



T.C
MUŞ ALPARSLAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

NÜKLEER YAKIT ATIKLARININ DEBYE-EİNSTEİN
MODELİ KULLANILARAK ISI KAPASİTESİNİN HESAPLANMASI
OKAN KÖSE

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Nükleer Enerji ve Enerji Sistemleri Anabilim Dalı

Eylül-2021
MUŞ
Her Hakkı Saklıdır



T.C
MUŞ ALPARSLAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

NÜKLEER YAKIT ATIKLARININ DEBYE-EİNSTEİN
MODELİ KULLANILARAK ISI KAPASİTESİNİN HESAPLANMASI
OKAN KÖSE

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Nükleer Enerji ve Enerji Sistemleri Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Hüseyin KOÇ

Eylül-2021
MUŞ
Her Hakkı Saklıdır

TEZ KABUL ve ONAYI

Okan KÖSE tarafından hazırlanan “Nükleer Yakıt Atıklarının Debye-Einstein Modeli Kullanarak Isı Kapasitesinin Hesaplanması” adlı tez çalışması/...../2021 tarihinde aşağıdaki jüri üyeleri tarafından oy birliği / oy çokluğu ile Muş Alparslan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Nükleer Enerji ve Enerji Sistemleri Anabilim Dalı’nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

Başkan

Prof. Dr. Cevad SELAM
Muş Alparslan Üniversitesi,
İktisadi ve İdari Bilimler Fakültesi,
İşletme Bölümü

Danışman

Doç. Dr. Hüseyin KOÇ
Muş Alparslan Üniversitesi,
Mühendislik Mimarlık Fakültesi,
Elektrik Elektronik Mühendisliği Bölümü

Üye

Prof. Dr. Erhan ESER
Ankara Hacı Bayram Veli Üniversitesi,
Fen Edebiyat Fakültesi,
Fizik Bölümü

İmza

.....

.....

.....

Yukarıdaki sonuç;
Enstitü Yönetim Kurulu/...../..... Tarih ve/..... nolu kararı ile onaylanmıştır.

Doç. Dr. Sedat BOZARI
FBE Müdürü

TEZ BİLDİRİMİ

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve seminer yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağının eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

DECLARATION PAGE

I hereby declare that all information in this documents has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and result that are not original to this work

Okan KÖSE

Tarih:

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

NÜKLEER YAKIT ATIKLARININ DEBYE-EİNSTEİN MODELİ KULLANILARAK ISI KAPASİTESİNİN HESAPLANMASI

Okan KÖSE

Muş Alparslan Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Nükleer Enerji ve Enerji Sistemleri Anabilim Dalı

Danışman: Doç. Dr. Hüseyin KOÇ

Günümüzde, insanlığın artan enerji ihtiyacı, enerji alanındaki çalışmaları çeşitlendirmiş, en az maliyetli, yüksek enerji elde edilecek çalışmalar ve uygulamaları öne çıkarmıştır. Nükleer enerjide verimliliği ve maliyet oranı bakımından, enerji kaynakları arasında, öne çıkan kaynaklardandır. Ne var ki nükleer atıkların saklanması ve bertaraf edilmesi, çevresel sorunlar bakımından, günümüzde hala tam bir mutabakat sağlanamamış konular arasında durmaktadır. Çalışmamız, nükleer güç reaktörlerinde fisil reaksiyon sonrası ortaya çıkan ve ömürleri milyon yılları bulan uranyum ötesi (transuranyum) yakıt atıklarının (Am^{241} , Np^{237} , Cm^{247}) ve yine nükleer reaksiyon sonucu oluşan ürünlerden olan sezyum, stronsiyum, teknyum gibi radyoaktif ürünleri barındıran, sarı faz bileşiklerinin ($BaMoO_4$, $MgMoO_4$, $SrMoO_4$) ısı kapasitesini, Debye-Einstein modeli kullanarak hesaplanmasını sağlama üzerinedir. Yüksek oranda radyoaktif olan fisyon ürünlerini barındıran katı bileşiklerin ısı kapasitesi hakkında bilgi sahibi olmamız ileri dönemlerde hem saklanması konusunda hem de yeniden işlenip enerji elde edilmesi bakımından yapılacak çalışmalarda katkı sunacaktır.

2021, 76 Sayfa

Anahtar Kelimeler: Atıkların camlaştırılması, ısı kapasitesi, molibdatlar, nükleer atıklar,

ABSTRACT

**MS THESIS
CALCULATION OF HEAT CAPACITY OF NUCLEAR FUEL WASTES USING
THE DEBYE-EINSTEIN MODEL
Okan KÖSE**

**MUS ALPASLAN UNIVERSITY
NATURAL AND APPLIED SCIENCE
DEPARMENT OF NUCLEAR ENERGY AND ENERGY SYSTEMS**

Advisor: Ass. Dr. Hüseyin KOÇ

Today, the increasing energy need of humanity has led to the the diversification of studies in the field of energy, and the studies and applications that will provide the least cost and high energy have come to the fore. In terms of efficiency and cost ratio, nuclear energy is one of the prominent sources among energy sources. However, storage and disposal of nuclear waste is still among the issues that have not been fully agreed upon in terms of environmental problems. Our study has focused on the analysis of transuranium fuel wastes (Am^{241} , Np^{237} , Cm^{247}) that emerge after the fissile reaction in nuclear power reactors and have a lifetime of millions of years, and yellow phase compounds containing radioactive products such as cesium, strontium, technetium, which are the products of nuclear reaction. ($BaMoO_4$, $MgMoO_4$, $SrMoO_4$) is about providing the calculation of the heat capacity using the Debye-Einstein model. Our knowledge about the heat capacity of solid compounds containing highly radioactive fission products will contribute to the studies to be carried out both in terms of storage and in terms of reprocessing and obtaining energy in the future.

2021, 76 Pages

Key Words: Glassification of waste, heat generation, molybdates

ÖNSÖZ

Bu çalışmada; nükleer reaktörlerde, uranyum cevherinin yakıt olarak kullanılması sonucu elde edilen atıklar, bu atıkların saklanması sırasında oluşan atıkları barındıran bileşikler, nükleer atık barındıran sarı faz bileşiklerinin ısı kapasitesi ve ısı kapasitesi hesaplama yöntemi üzerinde durulmuştur.

Tez çalışmasını yaptığım sırada tüm sorularımın yanıtını bulduğum ve her aradığımda üşenmeden yardımlarını sağlayan danışman hocam Doç. Dr. Hüseyin KOÇ'a, Einstein-Debye formülünün geliştirilmesinde, çalışmamıza büyük katkılar sunan Prof. Dr. Erhan ESER'e, üç yılı bulan çalışma süresince istemeden ihmal etmeme rağmen desteklerini hiç esirgemeyen eşim ve çocuklarıma, sonsuz teşekkürlerimi sunarım. Bu çalışmada okumalar yaparken hep durup dururken aklıma gelen, esas işin mutfağında çalışan ve bizlerin konfor içinde yaşamasının temel kaynağı olan, uranyum madeni ve tüm fosil yakıt madenlerinde çalışan işçilere şükranlarımı sunar, ellerinden öperim.

Okan KÖSE
MUŞ-2021

İÇİNDEKİLER

ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
ÖNSÖZ	vi
İÇİNDEKİLER	vii
SİMGELER ve KISALTMALAR.....	viii
Simgeler	viii
Kisaltmalar.....	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	x
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	xi
1. GİRİŞ	1
2. KAYNAK ARAŞTIRMASI	6
2.1 Nükleer Fisyon.....	6
2.2 Nükleer Güç Reaktörleri	8
2.3 Radyoaktif Atıklar	9
2.3.1 Aktinitler	12
2.3.1.1 Neptünyum (Np^{237})	15
2.3.1.2 Amerikyum (Am^{243})	18
2.3.1.3 Küriyum (Cm^{247}).....	21
2.3.2 Plütonyum	23
2.3.4 Nükleer atıkların bertarafı, saklanması ve camlaştırma metodunda oluşan bileşikler (Sarı Faz)	26
3. TEORİK ESASLAR.....	32
3.1 Klasik Yaklaşım	32
3.2 Einstein Modeli.....	33
3.3 Debye Modeli	36
3.4 Einstein-Debye Modeli	38
4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI ve TARTIŞMA	42
4.1 $EMoO4E = Mg, Sr, Ba$ Nükleer Yakıt Atık Bileşiklerinin Einstein-Debye Yaklaşımına Göre Isı Kapasitesinin (Cp) Hesaplanması.....	42
5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER.....	70
6. KAYNAKÇA.....	72
ÖZGEÇMİŞ	76

SİMGELER ve KISALTMALAR

Simgeler

Am ₉₅	: Amerikyum elementi ve izotopları
Ac ₈₉	: Aktinyum elementi ve izotopları
BaMoO ₄	: Baryum molibdat
CaMoO ₄	: Kalsiyum molibdat
Cf ₉₈	: Kaliforniyum elementi ve izotopları
Cm ₉₆	: Küriyum elementi ve izotopları
Cs ₅₅	: Sezyum elementi ve izotopları
Cs ₂ MoO ₄	: Sezyum molibdat
C _p	: Isı kapasitesi (sabit basınçta)
C _v	: Isı kapasitesi (sabit hacimde)
f	: Frekans
g/L	: Gram/litre
h	: Planck sabiti
I ₅₃	: İyot elementi ve izotopları
J	: Joule
K	: Kelvin
K _B	: Boltzmann sabiti
Kr ₃₆	: Kripton elementi ve izotopları
La ₂ (MoO ₄) ₃	: Latanyum molibdat
MgMoO ₄	: Magnezyum molibdat
N	: Avagadro sayısı
Na ₂ MoO ₄	: Sodyum molibdat
Np ₉₃	: Neptünyum elementi ve izotopları
Pa ₉₁	: Prolaktinyum elementi ve izotopları
Pm ₆₁	: Prometyum elementi ve izotopları
R	: Evrensel gaz sabiti
Pu ₉₄	: Plütonyum elementi ve izotopları
Ru ₄₄	: Rutenyum elementi ve izotopları
Sb ₅₁	: Antimon elementi ve izotopları
Sn ₅₀	: Kalay elementi ve izotopları
Sr ₃₈	: Stronsiyum elementi ve izotopları

SrMoO_4	: Stronsiyum molibdat
T	: Sıcaklık
Tc_{43}	: Teknesyum elementi ve izotopları
Th_{90}	: Toryum elementi ve izotopları
U_{92}	: Uranyum elementi ve izotopları
Zr_{40}	: Zirkonyum elementi ve izotoplar

Kısaltmalar

IAEA	: Uluslararası Atom Enerji Kurumu
TAEK	: Türkiye Atom Enerji Kurumu

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1 Difüzyon yöntemi ile uranyum zenginleştirme	2
Şekil 1.2 Ultra santrifüj yöntemi ile uranyum zenginleştirme.....	3
Şekil 1.3 Toryumun fisil hale gelme süreci	4
Şekil 2.1 Tipik bir fisyon reaksiyonu	6
Şekil 2.2 Tipik bir nükleer reaktör sistemi	9
Şekil 2.3. Nükleer yakıt çevrimi.....	26
Şekil 2.4 Atıkların camlaştırılması modellerinden biri	28
Şekil 2.5 Molibdatların suda 18-25 ° c'de çözünürlüğü	29
Şekil 2.6 Nükleer atıkların dönüşümü ve saklanması karşılaştırılması	30
Şekil 3.1 Elmasın molar ısı kapasitesinin T'ye göre değişmesi.....	35
Şekil 3.2. Birkaç katı maddenin molar ısı kapasitesi T'ye karşı.....	37
Şekil 3.3 Gümüş için Debye ve Einstein yaklaşımlarının karşılaştırmalı sonuçları.....	38
Şekil 3.4. Isı kapasitesinin sıcaklıkla değişimi.....	39
Şekil 4.1 MgMoO ₄ 'ün Isı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması.....	67
Şekil 4.2 BaMoO ₄ 'ün Isı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması.....	68
Şekil 4.3 SrMoO ₄ 'ün Isı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması.....	68

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1 Fisyonda serbest bırakılan ortalama nötron sayısı.....	7
Çizelge 2.2 Nötron yakalamayla oluşan önemli izotoplar-aktinitler-atıklar.....	8
Çizelge 2.3 Bir reaktörün temel bileşenleri ve materyaller.....	8
Çizelge 2.4 Atık sınıflarının tipik özellikleri.....	10
Çizelge 2.5 Bazı önemli fisyon ürünleri için yarı ömür ve çürüme tiplerine göre dallanma fraksiyonları.....	11
Çizelge 2.6 Aktinitlerin yarı ömürleri ve çürüme türlerine göre dallanma fraksiyonları.....	13
Çizelge 2.7 Neptünyum izotoplarının nükleer özellikleri.....	16
Çizelge 2.8 Amerikyum izotoplarının nükleer özellikleri.....	19
Çizelge 2.9 Curium izotoplarının nükleer özellikleri.....	21
Çizelge 2.10 Plütonyum izotoplarının nükleer özellikleri.....	24
Çizelge 4.1 $MgMoO_4$ için referans değerleri.....	46
Çizelge 4.2 $BaMoO_4$ için referans değerleri.....	47
Çizelge 4.3 $SrMoO_4$ için referans değerleri.....	47
Çizelge 4.4 $MgMoO_4$ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları.....	47
Çizelge 4.5 $BaMoO_4$ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları.....	56
Çizelge 4.6 $SrMoO_4$ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları.....	63

1. GİRİŞ

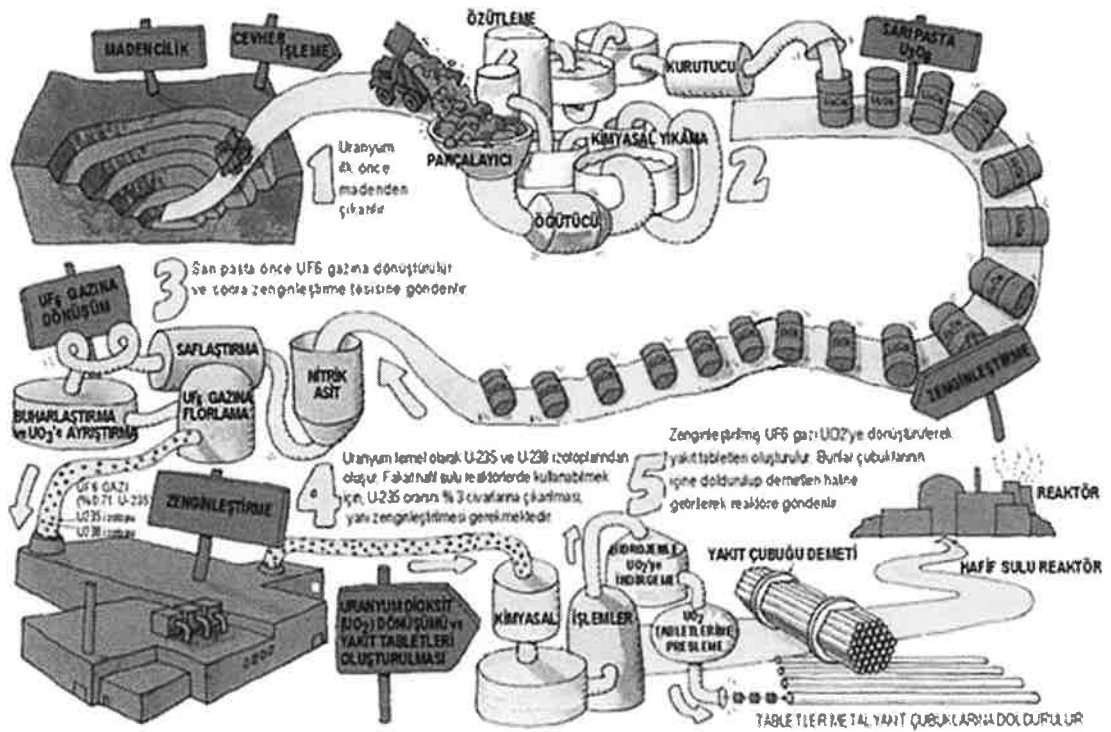
İnsanlık tarihinde yaşamsal ihtiyaçlardan olan enerji, hep bir arayış konusu olmuştur. Ekonomik, jeopolitik, teknolojik, savunma ve çevre gibi boyutları olan enerji kavramı günümüzde kalkınmanın en büyük göstergelerinden biridir. Enerji tüketim ve üretim oranları ülkelerin kalkınmışlığı hakkında bilgi sunmaktadır. Sanayi devriminden sonra pik yapan enerji ihtiyacı, fosil yakıtların kullanım oranında da büyük bir artışa neden olmuştur. Günümüzde fosil yakıtların tükenmek üzere olması, karbon emisyonuna neden olup çevreyi yoğun miktarda kirletmeleri, enerji alanında; ülkeleri farklı enerji kaynakları arayışına sevk etmektedir (Sevim, 2019).

Burada çevreci, ekonomik ve uzun yıllar yetecek daha kullanışlı enerji kaynakları öne çıkmaktadır. Nükleer enerji, verimliliği bakımından fosil yakıtlara karşı fark yaratmış olup çevreyi kirletmesi bakımından da çok daha temiz enerji olarak ön almaktadır fakat onun da nükleer reaksiyonlar sonucu oluşan atıkları yüksek oranda radyoaktif olduğundan atıkların değerlendirilmesi ve muhafazası konusunda problemler yaşanmaktadır. Günümüz nükleer reaktörlerinde oluşan atıklar; reaktörlerde kullanılan her türde malzemeler olarak ifade edilebilir. Nükleer reaktörlerde gerçekleşen nükleer reaksiyonlar sonucunda, büyük oranda yanmış uranyum, savaş başlığı olarak da kullanılabilen plütonyumdan oluşmaktadır. Bunların yanında ağır atom çekirdekleri ve radyoaktif olan Neptünyum-237 (Np^{237}), Amerikyum-241 (Am^{241}), Amerikyum-243 (Am^{243}) ve Küriyum-244 (Cm^{244}) gibi trans uranyum elementleri ve sezyum, stronsiyum gibi ömrü trans uranyum elementlerine göre daha kısa olan nükleer atıklar üretilmektedir. Bu atıklar milyonlarca yıl radyoaktif olarak kalabilmektedir. “Bu atıklar o kadar radyoaktif ki sözcüğün tam anlamıyla karanlıkta parlar ve özel soğutma havuzlarında saklanmak zorundadır” (Kaku, 2011).

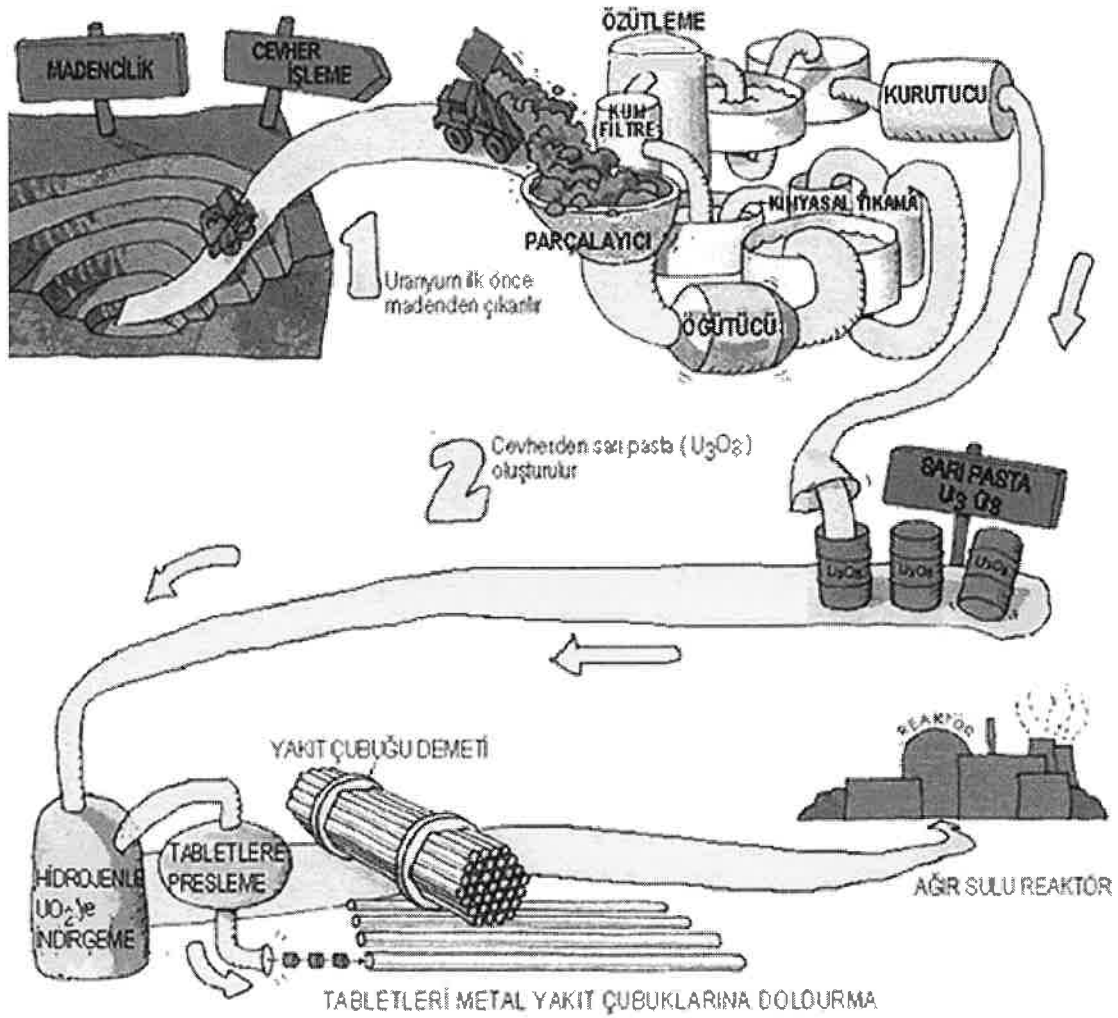
Günümüz nükleer reaktörlerinde yakıt olarak Uranyum kullanılmaktadır. Rezervi uranyum rezervinin üç katı kadar olan toryum reaktörlerinin prototipi oluşturulmuş olmasına karşın henüz toryumla enerji üreten nükleer reaktör bulunmamaktadır. Nükleer reaktörlerde enerji elde etmenin kilit noktası büyük oranda uranyum cevheri elde etmek ve daha sonra onu zenginleştirmektir (Temurçin ve ark, 2003).

