elsevier Science.
- Öter, Ö.** (2002). *Zeolitin asit-baz modifikasyonu ve modifiye zeolitin çevre koruma uygulamaları*. (Yüksek lisans tezi). Dokuz Eylül Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, İzmir.
- Özgener, H. A.** (2009). Nükleer Atık Sorunu ve Uranyum Ötesi Elementlerin Dönüşümleri. *X. Ulusal Nükleer Bilimler ve Teknolojileri Kongresi*, Muğla, Türkiye: 6-9 Ekim.
- Perera, D., Begg, B., Vance, E., & Stewart, M.** (2004). Application of crystal chemistry in the development of radioactive wasteforms. *Advances in Technology of Materials and Materials Processing Journal*, 6, 214-217.
- Pusch, R.** (2015). *Bentonite clay: environmental properties and applications*. Florida : CRC.

- Raj, K., Prasad, K., & Bansal, N.** (2006). Radioactive waste management practices in India. *Nuclear Engineering and Design*, 236(7), 914-930.
- Ringwood, A., Kesson, S., & Ware, N.** (1980). Immobilization of US defense waste using Synroc process. In J. M. Clyde, Jr Northrup (Eds.), *Scientific Basis for Nuclear Waste Management*, (Vol. 2, pp.265-272). Boston: Springer.
- Sarkisov, P.** (1989). The modern state of technology and application of glass-ceramics. *Glass*, 89, 411-441.
- Scheetz, B., Agrawal, D., Breval, E., & Roy, R.** (1994). Sodium zirconium phosphate (NZP) as a host structure for nuclear waste immobilization: a review. *Waste Management*, 14(6), 489-505.
- Seliman, A., Lasheen, Y., Youssief, M., Abo-Aly, M., & Shehata, F.** (2014). Removal of some radionuclides from contaminated solution using natural clay: bentonite. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 300(3), 969-979.
- Skoog, D., & Leary, J.** (1985). *Principles of Instrumental Analysis*. Fort Worth, TX: Saunders College Publishing.
- Speranzini, R. A., & Hayward, P. J.** (1984). Development of sphene-based glass-ceramics for disposal of some Canadian wastes. *Advanced Ceramics*, 8, 273-281.
- Suripto, A., & Wisnubroto, D. S.** (2003). Safe Management of Spent Radiation Source. *Japanese Journal of Health Physics*, 38(2), 181-187.
- Taylor, R. F., McPhillimy, J., & Pacey, N. R.** (1988). The treatment and packaging of waste plutonium and waste actinides for disposal (Report No. DOE-RW-88.089). Department of the Environment Radioactive Waste Management Research Programme.
- Taylor, D., & Webster, S.** (1999). Public opinion on radioactive waste management in the European Union. *International Topical Meeting on Radioactive Waste Management: Commitment to the Future Environment (ENS Topseal'99)*. Antwerp, Belgium.
- Thermo Nicolet Corporation.** (2001). Introduction to fourier transform infrared spectrometry. Retrieved from <http://www.eng.uc.edu/~beaucag/Classes/Characterization/FTIRintro.pdf>
- Türker, M., Güven, E. A. ve Ertürk, A. T.** (2011). Ultrasonik Yöntem ile Tahribatsız Malzeme Muayenesi. *Metal Dünyası*, 222, 108-115.
- Vance, E. R., Urquhart, S., Anderson, D., & George, I.** (1986). Immobilization of uranium-rich high-level nuclear waste. In D.E. Clark, W.B. White, A.J. Michiels (Eds.), *Nuclear waste management II* (Vol. 20, pp.249-258). Ohio: American Ceramic Society.
- Vargese, C., Govindan, A., & Wattal, P.** (1995). Cementitious matrices for intermediate level aqueous radioactive wastes (Report no BARC/1995/E/OO4). Bombay: Bhabha Atomic Research Centre. Retrieved from

http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/27/032/27032285.pdf

Wang, L., & Liang, T. (2012). Ceramics for high level radioactive waste solidification. *Journal of Advanced Ceramics*, 1(3), 194-203.

Willard, H. H., Merritt Jr, L. L., Dean, J. A., & Settle Jr, F. A. (1988). *Instrumental methods of analysis*. Florence: Wadsworth.