Burada zenginleştirmeden kasıt saflaştırma işlemidir. Doğada doğal olarak oluşan uranyumun, %99,3 ü Uranyum-238 (U^{238}) ve %0,7 Uranyum-235 (U^{235})'tir. Nükleer reaktörlerde enerji üretimi için uygun olan Uranyum-235 (U^{235})'i, Uranyum-238

(U^{238})'den ayırmak gerekir, bu ayırma sonucu elde edilen cevher zenginleştirilmiş cevher olarak adlandırılmaktadır. Bu iki izotop atom, birbirinin ikiz kardeşi gibidir ve kimyasal olarak özellikleri aynıdır. Bu ikisi birbirinden ayırmanın tek güvenilir yolu Uranyum-235 (U^{235})'in ikiz kardeşi olan Uranyum-238 (U^{238})'e göre yaklaşık %1 hafifliğini kullanmaktır. Ayırma yöntemi olarak gaz difüzyonu ve ultra santrifüj kullanılır. Gaz difüzyonunda uranyum cevheri, gaz olan uranyum heksaflorid (UF_6)'e dönüştürülür ve oluşan gaz (uranyum heksaflorid) uzun bir boru sisteminden, membranlardan geçmeye zorlanır. En sonunda hafif olan Uranyum-235 (U^{235}) en önce boru sistemini terk ederek Uranyum-238 (U^{238})'den ayrılır Böylece nükleer reaktörlerde enerji üretmek için gerekli olan miktar elde edilmiş olur. Diğer zenginleştirme yöntemi olan ultra santrifüj yönteminde uranyum içeren kapsül dakikada 100.000 devirde çevrilebilir. Böylece daha ağır olan Uranyum-238 (U^{238}) dibe çöker ve hafif olan Uranyum-235 (U^{235}) üstte kalarak saflaştırma işlemi yapılabilir (Kaku, 2011).

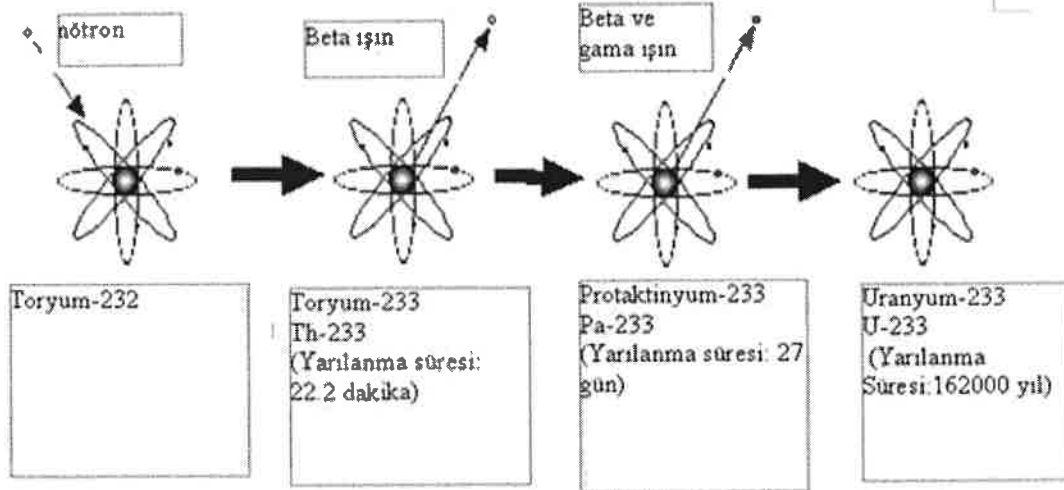


Şekil 1.1 Difüzyon yöntemi ile uranyum zenginleştirme (TAEK, 2010)



Şekil 1.2 Ultra santrifüj yöntemi ile uranyum zenginleştirme (TAEK, 2010)

Yakıt olarak bir de toryuma bakalım; daha öncede bahsettiğimiz gibi toryum tek başına yakıt olarak kullanılamaz. Fakat Toryum-232 (Th^{232}) bir nötron yutarsa yani nötron yutması sağlanırsa daha az kararlı olan Toryum-233 (Th^{233})'e dönüşür. Toryum-233 (Th^{233}), 23 dakika içinde beta çürümesi yaparak Prolaktinyum-233 (Pa^{233})'e dönüşür. Prolaktinyum-233 (Pa^{233}), 27 gün içerisinde yarı ömrü 163.000 yıl olan fisil Uranyum-233 (U^{233})'e dönüşmektedir. Böylece Toryum-232 (Th^{232}) başka bir maddeye dönüşerek fisil döngüye başlamaktadır (Demirkol, 2005).



Şekil 1.3 Toryumun fisil hale gelme süreci (TAEK, 2010)

Peki, toryumun bölünebilir yani enerji üretebilir ham madde olma sürecini nasıl başlatabiliriz? Toryumun nükleer yakıt olarak kullanılabilmesi için bir nötron yutması gerekir. Onun için bir nötron kaynağı ile bu sorun aşılabılır. Nötron kaynağı olarak uranyum veya plütonyum katkısı, çekirdek birleşmesi sonucu oluşan nötronlarla ya da yüksek enerjili proton hızlandırıcılarda elde edilen nötronlarla toryumun nötron yutması sağlanabilir. Toryum yakıt olarak kullanıldığında uranyuma karşı en önemli avantajı, geleneksel reaktörlerde uranyum yakıtının kullanımı sonucu ortaya çıkan atıklardan çok cüzi miktarda oluşturmasıdır. Hatta savaş sistemlerinde kullanılan, uranyum yakıt atığı plütonyum, toryum yakıt olarak kullanıldığında çok az miktarda oluşmaktadır. Toryumu yakıt olarak kullanmak için uranyum ve plütonyum eklenmesi yine bu atık avantajına ket oluşturacağından hızlandırıcıya dayalı toryum yakıt sistemlerinin kullanılması öne çıkmaktadır. Uranyum yakıt olarak kullanıldığında yaklaşık %90'ını atık olarak kalmaktadır. Toryumda durum bundan farklıdır. Toryum yakıtında oluşan yan ürünlerden uranyum-233 (U^{233}) gama kaynağı olmasıyla atıklarda öne çıkmaktadır. Buna karşın savaş sanayisinde kullanılan atığı olmamakla beraber radyoaktif atığı cüzi ve uzun yıllar kontrol edilebilecek düzeydedir (Sultansoy ve ark, 2015).

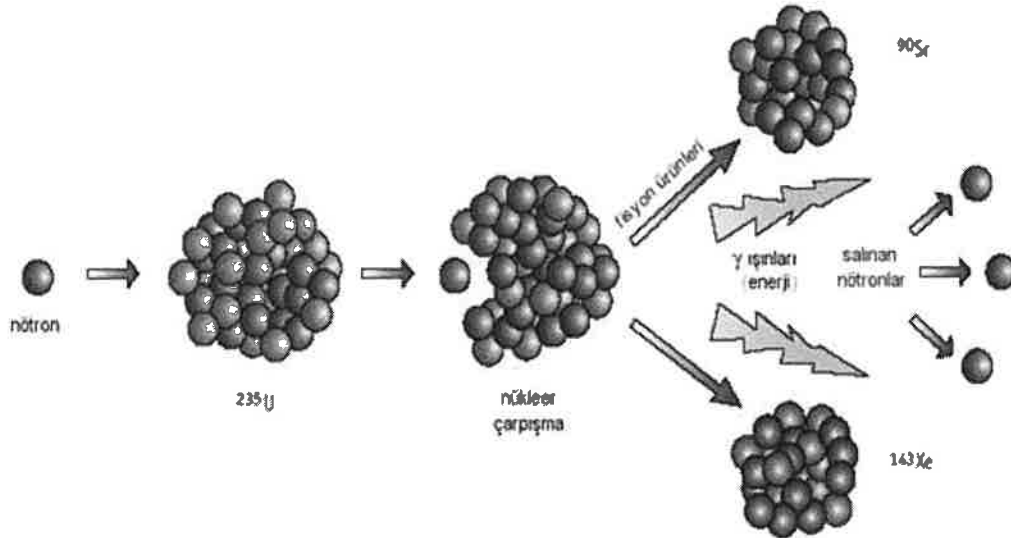
Toryum yakıtının bir diğer avantajı da uranyum rezervlerine göre rezerv miktarının çok daha fazla olmasıdır. Hızlandırıcıya dayalı toryum yakıt döngüsünün sağlandığı bir reaktörde atıklar sorunu da çözülmüş olacağından geleceğin yeşil enerjisi olarak yorumlanabilir. Parçacık hızlandırıcılar bugün biyolojiden, ilaç sanayiye, astronomiden, maddenin özünü anlama çalışmaların da makro ölçekte bilgi ve anlama formu sağlar. Ülkelerin gelişmişliğine ve teknolojik alt yapısına, parçacık hızlandırıcılar, bilimsel bilgi temelleri oluşturarak ülkenin kalkınmasına katkı sunar. Toryumun rezervlerinin önemli

bir bölümünün ülkemizde olduğu düşünöldüğünde ön oluşum olarak parçacık hızlandırıcı sistemleri, toryumun yakıt olarak kullanılmasını beklemeden kurulabilir(Arık ve ark, 2012).

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

2.1 Nükleer Fisyon

Doğada madenciliği yapılan uranyum ve plütonyum gibi ağır çekirdeğe sahip elementler kararsızdır. Bu elementler bir nötron yuttuğunda zaten kararsız olan çekirdek daha fazla dayanamayıp (su damlası örneği) iki parçaya bölünür bu esnada açığa iki veya üç nötron ve enerji açığa çıkar. Klasik bir reaktörde oluşan enerji miktarını Türkiye Atom Enerji Kurumu verilerine göre şöyle kıyaslayabiliriz. 1 kg Uranyumdan elde edilen bölünme enerjisiyle 45000 kg odun, 220000 kg kömür, 15000 kg petrol ve 14000 kg akışkan doğal gazdan elde edilen enerji eşdeğeridir (TAEK,2010). Açığa çıkan enerji Einstein'ın $E=mc^2$ formülüyle hesaplanır. Burada c:ışık hızı ($C=3.10^8$ m/sn), m:kütledir. Atom çekirdeğini oluşturan proton ve nötronların kütleleri toplamı çekirdeğin kütesinden daha büyüktür. Radyoaktif bölünme sonucu $E=mc^2$ formülünde alınan kütle; proton ve nötronların toplam kütesiyle çekirdeğin kütesinin farkından kalan kütedir (TAEK, 2010).



Şekil 2.1 Tipik bir fisyon reaksiyonu (TAEK, 2010)

İlk nötron yutmadan sonra dışarı atılan reaksiyon ürünleri diğer atomlarla çarpışarak kinetik enerjinin büyük bir kısmını ısı enerjisine dönüştürür. Nötronlar oluşan fisyon ürünleriyle tekrar tekrar etkileşime girebilir ve birçok nötron daha salabilirler böylece zincirleme reaksiyon oluşturabilir. Bazı nötronlarda çekirdekle elastik çarpışma yapıp reaksiyona girmeden kaçabilir ya da fisyonu neden olmadan çekirdek tarafından elastik olarak yutulabilir. Kaçma ve yutulmayla kaybedilen nötron sayısını dengeye getirebilmek için kalan nötronların zincirleme reaksiyonu kendi kendini devam ettirme

durumuna gelir ve bu durumda ortam kritiklik olarak adlandırılır. Kritik kütle; zincirleme reaksiyonun kendi kendine devam edebilmesi için yeterli miktardaki en az fisil madde miktarıdır (Kessler, 2004).

Bölünebilmenin başlaması ve devam etmesi için en ideal nötron, termal yavaş nötronlardır. Termal yavaş nötronların enerjisi, 0.1 elektron volt (eV)'tan daha küçüktür. Yüksek hızlı (Enerjili) nötronlar 10 milyon ev (MEV) civarında enerjiye sahip nötronlardır. Fisil reaksiyon sonucu açığa çıkan tüm nötronlar hızlı nötronlardır. Hızlı nötronlar fisyon başlatmasında ve devam ettirilmesinde az bir verime sahiptir. Hali hazırda kullanılan nükleer güç reaktörlerinde enerji elde etmesi sürecinde termal yavaş nötronlar kullanılmaktadır. Fisil sonrası açığa çıkan nötronları da yavaşlatmak için yavaşlatıcılar (moderatörler) kullanılmaktadır. Bu yavaşlatma işlemi reaksiyonun sürekliliği için önemli bir aşamadır (Fizik Mühendisleri Odası, 2013).

Nükleer reaksiyon sonrası ortaya çıkan nötronların bir kısmı fisil madde olmayan malzemeler tarafından yutulur bir kısmı da kaçır nükleer reaktörün büyüklüğünü sonsuz kabul ettiğimizde kaçma miktarını sıfır olarak düşünebiliriz lakin bu pratikte mümkün değildir. Dolayısıyla reaksiyonun devam edebilmesi için nükleer reaksiyon sonrası oluşan fisil ürünlerin yine fisyon sonrası oluşan nötronlardan yutması gerekir. Günümüzde hâlihazırda kurulu olan reaktörlerde yakıt olarak uranyum ve plütonyum katkılı uranyum kullanılmakta bunların nükleer reaksiyonları sonucu oluşan nötronların açığa çıkma miktarı zincirleme reaksiyonun kaderini belirleyecektir(U.S. Department of Energy, 1993).

Çizelge:2.1 Fisyonunda serbest bırakılan ortalama nötron sayısı (U.S. Department of Energy, 1993)

Bölünebilir Çekirdek	Termal Nötronlar		Hızlı Nötronlar	
	n	v	n	v
Uranyum-233	2.49	2.29	2.58	2.40
Uranyum-235	2.42	2.07	2.51	2.35
Plütonyum-239	2.93	2.15	3.04	2.90

Not: n: Etkileşme faktörü, v:Fisyon başına ortalama nötron sayısını ifade eder.

Daha öncede bahsettiğimiz gibi bölünme sonrası açığa çıkan nötronların bir kısmı elastik çarpışma yaparak saçılırken (Kaçma) bazıları çekirdek tarafından yutulmasına

rağmen çekirdek bölünemeyip başka bir elemente dönüşebilir. Doğada mevcut olmayıp nükleer reaktörlerde bu sonuç, doğada bulunmayan madenciliği yapılamayan yeni elementlerin oluşumuna neden olabilir. Oluşan yeni elementler aktinit ya da atık olarak adlandırılmaktadır (TAEK, 2010).

Çizelge 2.2 Nötron yakalamayla oluşan önemli izotoplar-aktinitler-atıklar (TAEK, 2010)

Element	Yaklaşık yarı ömür
Neptünyum (^{237}Np)	210 000 yıl
Plütonyum (^{239}Pu)	24 000 yıl
Amerikyum (^{244}Am)	7 400 yıl

2.2 Nükleer Güç Reaktörleri

Temel amacı diğer termik, hidrolik, yenilebilir vs. Elektrik üretimi için kurulan santrallerden farksızdır. Enerji yani elektrik üretimi için kurulan nükleer güç santrallerinde yakıt olarak çoğunluğu saflaştırılmış uranyum-235 (U^{235}) kullanılmaktadır. Nükleer fisyon, reaktör bileşenlerinde tasarlanıp başlatır. Nükleer reaksiyonun gerçekleştiği yer reaktörün kalbi olarak adlandırılır. Fisyon sonucunda açığa çıkan enerji fisyon enerjisinin, suyu ısıtması, buharın oluşması ve buharın tribünleri döndürmesi sonucu elektrik enerjisine dönüşür. Birçok reaktör tipi olmasına rağmen reaktörlerine ana malzemeleri yakıt, nötron yavaşlatıcı (Moderatör), kontrol çubukları ve soğutucudur (Eral, 2015).

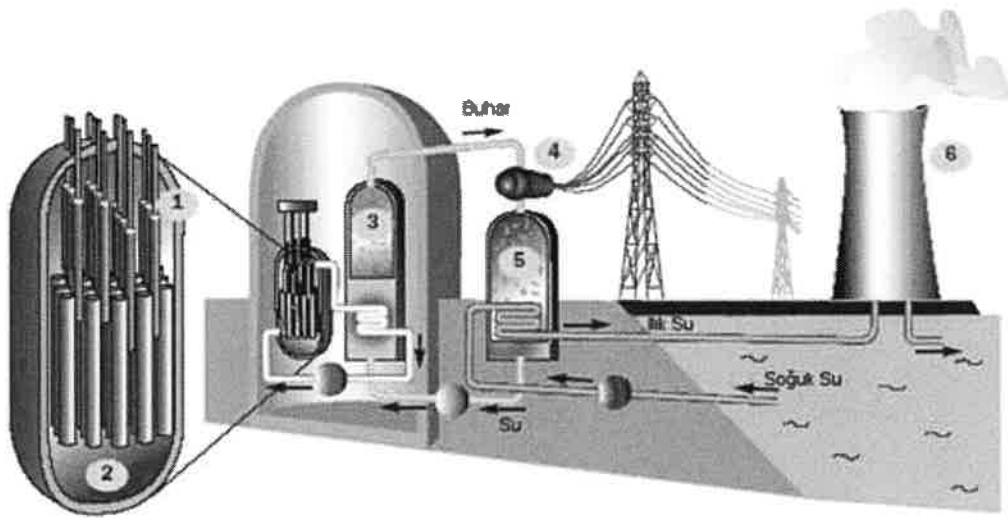
Çizelge 2.3 Bir reaktörün temel bileşenleri ve materyaller (Eral, 2015)

Temel Bileşen	Malzeme	İşlev
Yakıt	Uranyum-233,Uranyum-235,Plütonyum-239,Plütonyum-241	Fisyon reaksiyonu
Yavaşlatıcı	Hafif su, ağır su, karbon, berilyum	Hızlı nötronların enerjisini azaltarak termal nötronlar seviyesine indirmek

Çizelge 2.3 Devamı

Soğutucu	Hafif su, ağır su, hava, karbondioksit, helyum, sodyum, bizmut, sodyum potasyum, organikler	Isıyı ortamdaki uzaklaştırmak
Yansıtıcı	Moderatör ile aynı	Nötron kaçağını en aza indirmek
Zırhlama	Beton, su, çelik, kurşun, polietilen.	Radyasyondan korunmayı sağlamak
Kontrol çubukları	Kadmiyum, bor, hafniyum	Nötron üretim hızını kontrol etmek
Yapı	Alüminyum, çelik, zirkonyum, paslanmaz çelik	Yakıt elemanlarını korumak, reaktör yapısına ve bileşenlerine fiziksel destek sağlamak

Temel amacı elektrik üretimi olan santraller ile ilgili çalışmalar sürmekte ve bununla ilgili birçok çalışma yapılmaktadır. Günümüz reaktör çeşitleri, güvenlik önlemleri ön plana alınarak çeşitlendirilmekte ve geliştirilmektedir.



Şekil 2.2 Tipik bir nükleer reaktör sistemi (TAEK, 2010)

2.3 Radyoaktif Atıklar

Hâlihazırda kurulu geleneksel reaktörler uranyumu yakıt olarak kullandığından radyoaktif atıkları uranyum atıkları çerçevesinde değerlendireceğiz. Radyoaktif atıklar,

radyasyon (ışınım) yayan canlı sağlığı ve doğa için çeşitli boyutlarda zararları olan belirli aşamalar sonucu ortaya çıkan ürünleridir. Radyoaktif atıkların radyasyon yayma miktarları oluşum aşamalarına ve yerlerine göre farklılık göstermektedir. Bu nedenle radyoaktif atıkların sınıflandırılması atık yönetimi konusunda uluslararası prosedürlerin geliştirilmesi ve daha nitelikli mücadele yapılması bakımından önemlidir. Örneğin bir hastanede açığa çıkan radyoaktif atıkla bir nükleer tesiste oluşan radyoaktif atık için farklı bir sınıflandırma seçenekleri oluşturulmalı ve bu yönde prosedürler geliştirilmelidir (IAEA, 1994).

Çizelge 2.4 Atık sınıflarının tipik özellikleri (IAEA, 1994)

Nükleer Atık Muaf Atık	Özellikleri	Bertaraf Seçeneği
	Radyoaktiflik seviyesi çok düşük olan temizlenme seviyesindeki atıklardır. Radyasyon seviyesi 00,1 mSv olduğundan insan sağlığına etkisi yok denecek kadar azdır.	Bertaraf edilmesi ihmal edilir.
Düşük ve Orta Seviye Atık	Aktivitesi ve radyasyon seviyesi insan sağlığını tehdit etmeyecek düzeyde olan atıklardır.	Bertaraf edilmesi ihmal edilebilir.
Kısa Ömürlü Atıklar	Uzun Ömürlü alfa radyasyonu yayan kısa ömürlü atıklardır.	Yüzeye yakın Jeolojik bertaraf tesislerinde imha edilir ya da gömülür.
Uzun Ömürlü Atık	Uzun ömürlü radyoaktif atıklar olup kısa ömürlü radyasyonlar yayarlar	Jeolojik bertaraf tesislerinde imha edilir ya da saklanır.
Yüksek Seviye Atıklar	Termal etkileri yüksek uzun ömürlü radyoaktif atıklar olup kısa ömürlü radyasyonlar yayarlar	Jeolojik bertaraf tesislerinde imha edilir ya da saklanır.

IAEA verilerine göre sınıflandırılan atıklardan yüksek seviyeli olanlar, nükleer güç reaktörlerinde elektrik üretildikten sonra yeniden işlenmeden kalan atıklardır. Yüksek seviyeli atıklardan, nükleer reaksiyon sonrası, kalan uranyum ve plütonyum ayrıştırılmasına gidilir ve nükleer reaksiyon sırasında nötron yutma sonucu oluşan ömürleri milyon yılları bulan transuranik elementler ve yüksek seviyeli diğer atıklar camlaştırılarak saklanır (Pegg, 2015). Düşük seviyeli atıklar ise radyoaktif maddelerin endüstriyel, tıbbi, akademik alanlarda kullanımından sonra kalan atıklardır ya da nükleer reaktörlerde radyasyona uğramış malzemelerden oluşur. Düşük seviyeli atıklar canlı sağlığı için önemli miktarda tehdit oluşturmazken, yüksek seviyeli atıklar binlerce yıl sonra bile canlı sağlığı için tehdit oluşturabilmektedir. Şöyle ki yüksek seviyeli atıklar nükleer reaktörden çıkarıldıktan 10 yıl sonra kullanılmış yakıt atığı yüzey doz eşdeğeri 10.000 rem/saati aşar. Bu da insan sağlığı için öldürücü bir dozdur. Özellikle nükleer reaksiyon sonrası oluşan yüksek seviyeli atıklar radyoaktif atıkların önemli bir bölümünü

teşkil eder. Nükleer reaktörlerde yakıt olarak kullanılan uranyum üç şeye dönüşmektedir. Birincisi elektrik üretimi için enerjiye, ikincisi radyasyonun çoğunu barındıran uranyumun bölünmesi sonucu oluşan bölünme yan ürünü olarak adlandırılan sezyum-137 ve stronsiyum-90 gibi radyoaktif elementleri ve izotopları oluşur. Oluşan bu elementler ve izotopları bir süre sonra zararsız olan elementler oluşturacak şekilde bozunur. Üçüncüsü bazı uranyum elementlerinin nötron yutması sonucu oluşan ve ömürleri binlerce yıldan fazla olan trans uranyum elementlerinin oluşmasıdır. Stronsiyum ve sezyum gibi yan ürün elementlerin yarı ömrü yaklaşık 30 yılken, transuranik elementlerden olan ve uranyum çekirdeklerinin nötron yutmasıyla oluşan plütonyumun yarı ömrü 24.000 yıldır. Transuranik elementler nükleer yakıtların neden olduğu enerjiyi ve radyasyonu üretmezler lakin bozunmaları çok uzun yıllar sürer. Bu da uzun yıllar sonra ortaya çıkabilecek radyasyon kaynağının (radyoaktif atıkların) büyük bölümünü oluştururlar(U.S.NRC,2019). Buna karşın 1000 Megawatt güce sahip hafif su reaktörlerinde bir yıllık çalışma sonrası yeniden işleme tutulmayan atıkta, %95,6 kullanılmış yakıt olarak Uranyum, %1 plütonyum, % 0.1 trans uranyum elementleri(neptünyum, amerikyum, plütonyum, kuryum vb.) ve %3,3 Filyon yan ürünleri (sezyum, stronsiyum vb.) bulunur. Yeniden işleme için uranyum ve plütonyum ayrıldıktan sonra filyon yan ürünlerinin yüzdesi %93,3 olur. Burada radyoaktif elementler sezyum ve stronsiyumdur bunların yarılanma süreleri yaklaşık 30 yıl ve %98 in tükenmesi için yaklaşık 200 yıla ihtiyaç vardır(Yanıkömer, ve ark, 2016).

Çizelge 2.5 Bazı önemli filyon ürünleri için yarı ömür ve çürüme tiplerine göre dallanma fraksiyonları (IAEA, 2008)

Nüklidin	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Türü	Dallanma Fraksiyonu
Kr_{36}^{85}	10.752 ± 0.023	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
Sr_{38}^{90}	28.80 ± 0.07	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
Zr_{40}^{95}	64.032 ± 0.006	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Tc_{43}^{99}	$(2.111 \pm 0.012) \times 10^5$	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
Ru_{44}^{106}	1.018 ± 0.005	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
Sn_{50}^{121}	$55. \pm 5.$	Yıl	Beta Parçacığı	0.224 ± 0.020
			İzomerik Geçiş	0.776 ± 0.020
Sb_{51}^{125}	2.7584 ± 0.0006	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
I_{53}^{129}	$(5.89 \pm 0.23) \times 10^9$	Gün	Beta Parçacığı	1.0
I_{53}^{131}	8.0233 ± 0.0019	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Cs_{55}^{134}	2.063 ± 0.003	Yıl	Beta Parçacığı	0.999997 ± 0.000001
			Elektron Yakalama	0.000003 ± 0.000001
Cs_{55}^{137}	30.05 ± 0.08	Yıl	Beta Parçacığı	1.0
Pm_{61}^{147}	2.6234 ± 0.0002	Yıl	Beta Parçacığı	1.0

2.3.1 Aktinitler

Literatürde yer alan, radyoaktif ışımaya yapan ve periyodik Çizelgede 7. Sırada gösterilen elementlerdir. Doğada bulunan ve madenciliği yapılan elementlere doğal elementler, nükleer reaktörlerde reaksiyon sonucu oluşan elementlere yapay elementler denir. Atom numaraları 89-103 arasında olup ağır elementler olarak da adlandırılır. Tüm aktinitler radyasyon yaydıklarından radyoaktif element olarak nitelendirilmektedir (Üçpırtı ve ark, 1997).

- Aktinyum (Ac^{227}) : Atom Numarası: 89, doğal element
- Toryum (Th^{232}) :Atom Numarası: 90,doğal element
- Protaktinyum (Pa^{231}) :Atom Numarası:91, doğal element
- Uranyum (U^{238}) :Atom Numarası:92, doğal element
- Neptünyum (Np^{237}) : Atom Numarası:93 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Plütonyum (Pu^{244}) :Atom Numarası:94 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Amerikyum (Am^{243}) : Atom Numarası:95 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Küriyum (Cm^{247}) : Atom Numarası:96 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Berkelyum (Bk^{247}): Atom Numarası:97 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Kaliforniyum (Cf^{251}): Atom Numarası:98 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Aynştaynyum (Es^{252}): Atom Numarası:99 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Fermiyum (Fm^{257}): Atom Numarası:100 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Mendelevyum (Md^{258}):Atom Numarası:101 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Nobelyum (No^{259}): Atom Numarası:102 reaksiyon sonucu oluşan yapay element
- Lavrensiyum (Lr^{266}): Atom Numarası:103 reaksiyon sonucu oluşan yapay element (Ekener, 1997).

Radyoaktif maddeler alfa, beta ve gama ışımalarını yayarak kararlı hale gelmeye çalışırlar bu ışımalara radyasyonda denilmektedir. Alfa ışımada elementin nötron ve proton sayısı iki azalır kütle numarası dört azalır. Alfa ışımalarının girişimliliği ve menzili çok azdır bu nedenle bir defter yaprağı alfa parçacığını durdurabilir bu şekilde korunmak mümkündür. Beta çürümesi yapan maddenin kütle numarası değişmez atom numarası 1 artıp azalabilir. Beta ışımalarının, alfa ışımalarına göre girişimliliği ve menzili daha fazladır buna rağmen alüminyum folyoyle durdurulabilir. Gama ışımaya yapan element uyarılmış elementtir kararlı yörüngeye dönerken gama ışını salar. Gama ışımada kütle numarası

ve atom numarası değişmez sadece dışarıya enerji salınır. Girişimciliği ve menzili uzundur durdurmak için beton ya da kurşun bloklar gereklidir. Gama ışını için en tehlikeli ışımadır diyebiliriz (Erdoğan, 2017).

Çizelge 2.6 Aktinitlerin yarı ömürleri ve çürüme türlerine göre dallanma fraksiyonları (IAEA,2008)

Nüklidin	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Türü	Dallanma Fraksiyonu
Ac_{89}^{224}	2.78 ± 0.17	Saat	Elektron Yakalama	$0.909 +0.014$ $- 0.020$
			Alfa Parçacığı	$0.091 +0.020$ -0.014
Ac_{89}^{225}	10.0 ± 0.1	Gün	Alfa Parçacığı	1.0
Ac_{89}^{227}	21.772 ± 0.003	Yıl	Alfa Parçacığı	0.01380 ± 0.00004
			Beta Parçacığı	0.98620 ± 0.00004
Ac_{89}^{228}	6.15 ± 0.02	Saat	Beta Parçacığı	1.0
Th_{90}^{227}	18.718 ± 0.005	Gün	Alfa Parçacığı	1.0
Th_{90}^{228}	698.60 ± 0.23	Gün	Alfa Parçacığı	1.0
Th_{90}^{229}	$(7.34 \pm 0.16) \times 10^3$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
Th_{90}^{230}	$7.538 \pm 0.030) \times 10^4$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	
			Fisyon	$\leq 4. \times 10^{-13}$
Th_{90}^{231}	25.52 ± 0.01	Saat	Beta Parçacığı	1.0
			Alfa Parçacığı	$\sim 4. \times 10^{-13}$
Th_{90}^{232}	$(1.405 \pm 0.006) \times 10^{10}$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$(1.1 \pm 0.4) \times 10^{-11}$
			Fisyon	
Th_{90}^{233}	22.15 ± 0.15	Dakika	Beta Parçacığı	1.0
Th_{90}^{234}	24.10 ± 0.03	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Pa_{91}^{231}	$(3.276 \pm 0.011) \times 10^4$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$\leq 3. \times 10^{-12}$
			Fisyon	
Pa_{91}^{232}	1.32 ± 0.02	Gün	Beta Parçacığı	0.99997 ± 0.00001
			Kendiliğinden	0.00003 ± 0.00001
			Fisyon	
Pa_{91}^{233}	26.98 ± 0.02	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Pa_{91}^{234}	6.70 ± 0.05	Saat	Beta Parçacığı	1.0
Pa_{91}^{234m}	1.159 ± 0.016	Dakika	Beta Parçacığı	0.9984 ± 0.0002
			İzomerik Geçiş	0.0016 ± 0.0002
U_{92}^{232}	68.9 ± 0.4	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$< 1. \times 10^{-14}$
			Fisyon	
U_{92}^{233}	$(1.592 \pm 0.002) \times 10^5$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$< 6. \times 10^{-11}$
			Fisyon	
U_{92}^{234}	$(2.455 \pm 0.006) \times 10^5$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$(1.6 \pm 0.2) \times 10^{-11}$
			Fisyon	
U_{92}^{235}	$7.038 \pm 0.005) \times 10^8$	Yıl	Alfa Parçacığı	1.0
			Kendiliğinden	$(7. \pm 2.) \times 10^{-11}$
			Fisyon	
U_{92}^{235m}	$26. \pm 1.$	Dakika	İzomerik Geçiş	1.0

Çizelge 2.6 Devamı

U_{92}^{236}	$(2.342 \pm 0.004) \times 10^7$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(9.4 \pm 0.4) \times 10^{-10}$
U_{92}^{237}	6.749 ± 0.016	Gün	Beta Parçacığı	1.0
U_{92}^{238}	$(4.468 \pm 0.005) \times 10^9$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(5.45 \pm 0.04) \times 10^{-7}$
U_{92}^{239}	23.45 ± 0.02	Dakika	Beta Parçacığı	1.0
Np_{93}^{236}	$(1.55 \pm 0.08) \times 10^5$	Yıl	Alfa Parçacığı Beta Parçacığı Elektron Yakalama	0.120 ± 0.006 0.0016 ± 0.0006 0.878 ± 0.006
Np_{93}^{236m}	22.5 ± 0.4	Saat	Beta Parçacığı Elektron Yakalama	0.47 ± 0.01 0.53 ± 0.01
Np_{93}^{237}	$(2.144 \pm 0.007) \times 10^6$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $< 2. \times 10^{-12}$
Np_{93}^{238}	2.117 ± 0.002	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Np_{93}^{239}	2.356 ± 0.003	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Pu_{94}^{236}	2.858 ± 0.008	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(1.9 \pm 0.4) \times 10^{-9}$
Pu_{94}^{238}	87.74 ± 0.03	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(1.85 \pm 0.05) \times 10^{-9}$
Pu_{94}^{239}	$(2.411 \pm 0.003) \times 10^4$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(3.1 \pm 0.6) \times 10^{-10}$
Pu_{94}^{240}	$(6.561 \pm 0.007) \times 10^3$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(5.7 \pm 0.2) \times 10^{-8}$
Pu_{94}^{241}	14.290 ± 0.006	Yıl	Alfa Parçacığı Beta Parçacığı	$0.0000245 \pm$ 0.0000002 $0.9999755 \pm$ 0.0000002
Pu_{94}^{242}	$(3.73 \pm 0.03) \times 10^5$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(5.49 \pm 0.09) \times 10^{-6}$
Pu_{94}^{243}	4.956 ± 0.003	Saat	Beta Parçacığı	1.0
Pu_{94}^{244}	$(8.00 \pm 0.09) \times 10^7$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	0.99879 ± 0.00004 0.00121 ± 0.00004
Pu_{94}^{245}	10.5 ± 0.1	Saat	Beta Parçacığı	1.0
Pu_{94}^{246}	10.84 ± 0.02	Gün	Beta Parçacığı	1.0
Am_{95}^{240}	50.8 ± 0.3	Saat	Elektron Yakalama Alfa Parçacığı	$0.9999981 \pm$ 0.0000007 $0.0000019 \pm$ 0.0000007
Am_{95}^{241}	432.6 ± 0.6	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	1.0 $(4.3 \pm 1.8) \times 10^{-12}$
Am_{95}^{242}	16.02 ± 0.02	Saat	Beta Parçacığı Elektron Yakalama	0.827 ± 0.003 0.173 ± 0.003
Am_{95}^{242m}	$141. \pm 2.$	Yıl	İzomerik Geçiş Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisiyon	0.9955 ± 0.0002 0.0045 ± 0.0002 $< 4.7 \times 10^{-11}$

Çizelge 2.6 Devamı

Am_{95}^{243}	$(7.370 \pm 0.017) \times 10^3$	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisyon	1.0 $(3.8 \pm 0.7) \times 10^{-11}$
Cm_{96}^{242}	162.86 ± 0.08	Gün	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisyon	1.0 $(6.36 \pm 0.14) \times 10^{-8}$
Cm_{96}^{243}	29.1 ± 0.1	Yıl	Alfa Parçacığı Elektron Yakalama Kendiliğinden Fisyon	0.9971 ± 0.0003 0.0029 ± 0.0003 $(5.3 \pm 0.9) \times 10^{-11}$
Cm_{96}^{244}	18.11 ± 0.03	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisyon	1.0 $(1.36 \pm 0.01) \times 10^{-6}$
Cf_{98}^{252}	2.645 ± 0.008	Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisyon	0.96908 ± 0.00008 0.03092 ± 0.00008

Fisil reaksiyonlar sonrası çekirdeğin nötron yutmasıyla oluşan atıklardan Debye, Einstein modeliyle ısı kapasitelerini de hesaplayacağımız bileşiklerde büyük oranda bulunan trans uranik katı atıklardan bazılarına daha ayrıntılı bakalım.

2.3.1.1 Neptünyum (Np^{237})

Atom numarası 93, sembolü Np olan neptünyumun yoğunluğu 20.45 gr/cm^3 , atom ağırlığı 237'dir. Periyodik cetvelde 3-B grubunda, aktinitler serisinde yer alır. Uranyumdan hemen sonra gelen ilk transuranıyüm elementidir. Erime noktası $912 \pm 3 \text{ K}$ derece ve kaynama noktası 4447 K derecedir. Neptünyumun ısı kapasitesi $29,6 \text{ J/mol K}$ olarak hesaplanmıştır. Rengi gümüş rengine benzeyip katı bir aktinit metaldir. Neptünyum doğada Uranyum-238 (U^{238}) elementinin çürümesi sonucu eser miktarda bulunur. Nükleer güç reaktörlerde uranyumun nötron yutup yakıt olarak kullanılmasıyla gerçekleşen, fisil reaksiyonlarda; uranyum ötesi (trans uranyum) olarak adlandırılan radyoaktifliği yüksek bir element olarak oluşur. Yarı ömrü bilinen 20 den fazla izotopu vardır. İzotoplarından çoğu 5 günden ve 50 dakikadan az yarılanma ömrüne sahiptir. En kararlı izotopu Neptünyum-237 (Np^{237})'dir. Yarı ömrü 2,14 milyon yıldır. Alfa ışıması yaparak Prolaktinyum-233 (Pa^{231})'e dönüşür. Neptünyum-236 (Np^{236}) izotopunun yarı ömrü 154 bin yıl, Neptünyum-235 (Np^{235}) izotopunun 396 gün yarı ömre sahiptir (Yoshida ve ark, 2008).

Neptünyum doğada eser miktarda bulunduğundan madenciliği yapılamıyor. Fisil reaksiyonlar sonucu yapay olarak elde edilir. Ticari olarak kullanımı bulunmuyor. Nükleer reaktörleri bulunan ülkelerde araştırma için üretilir. Nötron detektörlerinde kullanımı yaygındır. Plütonyum-238 (Pu^{238}) oluşumunda etkin olup Plütonyum-238 (Pu^{238}) uzay araçlarına enerji sağlamada kullanılabilir(Yoshida ve ark, 2008).