Yılmaz, Ş. ve Günay, V. (1999). Cam-seramik malzemeler. *Met. Dergisi*, 23(121).

Zeolyst International. (n.d.). *Zeolite FAQ's*. Retrieved August 15, 2017 from <http://www.zeolyst.com/faqs.aspx>

ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad : Neslihan YANIKÖMER
Doğum Tarihi ve Yeri : 06.06.1991 KADIKÖY
E-posta : n.yanikomer@gmail.com

ÖĞRENİM DURUMU:

- **Lisans** : 2015, İstanbul Teknik Üniversitesi, Makina Fakültesi, Makina Mühendisliği

MESLEKİ DENEYİM VE ÖDÜLLER:

- 2016-2017 : İstanbul Gelişim Üniversitesi Mekatronik Mühendisliği Bölümü'nde araştırma görevlisi olarak çalıştı.
- 2017- : Gebze Teknik Üniversitesi Enerji Teknolojileri Enstitüsü'nde araştırma görevlisi olarak çalışmaktadır.

YAYINLAR, SUNUMLAR VE PROJELER:

- Yanikomer, N., Asal, S., Hacıyakupoglu, S., Erenturk, S, 2016. New Solidification Materials in Nuclear Waste Management, *International Journal of Engineering Technologies*, 2(2), 76-82.
- Yanıkömer N., Hacıyakupoğlu S., Akyil Erentürk S., 2016. Removal of chromium from aqueous media by using adsorption technique. *International Scientific-Practical Conference on Protection of Biodiversity in the conditions of Urbanization and industrialization*, October 1-2, 2016 Ganja, Azerbaijan.
- Akyil Erenturk S., Hacıyakupoglu S., Yanikomer N., Ileri R.K., Hicsonmez U., 2017. Spatial distribution and ecological risk assessment for heavy metals in surface sediments from Van Lake. *IASWS 2017 Symposium on "Interactions between Sediments and Water*, June 17-22, 2017 Taormina, Italy.
- Hacıyakupoglu S., Akyil Erenturk S., Ileri R.K., Yanikomer N., 2017. Chemical Patterns in Sediments of Ancient Theodosius Harbor (Istanbul). *IASWS 2017 Symposium on "Interactions between Sediments and Water*, June 17-22, 2017 Taormina, Italy.
- Yanıkömer N., Erenturk S., Hacıyakupoglu S., 2017. Applications of Ceramic Materials In Nuclear Waste Management. *International Materials Technologies*

and Metallurgy Conference 2017 in Honor of Prof. Dr. Erdem Demirkeseen, October 26-27, 2017 Istanbul, Turkey.

- Asal S., Erenturk S., Hacıyakupoglu S., Yanıkömer N., 2017. Radiation Shielding Materials with Ceramic Matrix. *International Materials Technologies and Metallurgy Conference 2017 in Honor of Prof. Dr. Erdem Demirkeseen*, October 26-27, 2017 Istanbul, Turkey.
- Yanıkömer N., Asal S., Hacıyakupoğlu S., Akyıl Erenturk S., 2016. Yüksek Düzey Radyoaktif Atıklar için Seramik Matrislerin Geliştirilmesi. *XI. Ulusal Nükleer Bilimler ve Teknolojileri Sempozyumu*, Ekim 12-14, 2016 Kuşadası, Türkiye.
- Asal S., Yanıkömer N., Hacıyakupoğlu S., Akyıl Erenturk S., 2016. Çok fonksiyonlu radyasyon zırh malzemelerinin hazırlanması ve zırlama performanslarının araştırılması. . *XI. Ulusal Nükleer Bilimler ve Teknolojileri Sempozyumu*, Ekim 12-14, 2016 Kuşadası, Türkiye.
- Yanıkömer, N. (Araştırmacı), Erentürk, S., Yüksek Düzey Radyoaktif Atıklar için Seramik Matrislerin Geliştirilmesi, İstanbul Teknik Üniversitesi, Bilimsel Araştırma Projeleri, Lisansüstü Tezlerini Destekleme Programı Projesi, Proje No:39767 , 2016-.