Çizelge 2.7 Neptünyum izotoplarının nükleer özellikleri (Yoshida ve ark, 2008)

Kütle Numarası	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Tipi	Ana Radyasyon, Enerjisi(Mev)
226	31	Milisaniye	Elektron Yakalama, Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 8.044
227	0.51	Saniye	Elektron Yakalama,Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 7.677
228	61.4	Saniye	Elektron Yakalama, Alfa Parçacığı	
229	4.0	Dakika	Alfa Parçacığı \geq 50% Elektron Yakalama \leq 50%	Alfa Parçacığı 6.890
230	4.6	Dakika	Alfa Parçacığı $>$ 99% Elektron Yakalama \leq 0,97%	Alfa Parçacığı 6.66
231	48.8	Dakika	Elektron Yakalama $<$ 99% Alfa Parçacığı $>$ 1%	Alfa Parçacığı 6.28 Gama Işını 0.371
232	14.7	Dakika	Elektron Yakalama	Gama Işını 0.327

Çizelge 2.7 Devamı

233	36.2	Dakika	Elektron Yakalama < 99% Alfa Parçacığı ~ 10 ⁻³ %	Alfa Parçacığı 5.54
234	4.4	Gün	Elektron Yakalama 99.95% B ⁺ eta Parçacığı 0.05%	Gama Işını 1.559
235	396.1	Gün	Elektron Yakalama > 99% Alfa Parçacığı 1.6 x 10 ⁻³ %	Alfa Parçacığı 5.022 (53%), 5.004 (24%)
236 ^a	22.5	Saat	B ⁻ eta Parçacığı 50% Elektron Yakalama 50%	B ⁻ eta Parçacığı 0.54 Gama Işını 0.642
236 ^a	1.54x10 ⁵	Yıl	Elektron Yakalama 87% B ⁻ eta Parçacığı 13%	Gama Işını 0.163
237	2.144 x 10 ⁶ >1x10 ¹⁸	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fisyon	Alfa Parçacığı 4.788 (51%), 4.770 (49%)
238	2.117	Gün	B ⁻ eta Parçacığı	B ⁻ eta Parçacığı 1.29 Gama Işını 0.984
239	2.3565	Gün	B ⁻ eta Parçacığı	B ⁻ eta Parçacığı 0.72 Gama ışını 0.984

Çizelge 2.7 Devamı

240	1.032	Saat	B-eta Parçacığı	B-eta Parçacığı 2.09 Gama Işını .566
240m	7.22	Dakika	B-eta Parçacığı	B-eta Parçacığı 2.05 Gama Işını 0.555
241	13.9	Dakika	B-eta Parçacığı	B-eta Parçacığı 1.31 Gama Işını 0.175
242	5.5	Dakika	B-eta Parçacığı	B-eta Parçacığı 2.7 Gama Işını 0.786
242	2.2	Dakika	B-eta Parçacığı	B-eta Parçacığı 2.7 Gama Işını 0.736
243	1.85	Dakika	B-eta Parçacığı	Gama Işını 0.288
244	2.29	Dakika	B-eta Parçacığı	Gama Işını 0.681

2.3.1.2 Amerikyum (Am^{243})

Uranyum ötesi (transuranyum) elementlerin dördüncüsüdür. Doğada eser miktarda bulunur. Nükleer reaktörlerde uranyum yakıtının bölünme reaksiyonu sonucu elde edilir. Atom numarası 95, sembolü "Am", yoğunluğu 12 gr/cm^3 , atom ağırlığı 243, erime noktası 1449 K derece ve kaynama noktası 2880 K derecedir. Isı kapasitesi $62,7 \text{ J / mol.K}$ olarak hesaplanmıştır. Katı bir yapay element olup rengi gümüşü beyazdır. . Periyodik cetvelde 3-B Grup, 7. Periyot, F Blok elementlerinden biridir. 15 den fazla izotopu vardır. Amerikyum-241 (Am^{241}) izotopunun yarı ömrü 432,2 yıl Amerikyum-243 (Am^{243}) izotopunun yarı ömrü 7370 yıldır. Amerikyum-243 (Am^{243}), Amerikyum-241 (Am^{241}) izotopunun iki nötron yutmasıyla elde edilir. Amerikyum-242 (Am^{242}) yarılanma ömrü 141 yıldır. Diğer izotopların yarılanma ömrü 51 saatten daha azdır(Schulz ve ark, 1986).

Çizelge 2.8 Amerikyum izotoplarının nükleer özellikleri (Schulz ve ark, 1986)

Kütle Numarası	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Tipi	Ana Radyasyon, Enerjisi(Mev)
234	2.6	Dakika	Elektron Yakalama	
237	1.22	Saat	Elektron Yakalama > 99%	Alfa Parçacığı 6.042
			Alfa Parçacığı 0.025%	Gama Işını 0.280 (47%)
238	1.63	Saat	Elektron Yakalama > 99%	Alfa Parçacığı 5.94
			Alfa Parçacığı $1.0 \times 10^{-10} \%$	Gama Işını 0.963 (29%)
239	11.9	Saat	Elektron Yakalama > 99%	Alfa Parçacığı 5.776(84%), 5.734 (13.8 %)
			Alfa Parçacığı 0.010%	Gama Işını 0.278 (15%)
240	50.8	Saat	Elektron Yakalama > 99%	Alfa Parçacığı 5.378(87%), 5.337 (12.0 %)
			Alfa Parçacığı $1.9 \times 10^{-4} \%$	Gama Işını 0.988 (73%)
241	432.7	Yıl	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 5.486(84.0%), 5.443 (13.1 %)
	1.15×10^{14}	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	Gama Işını 0.059 (35.7 %)

Çizelge 2.8 Devamı

242	16.01	Saat	B ⁻ eta Parçacığı 82.7% <i>Elektron</i> <i>Yakalama</i> 17.3%	B ⁻ eta Parçacığı 0.667 Gama Işını 0.042 (Güçsüz)
242m	141	Yıl	İzomerik Geçiş 99.55%	Alfa Parçacığı 5.207(89%),
	9.5x10 ¹¹	Yıl	Kendiliğinden Fisyon,Alfa Parçacığı 0.45%	5.141 (6.0%) Gama Işını 0.0493 (41 %)
243	7.38x10 ³	Yıl	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı
	2.0x10 ¹⁴	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	5.277(88%), 5.234 (10.6%) Gama Işını 0.075 (68%)
244	10.1	Saat	B ⁻ eta Parçacığı	B ⁻ eta Parçacığı 0.387 Gama Işını 0.746(67%)
244m	26	Dakika	B ⁻ eta Parçacığı >99% <i>Elektron</i> <i>Yakalama</i> 0.041 %	B ⁻ eta Parçacığı 1.50
245	2.05	Saat	B ⁻ eta Parçacığı	B ⁻ eta Parçacığı 0.895 Gama Işını 0.253 (6.1 %)
246 ^a	25.0	Dakika	B ⁻ eta Parçacığı	B ⁻ eta Parçacığı 2.38 Gama Işını 0.799(25%)

Çizelge 2.8 Devamı

246 ^a	39	Dakika	Beta Parçacığı	Gama Işını 0.679 (52%)
247	24	Dakika	Beta Parçacığı	Gama Işını 0.285 (23%)

Amerikyum-241 (Am^{241}) berilyumla etkileşime girerek nötron kaynağı olabilir. Amerikyum duman detektöründe, tıpta radyoloji alanında taşınabilir alfa ve gama kaynağı olmasıyla kemik mineral analizinde kullanılabilir (Mehmetoglu, 2019)

2.3.1.3 Küriyum (Cm^{247})

Doğada bulunmayan Nükleer güç santrallerinde uranyum yakıtının bölünme reaksiyonu sonucu oluşan yapay bir elementtir. Atom numarası 96, Sembölü “Cm”, yoğunluğu $13,5 \text{ gr/cm}^3$, erime noktası 1613 K derece, kaynama noktası 3383 K derecedir. Isı kapasitesi 13.85 j/mol K olarak hesaplanmıştır. Tespit edilmiş 15 den fazla izotopu vardır. Küriyum-247 (Cm^{247}) yarı ömrü 15,6 milyon yılla en uzun ömürlü izotopudur. Alfa çürümesiyle Plütonyum-243 (Pu^{243})’e dönüşür (Lumetta ve ark, 2008).

Çizelge 2.9 Curium izotoplarının nükleer özellikleri (Lumetta ve ark, 2008)

Kütle Numarası	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Tipi	Ana Radyasyon, Enerjisi(Mev)
237			Elektron Yakalama Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 6.660
238	2.3	Saat	Elektron Yakalama < 90% Alfa Parçacığı > 10%	Alfa Parçacığı 6.52
239	2.9	Saat	Elektron Yakalama	Gama Işını 0.188

Çizelge 2.9 Devamı

240	27	Dakika	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı
	1.9×10^6	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	6.291 (71%), 6.248 (29%)
241	32.8	Gün	Elektron Yakalama 99.0%	Alfa Parçacığı 5.939 (69%), 5.929 (18%)
			Alfa Parçacığı 1.0%	Gama Işını 0.472 (71%)
242	162.8	Gün	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı
	7.0×10^6	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	6.113 (74.0%), 6.070 (26.0%)
243	29.1	Yıl	Alfa Parçacığı 99.76%	Alfa Parçacığı 5.785 (73.5%), 5.741 (10.6%)
			Elektron Yakalama 0.24%	Gama Işını 0.278 (14.0%)
244	18.10	Yıl	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı
	1.35×10^7	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	5.805 (76.7%), 5.764 (23.3%)
245	8.5×10^3	Yıl	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 5.362 (93.2%), 5.304 (5.0%)
				Gama Işını 0.175

Çizelge 2.9 Devamı

246	4.6x10 ³	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	Alfa Parçacığı 5.386 (79%),
	1.80x10 ⁷	Yıl	Alfa Parçacığı Beta Parçacığı (Kararlı)	5.343 (21%)
247	1.56x10 ⁷	Yıl	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 5.266 (14%), 4.869 (71%) Gama Işını 0.402 (72%)
248	3.48x10 ⁵	Yıl	Alfa Parçacığı 91.61% Kendiliğinden Fisyon 8.39%	Alfa Parçacığı 5.078 (82%), 5.034 (18%)
249	64.15	Dakika	Beta Parçacığı	Beta Parçacığı 0.9 Gama Işını 0.634 (1.5%)
250	~8.3x10 ³	Yıl	Kendiliğinden Fisyon	Beta Parçacığı 1.42
251	16.8	Dakika	Beta Parçacığı	Gama Işını 0.543 (12%)

Küriyum alfa ışınması kaynağı olarak kullanılarak uzay keşfi çalışmalarında kullanılan x-ışını spektrometresinde kullanılır. Ayrıca bilimsel laboratuvar araştırmalarında kullanılmaktadır (Lumetta ve ark, 2008).

2.3.2 Plütonyum

Doğada eser miktarda bulunan nükleer reaktörlerde uranyum yakıtının parçalanması sonucu oluşur. Uranyum-239 (U²³⁹) çekirdeğinin bir nötron yutup 28,5

dakikada B-eta Parçacığı bozunumu yaparak Neptünyum-239 (Np^{239}) elementine dönüşür. Neptünyum-239 (Np^{239}) elementi de 2,96 gün sonra yarı ömrü 24.110 yıl olan plütonyum-239 (Pu^{239}) elementine dönüşür. İsimlendirmeler Uranüs, Neptün, Plüton sırası örnek alınıp bağlaşım yapılmıştır. Plütonyumun atom numarası 94,sembolü ‘Pu’, metalin; yoğunluğu $19,816 \text{ gr/cm}^3$, erime noktası 912.5 K, kaynama noktası 3505 Kelvin derecedir. Isı kapasitesi $35,5 \text{ J/mol.K}$ olarak hesaplanmıştır. Nükleer reaktörlerde uranyum yakıtıyla beraber kullanılması onu eşsiz, Nükleer silah programlarında kullanılması ve radyasyonun kemiklerde birikip kansere yol açması onu kötü şöhretli bir aktinit element yapmıştır (Clark ve ark, 2006)

Çizelge 2.10 Plütonyum izotoplarının nükleer özellikleri (Clark ve ark, 2008)

Kütle Numarası	Yarı Ömür ($T_{1/2}$)	Birim	Bozunma Tipi	Ana Radyasyon, Enerjisi(Mev)
228	1.1	Saniye	Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 7.772
229			Alfa Parçacığı	Alfa Parçacığı 7.460
230	2.6	Dakika	Elektron Yakalama	Alfa Parçacığı 7.055
231	8.6	Dakika	Alfa Parçacığı Elektron Yakalama 90%	Alfa Parçacığı 6.72
232	33.1	Dakika	Alfa Parçacığı 10%	Elektron Yakalama $\geq 80\%$ Alfa Parçacığı $\leq 20\%$ 6.600 (62%), 6.542 (38%)
233	20.9	Dakika	Elektron Yakalama 99.88%	Alfa Parçacığı 6.30
234	8.8	Saat	Alfa Parçacığı 0.12%	Gama Işını 0.235
234	8.8	Saat	Elektron Yakalama 94%	Alfa Parçacığı 6.202 (68%),
235	25.3	Dakika	Alfa Parçacığı 6%	6.151 (32%)
235	25.3	Dakika	Elektron Yakalama >99.99%	Alfa Parçacığı 5.850 (80%) Gama Işını 0.049
236	2.858 1.5×10^9	Yıl Yı	Alfa Parçacığı $3 \times 10^{-3} \%$	Alfa Parçacığı 5.768 (69%),
236	2.858 1.5×10^9	Yıl Yı	Kendiliğinden Fisyon $1.37 \times 10^{-7} \%$	5.721 (31%)

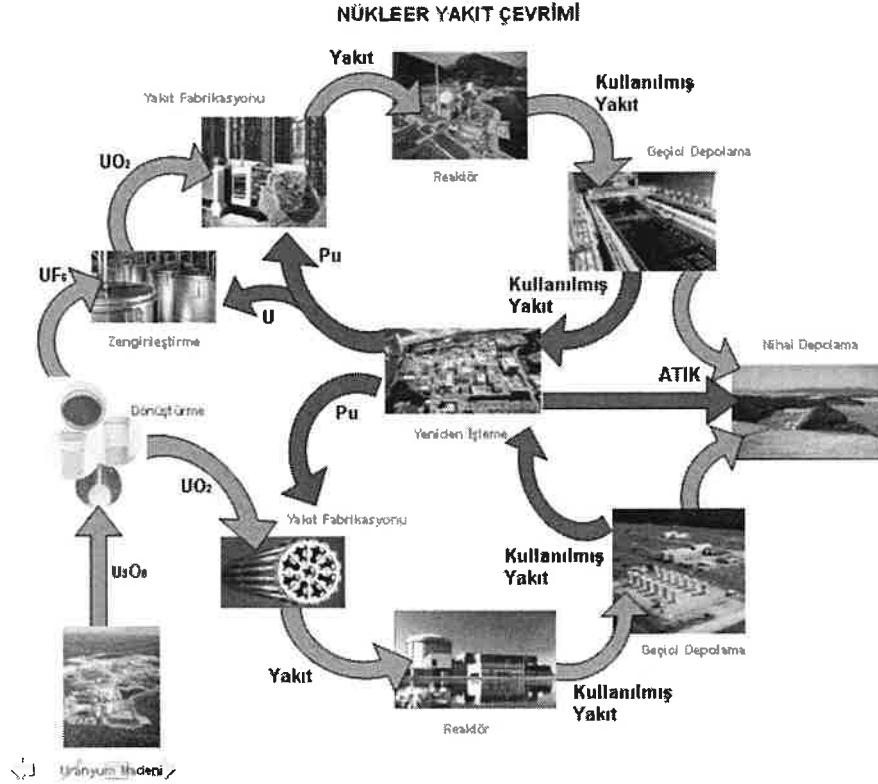
Çizelge 2.10 Devamı

237	45.2	Gün	Elektron Yakalama >99.99% Alfa Parçacığı $4.24 \times 10^{-3}\%$	Alfa Parçacığı 5.356 (~17.2%), 5.334 (~43.5%) Gama Işını 0.059
238	87.7 4.77×10^{10}	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fiyon 1.85×10^{-7}	Alfa Parçacığı 5.499 (70.9%), 5.456 (29.0%)
239	2.411×10^4 8×10^{15}	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fiyon 3.0×10^{-10} %	Alfa Parçacığı 5.157 (70.77%), 5.144 (17.11%), 5.106 (11.94%) Gama Işını 0.129
240	6.561×10^3 1.15×10^{11}	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fiyon 5.75×10^{-6} %	Alfa Parçacığı 5.168 (72.8%), 5.124 (27.1%)
241	14.35	Yıl	B'eta Parçacığı >99.99% Alfa Parçacığı 2.45×10^{-3} % Kendiliğinden Fiyon 2.4×10^{-14} %	Alfa Parçacığı 4.896 (83.2%), 4.853 (12.2%), B'eta Parçacığı 0.021, Gama Işını 0.149
242	3.75×10^5 6.77×10^{10}	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı Kendiliğinden Fiyon 5.54×10^{-4} %	Alfa Parçacığı 4.902 (76.49%), 4.856 (23.48%)
243	4.956	Saat	B'eta Parçacığı	B'eta Parçacığı 0.582 (59%), Gama Işını 0.084 (23%)
244	8.08×10^7 6.6×10^{10}	Yıl Yıl	Alfa Parçacığı 99.88% Kendiliğinden Fiyon 0.1214%	Alfa Parçacığı 4.589 (81%), 4.546 (19%)
245	10.5	Saat	B'eta Parçacığı	B'eta Parçacığı 0.878 (51%), Gama Işını 0.327 (25.4%)
246	10.84	Gün	B'eta Parçacığı	B'eta Parçacığı 0.15 (91%), Gama Işını 0.224 (25%)
247	2.27	Gün	B'eta Parçacığı	

Yapay katı aktinitlerin en uzun yarı ömre sahip olanları dünya yaşıyla (4,5 milyar yıl) karşılaştırıldığında şuan tükenmiş olmasının gerekliliği ortaya çıkmaktadır. Dünya oluşurken bu elementlere sahip olsa dahi şuan bu elementlerin madenciliğinin yapılamaması ve doğada bulunamamasının en büyük nedeni dünya yaşına kıyasla daha az bir ömre sahip olmalarıdır (Yoshida ve ark, 2008).

2.3.4 Nükleer atıkların bertarafı, saklanması ve camlaştırma metoduunda oluşan bileşikler (Sarı Faz)

Nükleer güç reaktörlerinde enerji üretimi için gerçekleştirilen nükleer reaksiyonlar ve bu reaksiyonların sonuçları, nükleer yakıt çevrimi şeması ile aşağıdaki gibi görselleştirilir.



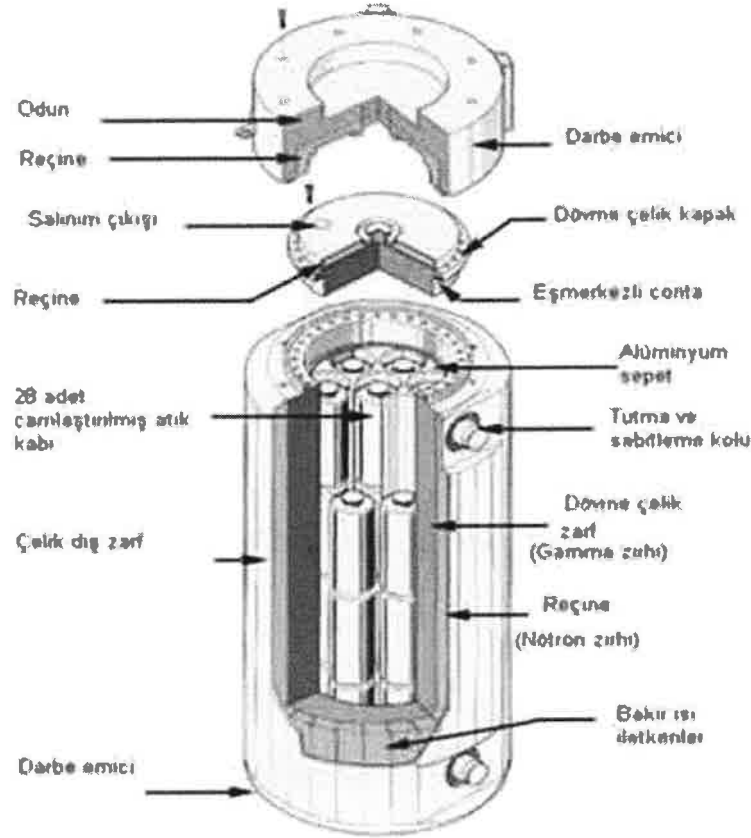
Şekil 2.3 Nükleer yakıt çevrimi (TAEK, 2010)

Daha önce bahsettiğimiz gibi nükleer reaksiyonlar sonucu oluşan nükleer atıklar, arındırılmaya gittikten sonra yani kullanılmış yakıt uranyum ve plütonyum atıklardan arındırıldıktan sonra kalan atıklar milyonlarca yıl radyoaktif olarak kalabilmekte bu da çevre için büyük sorunlar teşkil etmektedir. Plütonyum ve uranyum ayrıştırılmasına gidilmeden nükleer reaksiyon sonrası ortaya çıkan tüm ürünler atık olarak değerlendirildiğinde, yüksek radyoaktiviteye sahip atıkların büyük bölümünü plütonyum oluşturacaktır. Ortaya çıkan atıklardan sezyum, stronsiyum vb. gibi fisyon ürünlerinin ömrü kısa olup başka zararsız bir ürüne dönüşebilmektedir. Uzun bir ömre sahip olan aktinitler uzun vadede radyoaktif sorunun temelini teşkil etmektedir. Bu minör aktinitler plütonyumla beraber yeniden işleme alınıp yakıt olarak kullanmak için teknolojik altyapıyı geliştirme çalışmaları günümüzde hala devam etmektedir. Bu işlem minör aktinitlerin plütonyum ve uranyumla yeniden işlenip yakıt olarak kullanılması

durumunda atık olarak sadece fisyon ürünlerinin kalmasını sağlayacaktır (Özgener, 2009).

Peki, atıklar ayrıştırılmadan ya da ayrıştırıldıktan sonra, bu atıklar nasıl değerlendirmeli, ne gibi önlemler alınmalı ve bu atıklar nereye konulmalıdır? Buna günümüzde bunca kurulu nükleer güç santrali olmasına rağmen hala yüzde yüz kabul görmüş bir yanıt bulunamamaktadır. Nükleer gücün, kontrolü olarak kullanılmaya başladığı ilk zamanlar Rusya ve Amerika Birleşik Devletleri oluşan atıkları okyanuslara atmış ya da gömmüştü. Ural dağına gömülen atıklar 1957 yılında büyük bir plütonyum patlamasına neden olmuş bu patlamayla büyük çapta tahliye kararı çıkarılmıştır. Daha sonra yapılan araştırmalarda 1000 kilometre karelik radyolojik kalıntılar görülmüştür. Sonraki yıllarda atıkların imhası ve saklanmasıyla ilgili birçok yol geliştirilmiştir (Kaku, 2011).

Günümüzde nükleer atıklar kademe kademe olup örneğin reaktörlerde kullanılan eldivende atık durumunda olup nükleer reaksiyonlar sonrası ortaya çıkan ve ömürleri milyon yılları bulan ürünlerde atık durumundadır. Bu atıklarda saklanma ile ilgili en önemli sorunu uzun ömre sahip olan neptünyum kuryum ve amerikyum gibi minör aktinitler teşkil etmektedir. Bunlar ya yeniden değerlendirilmeye alınıp nükleer güç santrallerinde kullanılır ya da Camlaştırılarak jeolojik olarak sağlam ve yer altı su kaynaklarının olmadığı zeminlere gömülmektedir. Camlaştırılmasının nedeni camın suda çözünmemesi ve yapısı gereği birçok radyoaktif çürüme etkilerine karşı duyarız olmasıdır. Sonuç olarak atığın suya karışmasını ve sızıntıyı önlemesidir. Bunun yanında atıkların konulduğu kap cam dışında birçok katmandan oluşmakta ve beton bloklar ile kapatılmaktadır (Pegg, 2015).



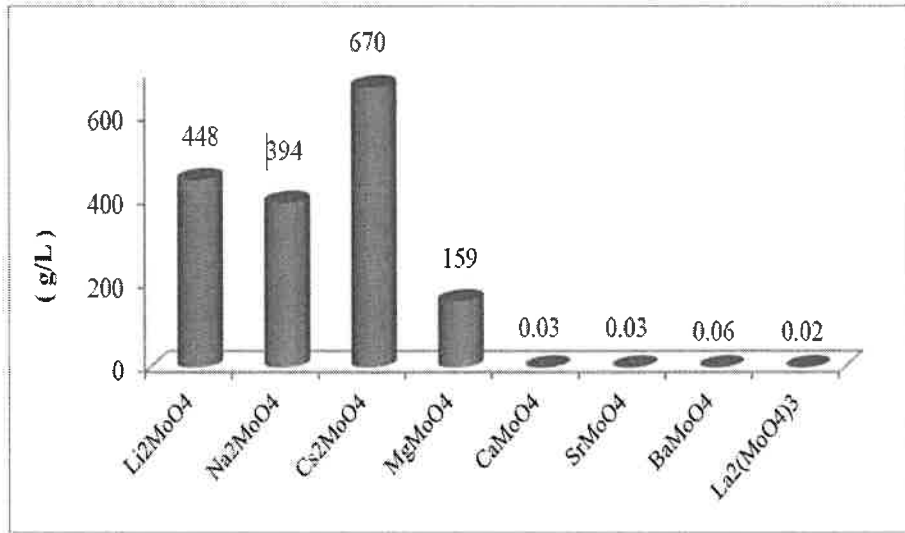
Şekil 2.4 Atıkların camlaştırılması modellerinden biri (TAEK, 2010)

Tüm bu alınan önlemlere rağmen, ömürleri milyonlarca yılı bulan atıkların klasik yöntemle camlaştırılarak saklanmasında soru işaretlerini giderememiştir. Camın çözünmesi ihtimali sonucu camlaştırılan atıklardan yayılan radyasyonun suya ve biyosfere karışma ihtimali en önemli soruların başında gelmektedir(Backhouse, 2017). Borosilikat camla hareketsizleştirilen yüksek seviyeli radyoaktif atıklar bir süre sonra ısı üretmeye başlayacak ve bu işlem sonrası soğumaları uzun sürmesi takdirinde kristal faz oluşumları hızlandırabilir. Eninde sonunda yeraltı sularıyla temas edecek olan camlaştırılmış atıkların oluşturdukları; kristal fazların radyoaktif maddelerin ve oluşturdukları bileşiklerin özelliklerinin bilinmesi büyük önem arz etmektedir. Yüksek seviyeli atıklarını barındıran camlaştırmanın birincil özellikleri; içinde bulunan elementleri yüksek oranda birleştirme kabiliyeti, atıkların oluşturduğu bileşiklere karşı toleransı, kimyasal dayanıklılığı, camın radyasyon direnci, kararlılığı, içinde oluşacak bileşiklere (Ba,Sr,Zn ve Cs) karşı dayanabilme kabiliyeti, termal dayanıklılığı, soğutma aşamasında düşük kristalleşme kabiliyeti, içindeki yüksek seviyeli atığı sindirme becerisi, şeklinde sıralanabilir. Ayrıca borosilikat camlarda, cam bileşenlerinden bağımsız bileşenler oluşabilir. Bunlara örnek olarak, Molibdatlar (MoO_4)⁻², Sülfat (SO_4)⁻², Kromat

$(\text{CrO}_4)^{2-}$ verilebilir. Cam üzerinde oluşan kristal bileşiklerine sarı faz adı verilir. Sarı faz kristalin, katı halindeki renginden dolayıdır. Sarı fazlara neden olan kromatların varlığıdır. Sarı fazlar genellikle suda çözülür. (Rose, 2007).

Bunların yanında Yüksek seviyeli atıkları barındıran borosilikat camlar iyi ve uzun vadeli kimyasal dayanıklılığa sahiptir. Geniş bir radyoaktif ürünü camsı forma dönüştürebilir. Fakat atıkların bir araya getirilip camlaştırılmasıyla kimyasal tepkimeler sonucunda camın yapısı, kalitesi değişebilir, bozulabilir kristal hale dönebilir. Molibdatları da içeren bu kristal bozulmuş cam formu yani sarı faz, camın yapısını bozarak camın katı halde çözünmesine neden olabilir. Bu da çok sayıda yüksek seviyeli radyo aktif atık içeren camlar için istenmeyen bir durumdur (Short ve ark, 2003).

Molibden, camlaştırma için zor bir elementtir. Cam içerisinde, kimyasal reaksiyonlar sonucu oluşan ya da uranyum yakıtının yanması sonucu yani nükleer reaksiyon sonucu, atıklar içerisinde yer alan, molibden içeren sarı faz elemanları, molibdatlar, kristalizasyon sonucu camdan ayrılma eğilimindedir ve sarı faz elemanları suda çözünürler bu da onları uzun süre tutulamaz kılar(Miekina ve ark, 2018).



Şekil 2.5 Molibdatların suda 18-25 ° C'de çözünürlüğü (Miekina ve ark, 2018)

Sarı faz oluşuktan sonra, çoğunlukla, camın üst yüzeyinde yüzer. Sıcaklıkla sarı faz oluşumu doğru orantılıdır. Sarı faz bileşimi yaklaşık olarak %80 çözünür alkali molibdatlar ve % 20 çözünmeyen alkali toprak ve minimum miktarda toprak molibdatları içerir. Sarı fazda tanımlanan belirli molibdatlar CsLiMoO_4 , $\text{Na}_3\text{Li}(\text{MoO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, BaMoO_4 ve SrMoO_4 bulunur. Molibdatlar hareketsiz değil borosilikat cam içerisinde beraber veya çerçeve boşluklarında bulunurlar. Sezyum, teknetyum, kuryum,

amerikyum gibi radyoaktif elementler molibdatlar içerisinde uzun yıllar kalabilir (Dunnett, 2007).

Nükleer reaktörlerde gerçekleşen, nükleer reaksiyonları sonrası, yakıt olarak kullanılan uranyum, ürünleri olan radyoaktif elementler bir çözücüyle plütonyumdan ayrılır ve kalan ömürleri milyonlarca yılı bulan radyoaktif elementler camlaştırılarak, çimento ve betondan oluşan kaplamayla yer altına gömülür. Ömürleri milyonlarca yılı bulan bu atıklar için her ayrıntıyı göz önünde bulundurmak hayati önem taşımaktadır. Doğal afetler, yer sarsıntıları sonrası, yerin çökmesi ve atıkların çözülerek biyosfere ya da suya karışması doğada bulunan tüm unsurlar için tehlike arz etmektedir. Burada sarı faz olarak adlandırılan cam yüzeyinde toplanan baryum molibdat, stronsiyum molibdat ve magnezyum molibdat gibi sarı faz üyeleri sıcaklık değişimleri ile kristal oluşturma oranları artıp azalmaktadır. Bunların cam çözünürlüğünü artırdığı ve radyoaktif atıkları barındırdıkları düşünüldüğünde ısı tutma kapasitelerini hesaplamak öne çıkmaktadır (Morishita ve ark, 2018).

Geleneksel atık arındırıp depolama yönteminin yanında hızlandırıcı temelli reaktörler ya da hızlandırıcı sistemleri kurulduğunda Uranyum yakıt olarak kullanıldığında dahi, çıkan atıkların yakılmasına, Savaş sanayi için kullanılan ve büyük yıkımlara neden olacak plütonyumun yakılmasına ve Uranyum-238 (U^{238}) in yakıt olarak kullanılmasına imkân sağlayacaktır(Sultansoy, 2017)



Şekil 2.6 Nükleer atıkların dönüşümü ve saklanması karşılaştırılması (Sultansoy, 2017)

Bunların yanı sıra atıkların, uzaya taşınması, lazer ışınlarıyla yok edilmesi, yeniden işlenip yakıt olarak kullanılması ve bunun gibi atık değerlendirme ve imha, tartışmaları günümüzde hala devam etmektedir. Şuan geleneksel reaktör atıkları için en

geçerli yol olarak görülen camlaştırılarak depolama yönteminde milyonlarca yıl yarı ömrü olan nükleer yakıt atıklarının uzun süre saklanması gerekliliği bulunduğundan ısı kapasitesi hesaplama amacı güdülmüştür. Çalışmada, nükleer reaksiyon sonucu ortaya çıkan camlaştırılarak depolanma zorunluluğu olan, içerisinde radyoaktif aktinitleri ve radyoaktif atıkları barındıran sarı faz üyelerinin saklanma sırasında oluşan bileşiklerin ısı kapasitelerini Debye Einstein hesaplama yöntemleri kullanılarak hesaplanmıştır (Mehmetoğlu, 2019).

3. TEORİK ESASLAR

Maddelerin ısısını ölçmede ya da ısılarını karşılaştırmada kesin yargılara varmak güçtür. Bu nedenle bir karşılaştırma yapılacaksa Isı kapasitesi (Isı Sığası) kavramı öne çıkmaktadır. Isı sığası; maddenin bir molünün sıcaklığını 1 ⁰K derece yükseltebilmek için verilmesi gereken ısı miktarı olarak ifade edilir. Isı sığası; katı maddelerde ısı kapasitesi ya da ısı soğurma oranı olarak da ifade edilir. Maddenin kütlesiyle öz ısının çarpımına eşit olan ısı sığası maddenin sıcaklığına da bağlı olduğunu birçok çalışmayla desteklenmiştir. Maddeyi oluşturan moleküller belirli sıcaklıklarda titreşir buna da titreşimlerin kuantalanması denir. Literatürde fonon olarak adlandırılan kuantalanma olayına elektronlarda destek vermektedir (Ata ve Aksöz, 2015). Isı kapasitesi hesaplama için geliştirilen; klasik model, Einstein modeli, Debye modeli, Debye-Einstein modellerine bakalım.

3.1 Klasik Yaklaşım

Klasik yaklaşımda, atom ağırlığı ile atomun ısı sığası yakından ilişkili olduğu sonucuna varılmıştır. Dulong-Petit Kanunu adı verilen klasik yaklaşım biçimine göre katı maddelerin kütleleri ile öz ısılarının çarpımı yaklaşık olarak 25 J/mol.K değerindedir. Dulong-Petit klasik yaklaşımına göre katıların ısı sığası sabittir, maddenin türünden ve sıcaklığından bağımsızdır. Klasik yaklaşım sonucunu formüle edecek olursak; N tane atom içeren üç boyutlu kristal yapılı katı bir maddenin 3 tane serbestlik derecesi bulunacaktır. Böylece; $C_v = 3Nk_B$ olarak ifade edilir. Burada N avagadro sayısı $N = 6.02 \times 10^{23}$ adet atom, k_B : Boltzmann sabiti $k_B = 1.38 \times 10^{-23}$ J/K yerine yazılırsa katı maddenin ısı sığasının değeri yaklaşık $C_v = 25$ J/mol.K olarak bulunur. Başka bir ifadeyle; Dulong-Petit yasası, tüm katılar için sabit hacimde C_v molar ısı kapasitesinin $3R$ 'ye eşit olduğunu belirtir. Burada R evrensel gaz sabiti olup değeri yaklaşık 8.31 J/K değerindedir.

Klasik yaklaşım da basit bir modelle açıklanan ısı kapasitesinin değeri bazı kristaller için iyi sonuçlar verse de bu model, hafif ve kısa bağ boyuna sahip kuantum mekaniksel özelliklerin ağır bastığı katı maddeler için uyumlu sonuçlar vermemektedir. Sonuç olarak oda sıcaklığında her katı maddenin ısı sığalarının aynı olmadığı kuantum mekaniksel özelliklerin göz ardı edilemeyeceği ve ısı kapasitesinin sıcaklığa da bağlı olması yeni bir model ihtiyacı doğurmuştur (Ata ve Aksöz, 2015).

3.2 Einstein Modeli

Klasik fizik yasalarıyla açıklanan kara cisim ışıması birçok soruyu yanıtsız bırakmıştı. Özellikle sürekli bir ışıma hali ve düşük dalga boylarında sonsuza giden ışıma şiddeti, mor ötesi felaket diye ifade edilen ve klasik yaklaşımla açıklanamayan karbon gibi maddelerin ısı kapasitesi hesaplamaları deney sonuçlarıyla uyumsuzluk gösteriyordu. Einstein, Planck'ın öne sürdüğü ışımanın kesikliliğini (Kuantalılığı) referans alarak maddenin üç boyutta harmonik titreşim yapacağını varsaydı ve bu titreşimlerin kuantalanacağını yani belirli yörüngelerde belirli değerlerde titreşebileceğini vurguladı. Bu örgü salınımlarının kesikliliğini fonon olarak adlandırdı. Elektron ve foton kelimelerinin benzeşmesinden türemiş olan fonon, belirli frekanslar aralığındaki sesi tanımlar yani ses dalgasının da kuantalanmış olduğunu ifade eder. Foton ise elektromanyetik dalgaların kuantalanmasıdır. Buradan yola çıkan Einstein fonon dalgalarının kristal içinde ses hızında hareket edeceği sonucuna varmıştır. Katıların kuantum mekaniksel yapısı ve fononların klasik davranışları ısı kapasitesi hesaplamalarında kullanılabilir. Einstein ısı kapasitesi için üç varsayımla yola çıkmıştır. Bunlardan birincisi her kristal N tane atomdan meydana gelen bir bağ yapısına sahiptir bu bağları (örgü) üç serbestlik derecesiyle üç boyutta hareket ettiğini varsaymıştır. Böylece molekül içindeki tüm örgülerde salınım hareketi $3N$ tane formülasyonla tanımlanabilecektir. İkincisi katı içindeki atomlar birbirleriyle etkileşim kurmazlar. Üçüncüsü kristal içindeki atomlar aynı frekansla salınır. Son varsayım Debye ile Einstein arasındaki farkın temellerindedir. Planck'ın açtığı yoldan yola çıkarak belirli yörüngelerde f frekansıyla titreşen örgünün sahip olduğu enerjinin kuantalanmasını $E = nhf$ olarak ifade etmiştir. Fononlar ve elektronlar arasındaki en temel fark sıcaklık artmasıyla fononlar oluşur azalmasıyla yok olur elektronlar ise hep sabittir. Einstein'a göre sayıları sıcaklıkla artan ve aynı f frekansıyla titreşen aynı enerjili fononlar oluşur. f frekansına sahip atom içerisindeki fononun enerjisi ortalama enerjiye eşitlenerek Einstein sıcaklığı bulunur. $(hf/k_B = T_E)$, C_V ısı kapasitesi yüksek ve düşük sıcaklıklarda incelenir. Yüksek sıcaklıklarda klasik fizik yaklaşım modeliyle aynı sonuçlar alınırken düşük sıcaklıklarda ısı kapasitesi üstel olarak azalır 0^0K de C_V değeri de sıfıra yaklaşır. Düşük sıcaklık değerlerinde, sonuçlarla örtüşmeyen durum Einstein'ın üçüncü varsayımındaki bütün titreşicileri eşit frekanslı almasından kaynaklanır (Ata ve Aksöz, 2015).

Einstein yaklaşımında her molekülün üç serbestlik derecesine sahip harmonik bir osilatör olarak titreştiği kabul edilmektedir. Her bir serbestlik derecesi ortalama olarak $\frac{1}{2}k_B T$ kinetik enerjiye ve $\frac{1}{2}k_B T$ potansiyel enerjiye sahiptir, dolayısıyla molekül başına ortalama toplam enerji:

$$E = 6 \times \frac{1}{2} k_B T = 3k_B T \quad (3.2.1)$$

olur. Her bir mol başına düşen enerji $3k_B T N_A$ olur, bu durumda molar ısı kapasitesi aşağıdaki gibi yazılabilir:

$$C_V = \frac{\partial E}{\partial T} = 3k_B N_A = 3R \quad (3.2.2)$$

DeneySEL olarak, sıcaklık kritik bir değerin üzerinde olduğu ve her malzeme için farklı olduğu sürece (3.2.2) eşitliği katı maddeler için oldukça iyi sonuçlar vermektedir. Bununla birlikte, sıcaklık kritik değerin altına düştüğünde Dulong ve Petit yasası başarısız olur ve $C_V \rightarrow 0$ olur. Klasik istatistik fizik (kinetik teori) bunun neden meydana geldiğine dair hiçbir ipucu vermez.

Einstein, Planck'ın siyah cisim deneyindeki kutunun duvarlarındaki moleküler titreşimleri inceleyerek, tüm katılarda moleküler titreşimlerin genel bir özelliği olduğunu fark etmiştir. Buna göre, titreşimin ortalama enerjisi $3k_B T$ değil, denklem (3.2.3)'te verilen Planck'ın bir siyah cismin emisyon spektrumunun enerjisidir:

$$\langle E \rangle = \frac{h\nu}{e^{h\nu/k_B T} - 1} \quad (3.2.3)$$

Burada ν molekülün harmonik titreşim frekansıdır.

Yüksek sıcaklıkta,

$$e^{h\nu/k_B T} - 1 \approx \left(1 + \frac{h\nu}{k_B T} + \dots \right) - 1 \approx \frac{h\nu}{k_B T} \quad (3.2.4)$$

Olduğundan. (3.2.4) denklemini (3.2.3) te yerine yazarsak ortalama enerjinin $\langle E \rangle \rightarrow k_B T$ olduğunu görürüz. Yani kinetik teoriden alınan sonuç elde edilir. Düşük sıcaklıklarda ise sonuç farklı olur. (3.2.3) formülünü kullanarak bir mol N_A molekülünün titreşim enerjisini aşağıdaki gibi yazarız:

$$E = 3N_A \langle E \rangle = \frac{3N_A h\nu}{e^{h\nu/k_B T} - 1} \quad (3.2.5)$$

Buradan sabit hacimdeki ısı kapasitesini aşağıdaki gibi hesaplarız:

$$C_V = \frac{\partial E}{\partial T} = 3N_A k_B \left(\frac{h\nu}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{h\nu/k_B T}}{(e^{h\nu/k_B T} - 1)^2} \quad (3.2.6)$$

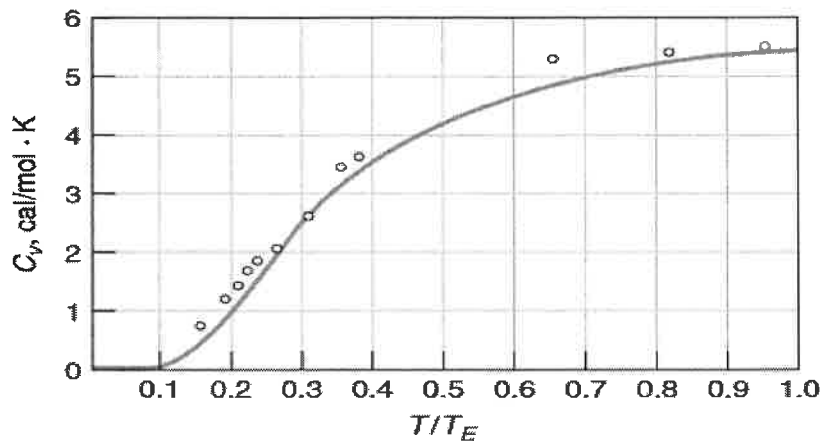
Burada $\theta_E = \frac{h\nu_E}{k_B}$ Einstein sıcaklığı olduğunu dikkate alırsak ısı kapasitesi için aşağıdaki

formülü elde edebiliriz:

$$C_V = \frac{\partial E}{\partial T} = 3N_A k_B \left(\frac{\theta_E}{T} \right)^2 \frac{e^{\theta_E/T}}{(e^{\theta_E/T} - 1)^2} \quad (3.2.7)$$

Einstein yeni varsayımları kullanarak sıcaklığın tüm aralığında ısı kapasitesi değişimi için yeni formül almış oldu. Denklem (3.2.6)'da $T \rightarrow 0$ durumunu dikkate alırsak $C_V \rightarrow 0$ yaklaşır ve $T \rightarrow \infty$ yaklaştığında ise $C_V \rightarrow 3k_B N_A = 3R$ olur.

Şekil 3.2.1'de, elmas için, Einstein'ın yaklaşımından alınan (3.2.7) denkleminden ve deneyden alınan sonuçlar düşük sıcaklık değerleri için verilmiştir. Sonuçlardan görüldüğü gibi Einstein'ın probleme yaklaşımı, Dulong ve Petit yasasına göre açıkça önemli bir gelişmeydi, ancak çok düşük sıcaklıklardaki sapmalara dikkat edilmesi gerekirdi. Debye, Einstein'ın çalışmasını geliştirerek molekülleri tek bir frekansla salınma yaklaşımını, sıfırdan maksimum ν_D değerine kadar değişen frekanslara sahip bağlı osilatörlerden oluşan bir sistemi dikkate alarak ısı kapasitesi için daha genel formül oluşturdu.



Şekil 3.1 Elmasın molar ısı kapasitesinin T'ye göre değişmesi, ikincisi Einstein sıcaklığının birimleri cinsinden $T_E = \theta_E = \frac{h\nu_E}{k_B}$. Sürekli çizgi Einstein'ın yaklaşımının sonucudur (Kittel, 1966; B. Karaoğlu, 2003).

3.3 Debye Modeli

Einstein modelinde, tüm serbestlik derecelerinin aynı frekansta titreştiği varsayıldığından, ısı kapasitesi ifadesi düşük sıcaklıklarda deneyle bağdaşmamaktadır (Karaoğlu, 2003). Debye, Einstein'dan farklı olarak atom içerisindeki titreşim yapan örgülerin birbiriyle etkileştiğini ve birçok frekansta titreştiğini varsaymıştır. Debye frekansı olarak da adlandırılan ω_d kesme frekansı kavramını öne sürmüştür. Titreşim boyunca bir katıdaki atomun yer değiştirmesi tüm titreşim fonksiyonlarının toplamıyla bulunur ifadesini geliştirmiş ve Einstein gibi Debye de N atomlu bir kristalde 3N mod olacağını öne sürmüştür. Debye ısı kapasitesi hesaplamalarında yüksek sıcaklıklarda klasik modelle örtüşen sonuçlara varmıştır. Düşük sıcaklıklarda ise T^3 yasası olarak da bilinen $C_v = \left(\frac{12\pi^4 N k_B}{5}\right) \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3$ 0 K de ısı sığası sıfır olmaktadır sıcaklık artıkça ısı kapasitesi de T^3 ile doğru orantılı olarak artar θ_D (Debye Sıcaklığı) değerine yaklaşık değerini alıp en son alabileceği kapasiteye gelir. Debye sıcaklığı deneysel sonuçlarla uyumlu olup yüksek ve düşük sıcaklıklarda katı maddelerin ısı kapasitesini hesaplamada başarılıdır (Ata ve ark, 2015).

Debye modelinde kristalin tüm hücrelerindeki atomların toplam enerjisi aşağıdaki gibidir:

$$E = \frac{3V\hbar}{2\pi^3 v^3} \int_0^{\omega_{\max}} \frac{\omega^3}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} d\omega \quad (3.3.1)$$

Burada, $x = \frac{\hbar\omega}{k_B T}$ değişeni kullanılır ve $\theta_D = \frac{\hbar\omega_{\max}}{k_B}$ Debye sıcaklığını tanımlarsak

$$E = 3k_B N_A D_3 \left(\frac{\theta_D}{T}\right), \quad (3.3.2)$$

elde ederiz. Bu eşitlikte $D_3 \left(\frac{\theta_D}{T}\right)$ Debye fonksiyonu olup aşağıdaki gibi tanımlanır:

$$D_3 \left(\frac{\theta_D}{T}\right) = 3 \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{x^3}{e^x - 1} dx \quad (3.3.3)$$

Debye yaklaşımından alınan toplam enerji için (3.3.2) formülünü kullanarak sıcaklığın tüm değerlerinde geçerli olan ısı miktarını hesaplayabiliriz:

$$C_v = \frac{\partial E}{\partial T} = 3k_B N_A L_v \left(\frac{\theta_D}{T}\right) \quad (3.3.4)$$

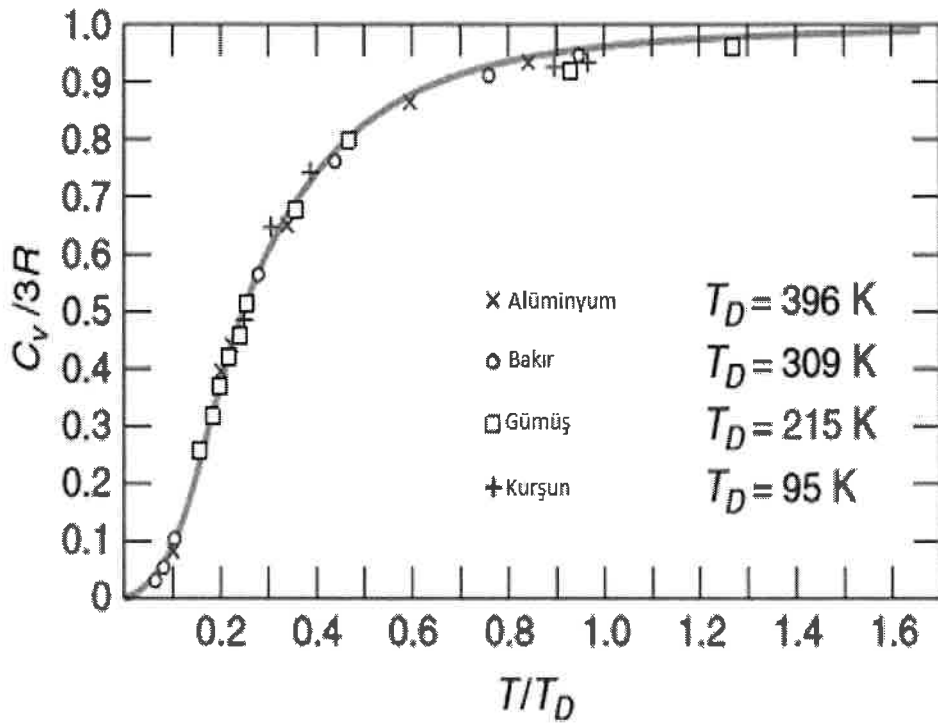
Burada $L_v \left(\frac{\theta_D}{T}\right)$ fonksiyonu aşağıdaki gibi tanımlanır:

$$L_V\left(\frac{\theta_D}{T}\right) = 4D_3\left(\frac{\theta_D}{T}\right) - 3\left(\frac{\theta_D}{T}\right) \frac{1}{e^{\theta_D/T} - 1} \quad (3.3.5)$$

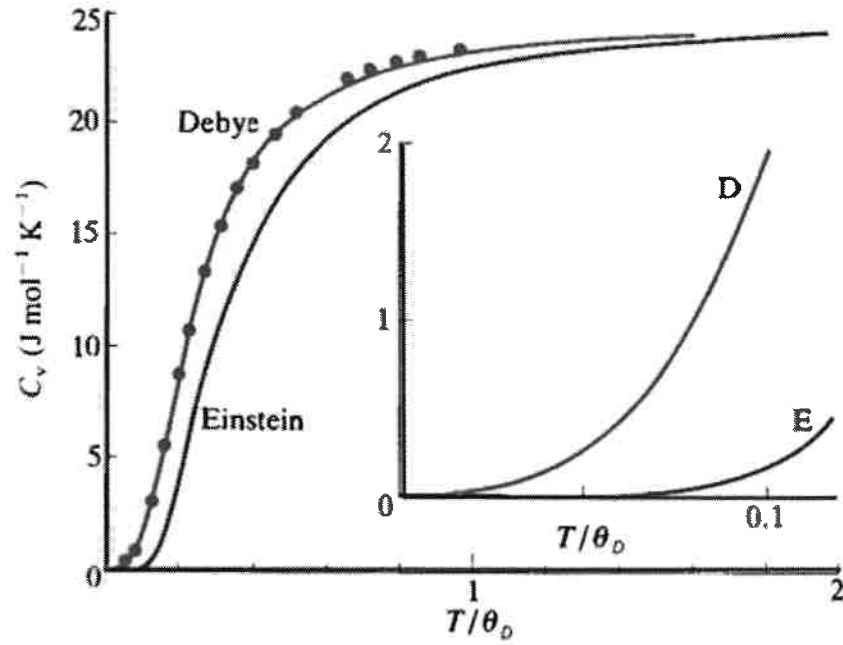
$L_V\left(\frac{\theta_D}{T}\right)$ fonksiyonunun integral formu ise aşağıdaki gibidir:

$$L_V\left(\frac{\theta_D}{T}\right) = 3\left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx \quad (3.3.6)$$

Böylelikle sıcaklığın tüm aralığı için Debye yaklaşımı kullanılarak C_V ısı kapasitesi hesaplanabilmektedir (Askerov ve ark, 2009).



Şekil 3.2 Birkaç katı maddenin molar ısı kapasitesi T 'ye karşı, ikincisi Debye sıcaklığı birimleri cinsinden $T_D = \theta_D = \frac{h\nu_D}{k_B}$. Sürekli eğri, Debye tarafından öngörülen yaklaşımın sonucudur (Kittel, 1966)



Şekil 3.3 Gümüş için Debye ve Einstein yaklaşımlarının karşılaştırmalı sonuçları (Kittel, 1966).

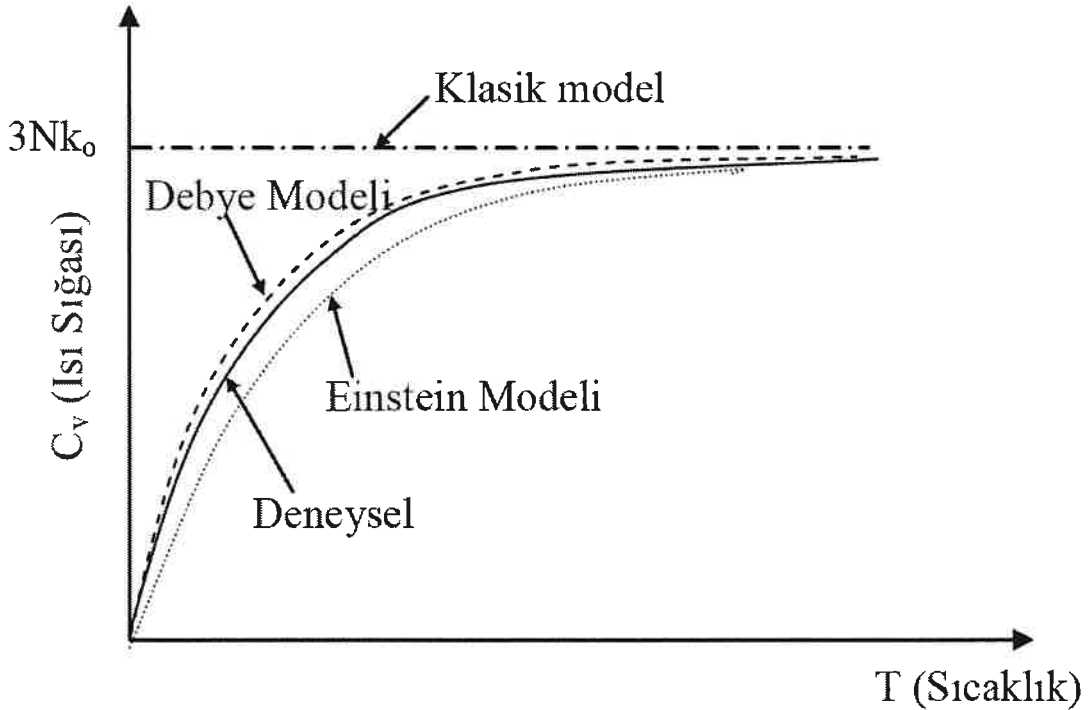
Şekil 3.2’de Debye yaklaşımından alınan sonuçlarla deneysel sonuçlar karşılaştırmalı olarak verilmiştir. İncelemeler göstermektedir ki Debye yaklaşımı tüm sıcaklık aralığında uyumlu sonuç vermektedir. Şekil 3.3’de ise gümüş için Debye ve Einstein yaklaşımlarından alınan karşılaştırmalı sonuçlar verilmiştir. Buradan görülüyor ki özellikle küçük sıcaklık değerlerinde Einstein yöntemi yetersiz kalmaktadır.

3.4 Einstein-Debye Modeli

Katı maddelerin ısı kapasitelerini incelemek için verilen teoriler genel olarak, iki kısma ayrılır:

- ✓ Klasik Teori; Dulong-Petit Yasası (1819) adı verilen bu klasik teoriye göre, tüm katılar için sabit hacimde C_V molar ısı kapasitesinin $3R$ ’ye eşit olduğu ortaya konmuştur(Landau, 1980).
- ✓ Kuantum Teorisi; bu teoriyi ilk olarak Einstein (1907) ve Debye (1912) kullanarak katıların ısı kapasitesi için deneysel değerlere yakın sonuçlar elde etmişlerdir. Daha sonra Cankurtaran ve Askerov (1994-1996) Einstein ve Debye yöntemlerini birleştirerek katıların termodinamik özelliklerini incelemek için daha geniş kapsamlı ve deneysel değerlere daha yakın sonuçlar veren Einstein-Debye yaklaşımını önermişlerdir.

Yapılan deneysel çalışmalar sonucunda sıcaklığın küçük değerlerinde ısı kapasitesi için Dulong- Petit yasasının geçerli olmadığı görülmüştür. Bu problemin çözümü Einstein (1907) tarafından Planck'ın yeni kuantum teorisi kullanılarak(Askerov ve Cankurtaran, 1994), katıdaki bir parçacığın sabit bir frekansla titreştiği varsayılmış ve N sayıda parçacıklar için ısı kapasitesi formülü (Eş. 3.2.7) olarak alınmıştır. Einstein yaklaşımına göre temel problemin çözülmüş olması beklenirken, parçacıkların hareketinin ayrıntıları genel şekilde dikkate alınmadığından deneyle çok uyumlu sonuçlar alınamamıştır. Özellikle, Einstein'ın önerdiği ısı kapasitesi formülü (Eş. 3.2.7) düşük sıcaklıklarda tatmin edici sonuçlar vermemiştir. Teorinin yetersizliklerinin giderilmesi Debye (1912) tarafından gerçekleştirilmiştir. Debye (1912), ortaya çıkan yetersizliği dikkate alarak tüm sıcaklık aralığında katıların ısı kapasitesi için (3.3.4) eşitliğini vermiştir(Cankurtaran ve Askerov, 1996).



Şekil 3.4 Isı kapasitesinin sıcaklıkla değişimi

Son olarak Askerov ve Cankurtaran (1994-1996), Einstein ve Debye yöntemlerini birleştirerek katıların termodinamik özelliklerini incelemek için deneysel değerlerle daha uyumlu bir yaklaşım olan Einstein-Debye yaklaşımını önerdiler(Askerov ve Cankurtaran, 1994; Cankurtaran ve Askerov, 1996).

Genelde maddelerin ısı kapasitesi sabit basınçta (C_p) ve sabit hacimde (C_v) ölçülür. Sabit basınç ve hacimde ısı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığı Debye-Einstein metoduyla şöyle verilmiştir(Eser ve ark, 2020).

$$C_V(T) = 3N_A k_B M \left(\frac{\theta_D}{T}, \frac{\theta_E}{T} \right), \quad (3.4.1)$$

$$C_p(T) = C_V(T) + A_0 (C_V(T))^2 \frac{T}{T_m}. \quad (3.4.2)$$

Burada, θ_D Debye Sıcaklığı, θ_E Einstein Sıcaklığı, k_B Boltzmann sabiti, N_A Avagadro sayısı, T mutlak sıcaklık, T_m Erime sıcaklığı, $A_0 = 5.1 \times 10^{-3} J^{-1} K \cdot mol$. $x_D = \frac{\theta_D}{T}$, $x_E = \frac{\theta_E}{T}$ ise $M(x_D, x_E)$ aşağıdaki gibidir

$$M(x_D, x_E) = L_V(x_D) + (s - 1)A(x_E).$$

Burada s düğüm noktasındaki atom sayısı ve $L_V(x_D)$ ve $A(x_E)$ fonksiyonları ise aşağıdaki gibi tanımlanır:

$$A(x_E) = (x_E)^2 \frac{e^{x_E}}{(e^{x_E} - 1)^2} \quad (3.4.3)$$

ve

$$L_V(x_D) = (n+1)D_n(1, x_D) - x_D \frac{n}{e^{x_D} - 1}. \quad (3.4.4)$$

Burada, katılar için $n = 3-5$ değerleri arasında değişir ve $D\left(\frac{\theta_D}{T}\right)$ Debye fonksiyonu olup genel olarak aşağıdaki gibi tanımlanır (Eser ve ark, 2020).

$$D_n(\beta, x) = \frac{n}{x^n} \int_0^x \frac{t^n}{(e^t - 1)^\beta} dt. \quad (3.4.5)$$

Literatürde Debye fonksiyonu üzerine çok sayıda çalışma vardır. Son zamanlarda yapılan çalışmalarda n boyutlu Debye fonksiyonu için daha hassas sonuçlar veren formüller oluşturulmuştur (Guseinov ve ark, 2007; Mamedov ve ark, 2009).

İncelemeler sonucunda, Einstein-Debye yaklaşımına göre yapılan hesaplama sonuçları deneysel verilerle daha uyumlu olduğu görülmüştür. Literatürde Einstein-Debye yaklaşımına göre katıların termodinamik özelliklerinin incelenmesi ile ilgili az sayıda çalışma vardır. Önerilen tezde Einstein-Debye yaklaşımı dikkate alınarak bazı nükleer yakıt atık bileşiklerin ısı kapasiteleri sıcaklığın geniş aralığında incelenecektir. Eşitlik (3.4.3) ve (3.4.4) formüllerinden görüldüğü gibi ısı kapasitesinin hassas hesaplanması Debye fonksiyonu için oluşturulan analitik formüllerden alınan sonuçlara bağlıdır. Einstein-Debye yaklaşımı için referans alınan formüllerin (Cankurtaran ve Askerov, 1996), Einstein ve Debye yaklaşımlarına göre arzu edilen hassaslıkta sonuçlar

verdiği yapılan çalışmalardan görülmektedir. Bu formüller dikkate alınarak bu tezde. $EMoO_4$ ($E = Mg, Sr, Ba$) nükleer yakıt atık bileşikleri için sabit basınçta ısı kapasiteleri hesaplanmıştır.

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI ve TARTIŞMA

4.1 $EMoO_4$ ($E = Mg, Sr, Ba$) Nükleer Yakıt Atık Bileşiklerinin Einstein-Debye Yaklaşımına Göre Isı Kapasitesinin (C_p) Hesaplanması

Nükleer yakıt atıklarının hareketsizleştirilmesi ve saklanması için borisilikat camlaştırma tekniğinin kullanılması, kimyasal reaksiyonları engellemek için mükemmel bir yöntemdir. İster yüksek seviyeli nükleer atıklar olsun, ister düşük seviyeli nükleer atıklar olsun, camlaştırma yöntemi en çok benimsenen yöntem olmuştur. Kimyasal dayanıklılık, mekanik bütünlük ve termal kararlılık borisilikat camlarda atık yükleme için referans oluşturur(Ojovan ve Lee, 2005). Nükleer atık içeren molibdenler, borisilikat camlarda hareketsiz hale geldiğinde, molibdatların kararlılıkları, dengeleri ve sarı fazların son üyeleri $BaMoO_4$, $SrMoO_4$, $MgMoO_4$, $CaMoO_4$ önemli bir konudur(Ojovan ve Lee, 2005; Morishita ve Houshiyama, 2015; Morishita ve ark, 2016; Morishita ve ark, 2017; Gamsjager ve Wiessner, 2018; Kitamura ve ark, 2010; Morishita ve ark, 2018; Morishita ve ark, 2017; Kinoshita ve ark, 2017). Son zamanlarda sarı faz üyelerinin kararlılığını daha iyi anlamak için sarı faz üyelerinin termodinamik özellikleri çok düşük sıcaklıklardan itibaren (0-300) $^{\circ}K$ aralığında gevşeme yöntemi kullanılarak ölçülmüştür (Morishita ve Houshiyama, 2015; Hawang ve ark, 1997; Weller ve King, 1962; Morishita ve ark, 2004; Morishita ve ark, 2006; Morishita ve ark, 2011; Morishita ve ark, 2012). Bunlara ek olarak sarı faz üyelerinin termodinamik özellikleri için fonksiyonlar türetilmiş ve teorik olarak da hesaplandı(Morishita ve ark, 2016; Morishita ve ark, 2017; Musikhin ve ark, 2015; Musikhin ve ark, 2016; Gamsjager ve ark, 2018; Wu ve ark, 2016; Shi ve ark, 2013; Ma ve ark, 2013). Einstein ve Debye yaklaşımı ile katıların ısı kapasitesinin hesaplanmasında kütle ve öz ısının yanında sıcaklığın da önemli olduğu görülmüştür. Einstein ve Debye modeli; nükleer yakıt atıklarının muhafaza eden, camsı formda biriken ve atıkları barındıran sarı faz üyelerinin geniş sıcaklık aralıkları çerçevesinde ısı kapasitelerini hesaplama imkânı verir(Eser ve ark, 2020). Wu tarafından deneysel ısı kapasitesi verileri, Debye-Einstein integrali ile yeniden değerlendirilmiştir(Wu ve ark, 2016). $EMoO_4$ 'ün ısı kapasitesinin deneysel verileri, Debye-Einstein integrali kullanılarak yapılan hesaplama tekniğiyle uyumaktadır(Morishita ve ark, 2018).

Bu çalışmada n boyutta Debye-Einstein modelini kullanarak nükleer reaksiyon sonrası ortaya çıkan radyoaktif ürünleri barındıran atık durumundaki sarı faz bileşiklerin $EMoO_4$ ($E = Mg, Sr, Ba$) ısı kapasitelerini hesaplayacağız.

$$C_P(T) = sB_n(\beta, x_D) + n_1 E_1(x_{E1}) + n_2 E_2(x_{E2}) \quad (4.1.1)$$

Eşitlik (4.1.1)'de. $x_D = \frac{\theta_D}{T}$, (θ_D Debye sıcaklığı), $x_{Ei} = \frac{\theta_{Ei}}{T}$, (θ_{Ei} Einstein sıcaklığı) ve T mutlak sıcaklıktır. $B_n(\beta, x_D)$, 2. tür Debye integrali, $E_1(x_{E1})$ ve $E_2(x_{E2})$ Einstein fonksiyonları olup, sırasıyla aşağıdaki gibi tanımlanır:

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \int_0^{x_D} \frac{t^{n+1} e^t}{(e^t - 1)^\beta} dt \quad (4.1.2)$$

$$E_i(x_{Ei}) = 3R(x_{Ei})^2 \frac{e^{x_{Ei}}}{[e^{x_{Ei}} - 1]^2} \quad (4.1.3)$$

Burada $n = 3$ ve $\beta = 2$. s, n_1 ve n_2 ayarlanabilir uyum parametreleridir. s, n_1 ve n_2 toplamı formül birimindeki atom sayısına kapalı olmalıdır (Wu ve ark,2016; Shi ve ark, 2013; Woodfield ve ark, 1999). Debye Einstein yöntemiyle getirilen analitik bir yaklaşım, Debye integrallerine göre katıların ısı kapasitesi hesaplanmasını kolaylaştıracaktır.(Mamedov ve ark, 2009).

İkinci tür debye integralini, debye integrali cinsinden belirleyebiliriz.

Eşitlik (4.1.2)' deki integralimize t^{n+1} ifadesini ekler ve çıkarırsak, Eşitlik (4.1.4)'ü,

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \left(\int_0^{x_D} \frac{t^{n+1} e^t + t^{n+1} - t^{n+1}}{(e^t - 1)^\beta} dt \right) \quad (4.1.4)$$

Eşitlik (4.1.4)'de integral içindeki ifadeyi t^{n+1} parantezine alırsak, Eşitlik(4.1.5)'i,

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \left[\int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}(e^t - 1)}{(e^t - 1)^\beta} dt + \int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}}{(e^t - 1)^\beta} dt \right] \quad (4.1.5)$$

Eşitlik (4.1.5)'de sadeleştirmeler yapıldığında, Eşitlik (4.1.6)'yı elde ederiz.

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \left[\int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}}{(e^t - 1)^{\beta-1}} dt + \int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}}{(e^t - 1)^\beta} dt \right] \quad (4.1.6)$$

Eşitlik (4.1.6) n boyutlu Debye fonksiyonu ($D_n(\beta, x_D)$) (Eşitlik (3.4.5)) cinsinden ifade edilebilir. $D_n(\beta, x_D)$ ifadesi için gerekli işlemler sırasıyla aşağıdaki gibidir:

$$D_n(\beta, x_D) = \frac{n}{x_D^n} \int_0^{x_D} \frac{t^n}{(e^t - 1)^\beta} dt \quad (4.1.7)$$

Eşitlik (4.1.7) aşağıdaki gibi ifade edilebilir,

$$\int_0^{x_D} \frac{t^n}{(e^t - 1)^\beta} dt = \frac{x_D^n}{n} D_n(\beta, x_D). \quad (4.1.8)$$

Eşitlik (4.1.6)'de 1. integralde $n \rightarrow n + 1$ ve $\beta \rightarrow \beta - 1$ ise;

$$\int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}}{(e^t - 1)^{\beta-1}} dt = \frac{x_D^{n+1}}{n+1} D_{n+1}(\beta - 1, x_D) \quad (4.1.9)$$

ve Eşitlik (4.1.6)'de 2. integral $n \rightarrow n + 1$ ve $\beta \rightarrow \beta$ ise

$$\int_0^{x_D} \frac{t^{n+1}}{(e^t - 1)^\beta} dt = \frac{x_D^{n+1}}{n+1} D_{n+1}(\beta, x_D) \quad (4.1.10)$$

olur.

Şimdi Eşitlik (4.1.9) ve (4.1.10)'i $D_{n+1}(\beta, x_D)$, $D_{n+1}(\beta - 1, x_D)$ için bulduğumuz ifadeleri $B_n(\beta, x_D)$ integralinde yerine yazalım;

$$\begin{aligned} B_n(\beta, x_D) &= 9R \left(\frac{1}{x_D} \right)^n \left[\frac{x_D^{n+1}}{n+1} D_{n+1}(\beta - 1, x_D) + \frac{x_D^{n+1}}{n+1} D_{n+1}(\beta, x_D) \right] \\ &= 9R \left(\frac{1}{x_D} \right)^n \frac{x_D^{n+1}}{n+1} [D_{n+1}(\beta - 1, x_D) + D_{n+1}(\beta, x_D)]. \end{aligned} \quad (4.1.11)$$

$B_n(\beta, x_D)$ ifadesi için Eşitlik (4.1.11)'de elde edilen formülü $\frac{x_D^{n+1}}{n+1}$ parantezine aldığımızda Eşitlik (4.1.12)'de $D_{n+1}(\beta, x_D)$ ve $D_{n+1}(\beta - 1, x_D)$ Debye fonksiyonlarına bağlı, $B_n(\beta, x_D)$ 'yi aşağıdaki gibi elde ederiz,

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D} \right)^n \frac{x_D^{n+1}}{n+1} [D_{n+1}(\beta, x_D) + D_{n+1}(\beta - 1, x_D)]. \quad (4.1.12)$$

Eşitlik (4.1.12)'de $D_n(\beta, x_D)$ aşağıdaki gibidir,

$$D_n(\beta, x_D) = \frac{n}{x_D^n} \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta) H_{nm}(\beta, x_D). \quad (4.1.13)$$

Burada, $H_{nm}(\beta, x_D)$ fonksiyonu aşağıdaki gibi ifade edilir (Mamedov ve ark,2009),

$$H_{nm}(\beta, x_D) = \frac{n!}{(m+\beta)^{n+1}} \left[1 - e^{-x_D(m+\beta)} \sum_{K=0}^n \frac{x_D^{K(m+\beta)K}}{K!} \right]. \quad (4.1.14)$$

Şimdi Eşitlik (4.1.13) ve (4.1.14)'i Eşitlik (4.1.12)'ye göre düzenleyebiliriz. Buna göre;

$$D_{n+1}(\beta, x_D) = \frac{n+1}{x_D^{n+1}} \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D), \quad (4.1.15)$$

$$H_{(n+1)m}(\beta, x_D) = \frac{(n+1)!}{(m+\beta)^{n+2}} \left[1 - e^{-x_D(m+\beta)} \sum_{K=0}^{n+1} \frac{x_D^K (m+\beta)^K}{K!} \right], \quad (4.1.16)$$

$$D_{n+1}(\beta - 1, x_D) = \frac{n+1}{x_D^{n+1}} \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D), \quad (4.1.17)$$

$$H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) = \frac{(n+1)!}{(m+\beta-1)^{n+2}} \left[1 - e^{-x_D(m+\beta-1)} \sum_{K=0}^{n+1} \frac{x_D^K (m+\beta-1)^K}{K!} \right] \quad (4.1.18)$$

olur. Şimdi elde ettiğimiz bu ifadeleri Eşitlik (4.1.12)'de yerine yazarsak,

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \frac{x_D}{x_D^{n+1}} \left[\frac{n+1}{x_D^{n+1}} \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D) + \frac{n+1}{x_D^{n+1}} \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) \right], \quad (4.1.19)$$

elde ederiz. Formülü açıp gerekli sadeleştirmeleri yapılırsa,

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \frac{x_D}{x_D^{n+1}} \left[\lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D) + \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) \right] \quad (4.1.20)$$

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \left[\lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D) + \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) \right], \quad (4.1.21)$$

$$B_n(\beta, x_D) = 9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \left(\lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m \left[F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D) + F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) \right] \right) \quad (4.1.22)$$

elde edilir. Buna $B_n(\beta, x_D)$ ikinci tür Debye integrali için basit sonlu toplamlar içeren Eşitlik (4.1.22) analitik ifadesini elde etmiş oluruz.

Şimdi Eşitlik (4.1.22) ve (4.1.3)'ü, Eşitlik (4.1.1)'de yerine yazarsak ısı kapasitesi için aşağıdaki analitik ifadeyi elde etmiş oluruz,

$$C_P(T) = s9R \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m \left[F_m(-\beta) H_{(n+1)m}(\beta, x_D) + F_m(-\beta + 1) H_{(n+1)m}(\beta - 1, x_D) \right] + n_1 E_1(x_{E1}) + n_2 E_2(x_{E2}). \quad (4.1.23)$$

Böylece ısı kapasitesi $H_{nm}(\beta, x_D)$ fonksiyonu cinsinden ifade edilmiş olur. Burada, Eşitlik (4.1.17) ve (4.1.19)'u yerine yazarsak,

$$\begin{aligned}
C_p(T) = 9sR \left(\frac{1}{x_D}\right)^n \lim_{L \rightarrow \infty} \sum_{m=0}^L (-1)^m [F_m(-\beta)] \frac{(n+1)!}{(m+\beta)^{n+2}} \\
\left[1 - e^{-x_D(m+\beta)} \sum_{K=0}^{n+1} \frac{x_D^{(m+\beta)K}}{K!} \right] + F_m(-\beta+1) \frac{(n+1)!}{(m+\beta-1)^{n+2}} \\
\left[1 - e^{-x_D(m+\beta-1)} \sum_{K=0}^{n+1} \frac{x_D^{(m+\beta-1)K}}{K!} \right] \\
+n_1 3R(x_{E1})^2 \frac{e^{x_{E1}}}{[e^{x_{E1}}-1]^2} + n_2 3R(x_{E2})^2 \frac{e^{x_{E2}}}{[e^{x_{E2}}-1]^2} \quad (4.1.24)
\end{aligned}$$

sabit basınçta ısı kapasitesi için basit sonlu toplamlar içeren yeni bir formül elde ederiz.

Burada, $F_m(n)$ binom katsayılarıdır. Aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$F_m(n) = \begin{cases} \frac{n(n-1)\dots(n-m+1)}{m!}, & n \text{ tam sayı ise} \\ \frac{(-1)^m \Gamma(m-n)}{m! \Gamma(-n)}, & n \text{ tam sayı değil ise} \end{cases} \quad (4.1.25)$$

Elde ettiğimiz Eşitlik (4.1.23) ve (4.1.24) formüllerini kullanarak sarı faz bileşikleri olan; $MgMoO_4$, $BaMoO_4$, $SrMoO_4$ 'ün 0-300 $^{\circ}K$ sıcaklık aralığında ısı kapasitesinin literatür karşılaştırmalı değerleri aşağıdaki Çizelgelarda gösterildiği gibidir.

Çizelge 4.1 $MgMoO_4$ için referans değerleri

Referanslar	$\theta_D(^{\circ}K)$	$\theta_{E1}(^{\circ}K)$	$\theta_{E2}(^{\circ}K)$	s	n_1	n_2
Morishita (2018)	580	135.9	1280	3.7296	1.0157	1.2546
Bu Çalışma	546.15	162.46	1185.25	3.01	1.380	1.61

*Burada; θ_D :Debye Sıcaklığı, θ_{E1} , θ_{E2} : Einstein Sıcaklıkları ve $s + n_1 + n_2 = 6$

Çizelge 4.2 BaMoO₄ için referans değerleri

Referanslar	$\theta_D(^{\circ}\text{K})$	$\theta_{E1}(^{\circ}\text{K})$	$\theta_{E2}(^{\circ}\text{K})$	s	n_1	n_2
Morishita (2016)	491.05	129.88	1043.91	2.6128	1.8998	1.4873
Bu Çalışma	420.6	125.3	958.87	2.689	1.538	1.768

*Burada; θ_D :Debye Sıcaklığı, θ_{E1}, θ_{E2} : Einstein Sıcaklıkları ve $s + n_1 + n_2 = 6$

Çizelge 4.3 SrMoO₄ için referans değerleri

Referanslar	$\theta_D(^{\circ}\text{K})$	$\theta_{E1}(^{\circ}\text{K})$	$\theta_{E2}(^{\circ}\text{K})$	s	n_1	n_2
Morishita (2015)	506.5	152.87	1063.2	2.9128	1.6055	1.4816
Bu Çalışma	496.3	169.41	1040.56	2.841	1.643	1.516

*Burada; θ_D :Debye Sıcaklığı, θ_{E1}, θ_{E2} : Einstein Sıcaklıkları ve $s + n_1 + n_2 = 6$

Çizelge 4.4 MgMoO₄ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları

T ($^{\circ}\text{K}$)	Morishita (2018)	Bu Çalışma Eş. (4.1.23) ve (4.1.24)
2,1090	0,0020	0,000336885
2,3290	0,0027	0,000453691
2,5480	0,0034	0,000594086
2,7680	0,0043	0,00076164
2,9860	0,0052	0,000956138
3,0070	0,0053	0,000976454
3,2050	0,0063	0,00118232
3,2460	0,0068	0,00122828
3,4860	0,0081	0,00152137

Çizelge 4.4 Devamı

3,7280	0,0097	0,00186071
3,9670	0,0120	0,00224201
4,0070	0,0120	0,00231052
4,2060	0,0140	0,00267214
4,2470	0,0150	0,00275105
4,4920	0,0170	0,00325515
4,7320	0,0200	0,00380527
4,9680	0,0210	0,00440348
5,0090	0,0230	0,00451341
5,2070	0,0260	0,00507007
5,2080	0,0260	0,00507299
5,4090	0,0280	0,00568332
5,6120	0,0320	0,00634753
5,8130	0,0350	0,00705429
6,0160	0,0400	0,00781947
6,1660	0,0390	0,00841911
6,3640	0,0480	0,00925658
6,5620	0,0520	0,0101479
6,7610	0,0580	0,0110997
6,9640	0,0640	0,0121305
7,1660	0,0700	0,013218

Çizelge 4.4 Devamı

7,3700	0,0780	0,014381
7,5740	0,0850	0,0156113
7,7750	0,0920	0,0168919
7,9700	0,1010	0,0182014
8,1690	0,1120	0,0196089
8,3680	0,1200	0,0210914
8,5670	0,1300	0,0226526
8,7650	0,1410	0,0242883
8,9640	0,1540	0,0260198
9,1630	0,1670	0,0278448
9,3630	0,1800	0,0297798
9,5650	0,1940	0,0318446
9,7660	0,2120	0,0340183
9,9680	0,2280	0,0363329
10,1800	0,2470	0,0389154
10,3800	0,2660	0,0415094
10,5800	0,2860	0,0442714
10,7800	0,3080	0,0472177
10,9800	0,3290	0,0503666
11,1900	0,3540	0,0539128
11,3900	0,3780	0,0575413

Çizelge 4.4 Devamı

11,5900	0,4040	0,061439
11,7900	0,4310	0,0656315
11,9900	0,4590	0,0701466
12,1900	0,4870	0,0750136
12,3900	0,5190	0,0802637
12,5900	0,5510	0,08593
12,7900	0,5860	0,0920472
12,9900	0,6200	0,0986515
13,1900	0,6540	0,105781
13,3900	0,6910	0,113474
13,5900	0,7320	0,121772
13,7900	0,7720	0,130716
13,9900	0,8140	0,140348
14,2000	0,8590	0,151251
14,4000	0,9030	0,162431
14,6000	0,9480	0,174434
14,8000	0,9950	0,187304
14,9900	1,0480	0,200375
15,0000	1,0460	0,201086
15,2000	1,0980	0,215827
16,8800	1,5650	0,383491

Çizelge 4.4 Devamı

18,7600	2,1960	0,684859
20,6400	2,9140	1,13016
22,5200	3,7070	1,73083
24,4000	4,5800	2,48515
26,2800	5,5070	3,38136
28,0500	6,4350	4,33863
28,1700	6,5220	4,40708
30,0500	7,4350	5,53046
32,0600	8,5590	6,82133
34,0700	9,6610	8,18167
36,0800	10,8500	9,59083
38,0900	11,9000	11,0318
40,1000	13,0200	12,4912
42,1100	14,1800	13,9588
44,1100	15,3400	15,4199
46,1200	16,4700	16,8839
48,1400	17,5600	18,3473
50	18,75	19,6858
50,1500	18,7300	19,7934
52,1600	19,8800	21,228
54,1700	21,0000	22,6508

Çizelge 4.4 Devamı

56,1800	22,2100	24,0612
58,1900	23,3500	25,4595
60,2000	24,5600	26,8456
62,2100	25,7500	28,2197
64,2200	26,9800	29,582
66,2300	28,2100	30,9324
68,2400	29,4400	32,2709
70,2400	30,6200	33,5908
72,2500	31,8300	34,9051
74,2700	33,0400	36,2134
76,2700	34,2300	37,496
78,2700	35,4200	38,7654
79,4700	36,1000	39,5207
80,2500	36,6200	40,009
81,4700	37,3600	40,7684
83,5100	38,5800	42,0266
85,5900	39,7400	43,2938
87,7400	41,1100	44,5867
89,9500	42,2900	45,8972
92,1600	43,7200	47,1885
94,3000	44,9000	48,4204

Çizelge 4.4 Devamı

96,3800	46,1100	49,5998
96,4000	46,0600	49,611
98,4100	47,3200	50,7336
100,0000	48,17	51,6098
100,4100	48,4800	51,834
100,4600	48,4500	51,8613
104,4700	50,6600	54,0162
108,4800	52,8700	56,1036
112,5000	55,0000	58,1288
116,5100	57,1900	60,0827
120,5300	59,2200	61,9764
124,5500	61,2700	63,8069
128,5700	63,1900	65,5764
132,5900	65,0900	67,2872
136,6100	67,0500	68,942
140,6200	68,8000	70,5393
144,6400	70,5200	72,0899
148,6600	72,1500	73,5922
150,0000	72,78	74,0828
152,6700	73,8100	75,0454
156,6800	75,4000	76,4556

Çizelge 4.4 Devamı

160,7000	76,8500	77,8285
164,7200	78,4900	79,1627
168,7400	79,9200	80,4605
172,7500	81,2300	81,7206
176,7700	82,5900	82,9511
180,7900	83,9700	84,1506
184,8100	85,1100	85,3205
188,8200	86,3800	86,4595
192,8400	87,8100	87,5747
196,8500	88,9500	88,6615
196,8600	88,8100	88,6642
200,0000	89,72	89,4982
200,8600	90,0200	89,724
200,8700	89,9200	89,7266
204,8900	91,2400	90,7683
208,9000	92,1400	91,7848
212,9200	93,2000	92,7821
216,9300	94,3000	93,7561
220,9500	95,1100	94,7122
224,9700	96,2400	95,6487
228,9900	97,0300	96,5662

Çizelge 4.4 Devamı

233,0000	98,1700	97,463
237,0100	98,9800	98,3418
241,0300	100,0000	99,2054
245,0400	100,8800	100,05
249,0600	101,7500	100,88
250,0000	101,79	101,071
253,0700	102,5500	101,691
257,0800	103,5100	102,487
261,0900	103,9500	103,267
265,1100	104,8200	104,035
269,1300	105,4900	104,787
273,1400	106,2500	105,522
277,1500	106,8800	106,244
281,1700	107,7900	106,953
285,1800	108,4100	107,647
289,1800	109,1600	108,326
293,1900	109,6300	108,993
297,1900	109,9400	109,646
298,1500	110,55	109,801
300,0000	110,84	110,097

Çizelge 4.5 BaMoO₄ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları

T (°K)	Morishita (2016)	Bu Çalışma Eş. (4.1.23) ve (4.1.24)
2,0210	0,004	0,000581126
2,2790	0,006	0,000833306
2,5410	0,008	0,00115501
2,7850	0,01	0,00152071
3,0290	0,013	0,00195645
3,2370	0,015	0,00238781
3,4510	0,019	0,00289339
3,6620	0,022	0,00345722
3,8670	0,026	0,00407093
4,0760	0,03	0,00476732
4,2830	0,036	0,00553116
4,4860	0,041	0,00635552
4,6920	0,047	0,00727193
4,8980	0,053	0,00827253
5,1050	0,062	0,00936661
5,3120	0,069	0,0105535
5,5130	0,077	0,0117987
5,7190	0,087	0,013174
5,9260	0,097	0,0146619
6,1310	0,108	0,0162456

Çizelge 4.5 Devamı

6,3420	0,12	0,017997
6,5460	0,134	0,0198153
6,7520	0,147	0,0217857
6,9570	0,164	0,0238924
7,1600	0,18	0,0261361
7,3670	0,198	0,0286034
7,5730	0,219	0,0312605
7,7770	0,239	0,034116
7,9830	0,262	0,037257
8,1820	0,287	0,0405714
8,3840	0,31	0,0442571
8,5890	0,336	0,0483757
8,7940	0,367	0,0529291
8,9980	0,396	0,0579524
9,2020	0,426	0,0635331
9,4050	0,462	0,0697118
9,6080	0,496	0,0765924
9,8130	0,537	0,0843385
10,0200	0,572	0,0930669
10,2100	0,615	0,101966
10,3500	0,642	0,109115

Çizelge 4.5 Devamı

10,5400	0,687	0,119688
10,7500	0,733	0,132635
10,9500	0,78	0,146303
11,1400	0,833	0,160595
11,3500	0,883	0,177985
11,5500	0,939	0,196214
11,7700	1,002	0,218276
11,9700	1,061	0,240278
12,1700	1,124	0,264243
12,3700	1,191	0,290278
12,5900	1,264	0,32143
12,7800	1,329	0,350553
12,9800	1,401	0,383526
13,1700	1,477	0,417137
13,3900	1,558	0,45894
13,6000	1,640	0,501832
13,7800	1,714	0,54099
13,9800	1,803	0,587162
14,2000	1,887	0,641269
14,4000	1,984	0,693543
14,5900	2,066	0,74598

Çizelge 4.5 Devamı

14,8000	2,170	0,807141
15,0000	2,252	0,868565
15,1900	2,358	0,929824
15,3900	2,454	0,997402
15,5900	2,566	1,06818
15,8100	2,674	1,14977
16,01	2,7930	1,22735
16,2	2,8870	1,30406
16,23	2,8880	1,31644
21,29	6,2380	4,39352
26,32	10,4300	8,85434
31,37	15,1000	13,8687
36,38	20,2100	18,8618
40,42	24,1800	22,7641
44,89	28,3000	26,9198
49,37	32,3500	30,9179
50	32,82	31,4673
53,83	36,1500	34,7429
58,3	39,7200	38,4285
62,77	43,1700	41,9685
67,25	46,4100	45,3695

Çizelge 4.5 Devamı

71,73	49,4800	48,6213
76,19	52,4300	51,7092
80,66	55,2300	54,6549
84,67	57,6200	57,1724
89,14	60,2500	59,8434
93,62	62,6900	62,3832
98,09	65,0600	64,7879
100	65,99	65,778
102,56	67,2800	67,0717
107,02	69,4300	69,2386
111,48	71,6100	71,3027
115,95	73,6600	73,2769
120,41	75,4700	75,1608
124,88	77,3800	76,9704
128,9	78,9900	78,5366
133,36	80,6500	80,2123
137,83	82,2500	81,832
142,3	83,8500	83,397
146,76	85,6100	84,9084
150	86,55	85,9773
151,23	87,0200	86,377

Çizelge 4.5 Devamı

155,7	88,5200	87,8026
160,16	89,73	89,1851
164,62	91,11	90,5303
169,09	92,3	91,8431
173,11	93,45	92,995
177,57	94,68	94,2426
182,03	95,95	95,4596
186,49	97	96,6469
190,96	98,16	97,8083
195,43	99,28	98,942
199,89	100,38	100,046
200	100,36	100,073
204,35	101,36	101,124
208,81	102,39	102,177
213,3	103,25	103,211
217,3	104,38	104,112
221,77	105,42	105,095
226,23	106,22	106,053
230,69	106,83	106,988
235,16	107,6	107,902
239,63	108,78	108,794

Çizelge 4.5 Devamı

244,1	109,7	109,664
248,56	110,29	110,511
250	110,65	110,78
253,02	111,3	111,337
257,52	111,99	112,15
261,5	112,58	112,852
265,96	113,51	113,621
270,42	114,21	114,37
274,88	115,03	115,1
279,35	115,68	115,814
283,81	116,31	116,508
288,28	116,85	117,186
292,74	117,96	117,846
297,19	118,35	118,488
298,15	118,47	118,624
300		118,884

Çizelge 4.6 SrMoO₄ için ısı kapasitesi hesaplama sonuçları

T (°K)	Morishita (2015)	Bu Çalışma Eş. (4.1.23) ve (4.1.24)
2,01	0,002	0,000366815
2,27	0,003	0,000528368
2,52	0,004	0,000722871
2,77	0,005	0,00096006
3,02	0,006	0,00124417
3,23	0,007	0,00152218
3,44	0,009	0,0018388
3,65	0,011	0,00219653
3,86	0,013	0,00259789
4,06	0,015	0,00302299
4,27	0,017	0,00351676
4,48	0,02	0,00406156
4,68	0,023	0,00463017
4,89	0,027	0,00528184
7,56	0,101	0,0195213
10	0,247	0,0456874
14,99	0,97	0,216811
21,27	3,0780	1,33868
26,31	5,7760	3,54642
31,35	9,2440	6,82415

Çizelge 4.6 Devamı

36,37	13,1	10,7648
40,41	16,48	14,1841
44,88	20,3	18,0618
49,36	24,05	21,9506
50	24,27	22,5027
53,83	27,72	25,778
58,29	31,33	29,5154
62,76	34,79	33,1636
67,24	38,2	36,7125
71,72	41,47	40,147
76,18	44,63	43,4477
80,63	47,61	46,6197
84,66	50,2	49,3862
89,14	52,96	52,3426
93,61	55,75	55,1686
98,09	58,29	57,8789
100	59,11	58,9981
102,55	60,78	60,4593
107,01	63,14	62,9265
111,47	65,53	65,2858
115,94	67,74	67,5475

Çizelge 4.6 Devamı

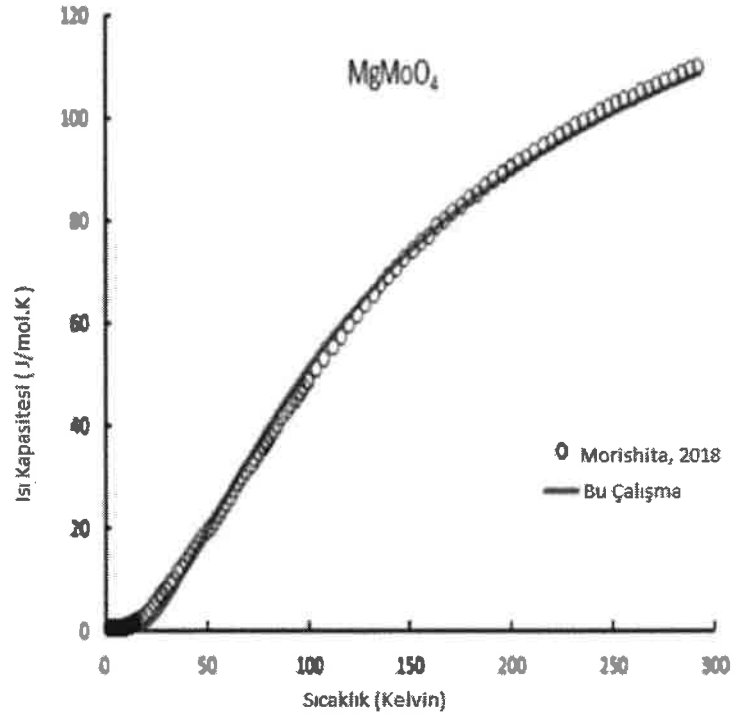
120,41	69,8	69,7122
124,88	71,78	71,7857
128,9	73,63	73,5775
133,36	75,33	75,4897
137,83	77,25	77,3315
142,3	79,23	79,1035
146,76	80,93	80,8069
150	81,68	82,0063
151,23	82,33	82,4536
155,7	84,04	84,0436
160,16	85,52	85,5773
164,62	86,92	87,0616
169,09	88,38	88,5025
173,11	89,53	89,7606
177,57	90,99	91,1168
182,03	92,29	92,4335
186,49	93,56	93,7126
190,96	94,81	94,9585
195,43	95,88	96,17
199,9	97,05	97,3485
200	97,71	97,3745

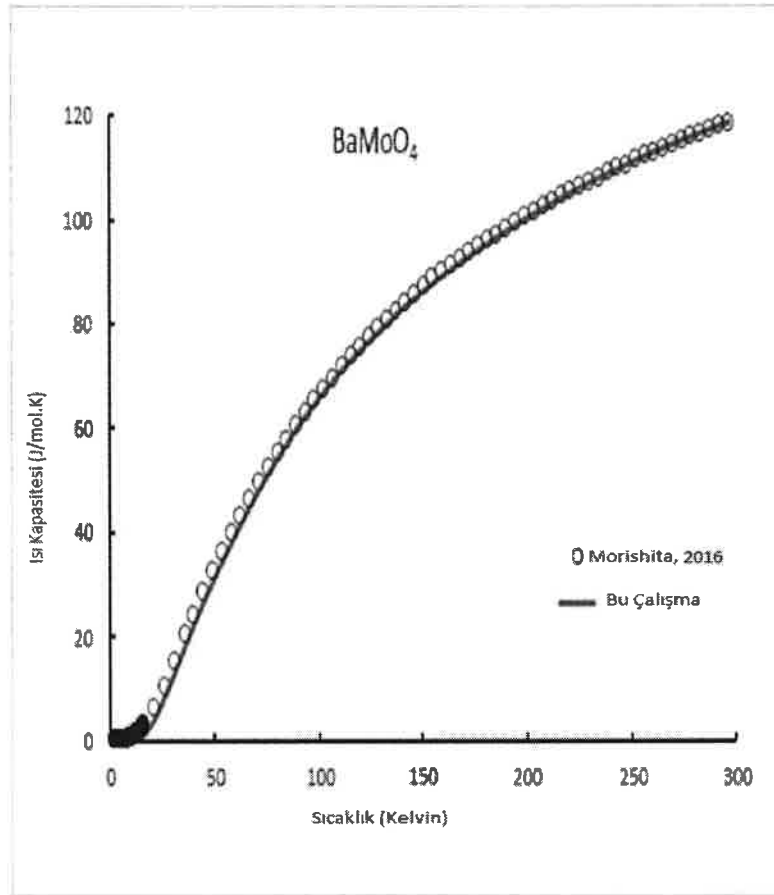
Çizelge 4.6 Devamı

204,36	98,2	98,4928
208,82	99,35	99,6066
213,31	100,54	100,698
217,31	101,47	101,647
221,77	102,57	102,678
226,23	103,48	103,683
230,69	104,28	104,662
235,16	105,3	105,618
239,63	106,12	106,55
244,1	107,24	107,458
248,56	107,95	108,341
250	109,25	108,621
253,16	108,67	109,228
257,52	109,38	110,047
261,5	110,41	110,778
265,96	111,25	111,577
270,42	111,77	112,355
274,88	112,91	113,114
279,34	113,52	113,854
283,81	114,45	114,577
288,28	115,03	115,282

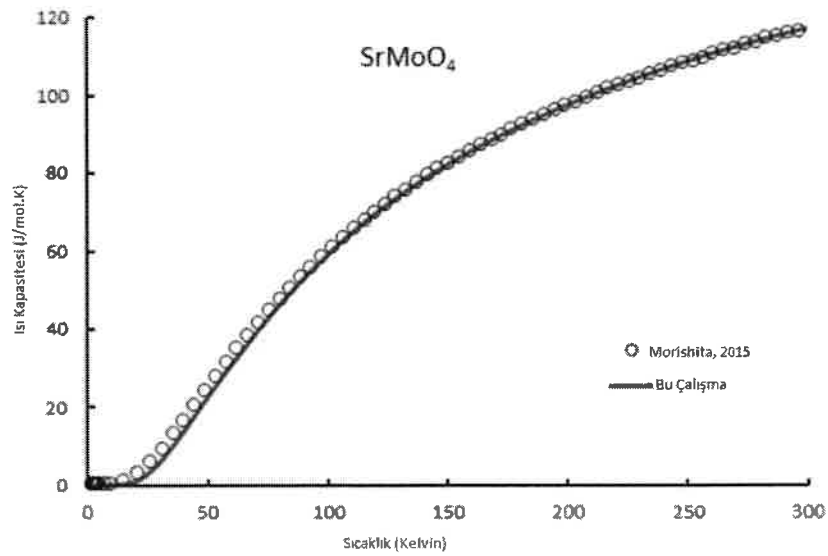
Çizelge 4.6 Devamı

292,74	115,77	115,968
297,19	116,09	116,635
298,15	116,68	116,777
300	116,82	117,047
301,7	117,08	117,294

Şekil 4.1 $MgMoO_4$ 'ün ısı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması



Şekil 4.2 $BaMoO_4$ 'ün Isı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması



Şekil 4.3 $SrMoO_4$ 'ün Isı kapasitesinin sıcaklığa bağlılığının deneysel veriyle karşılaştırılması

Bu çalışmada $EMoO_4$ ($E = Mg, Sr, Ba$) sarı faz üyelerinin deneysel ısı kapasitesi değerleri, Debye-Einstein denklemleri ile karakteristik sıcaklıklar $\theta_D, \theta_{E1}, \theta_{E2}$ nükleer yakıt atıklarının camlarda biriken sarı faz üyeleri için uyum parametreleri (s, n_1 ve n_2) olarak gösterildi.

5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER

Nükleer reaksiyonlar sonucu oluşan nükleer atık durumundaki trans uranyum (uranyum ötesi) elementlerden; amerikyum, neptünyum, küriyum vb. elementleri ve stronsiyum, sezyum, teknetyum gibi parçalanabilir ürünleri barındıran sarı faz üyesi, $MgMoO_4$, $BaMoO_4$, $SrMoO_4$ bileşiklerinin ısı kapasiteleri Debye-Einstein yöntemi kullanılarak hesaplandı. Alınan sonuçlar literatür sonuçları ile düşük sıcaklıklarda az da olsa farklılık gösterse de genel hatlarıyla örtüşmektedir. Üç sarı faz bileşiğimiz içinde uyum parametrelerinin toplamı ($s+n_1+n_2=6$) atom sayısına eşittir. $MgMoO_4$ sarı faz bileşiği için deneysel verileri Morishita ve arkadaşları tarafından 2018 ve 2016 da sunulmuş olup Eşitlik (4.1.24)'de elde ettiğimiz formülle yaptığımız hesaplamalar sonucu, elde ettiğimiz değerler, Şekil 4.1 ve Çizelge 4.4 de karşılaştırmalı olarak gösterilmiştir. Çizelge 4.1 de $MgMoO_4$ sarı faz bileşiği için ısı kapasitesi hesaplama parametreleri ve Çizelge 4.4' de deneysel verilerle bu çalışma sonuçları karşılaştırılmış olup 0-300 Kelvin derece aralığında hesaplama sonuçlarımız, Morishita ve arkadaşları tarafından elde edilen sonuç değerlerine çok yakındır. 100 °K civarında Deneysel verilerle sapma oranı % 7.1 civarındadır ancak Debye sıcaklığı 546.15 °K alındığında bu sapma oranı % 5.83' e gerilemektedir. Sarı faz bileşiklerinden $BaMoO_4$ bileşiği için deneysel veriler, Morishita ve arkadaşları tarafından 2016 yılında verilmiş olup Eşitlik (4.1.24)' de elde ettiğimiz formülle yaptığımız hesaplama sonucu, elde ettiğimiz değerler Şekil 4.2 ve Çizelge 4.5 de karşılaştırmalı olarak gösterilmiştir. Çizelge 4.2 de $BaMoO_4$ sarı faz bileşiği için ısı kapasitesi parametreleri ve Çizelge 4.5'de deneysel verilerle bu çalışma sonuçları karşılaştırılmıştır. Sonuçlarımız deneysel verilerle uyumludur en yüksek sapma 50 °K derecede olup % 4,6'dır. Diğer sıcaklıklarda değerler oldukça yakındır. $SrMoO_4$ sarı faz bileşiği için deneysel veriler, Morishita ve arkadaşları tarafından 2015, Gamsjager ve arkadaşları tarafından 2018 yılında sunulmuş olup Eşitlik (4.1.24)'de elde ettiğimiz formülle yaptığımız hesaplama sonucu, elde ettiğimiz değerler Şekil 4.3 ve Çizelge 4.6'da karşılaştırmalı olarak gösterilmiştir. Çizelge 4.3'de $SrMoO_4$ sarı faz bileşiği için ısı kapasitesi parametreleri ve Çizelge 4.6'da deneysel verilerle bu çalışma sonuçları karşılaştırılmıştır. Sonuçlarımız deneysel verilerle iyi bir uyum içerisindedir. En büyük sapma 50 °K derecede görülmekte olup % 8,8'dir. Diğer sıcaklık değerleri için değerler oldukça yakındır. Radyasyon yayan elementleri barındıran bileşiklerin $EMoO_4$ 'ün (E=Mg, Sr, Ba) ısı kapasiteleri 0-300 °K sıcaklık aralığında hesaplanmıştır. Deneysel verilerle karşılaştırılmış olup sonuçlar tam bir uyum içerisindedir. Hesaplamalarda

kullanılan Debye-Einstein integral formülü daha karmaşık yerleştirme yaklaşımlarına oranla avantaja sahiptir. Daha az montaj parametresi ve fiziksel anlam kaybı vs. yok. Sonuç olarak kullanılan Debye-Einstein integralinin fit yöntemi çalışılan bileşiklerin ısı kapasitesini hesaplama için uygundur. Bu çalışmada kullanılan yaklaşımla ısı kapasitesi hesaplama yönteminin basit ve kullanışlı olması beklenmektedir.

6. KAYNAKÇA

- Arık, M., Bilgin, P.S., Caliskan, A., Cetiner, M.A., Sultansoy, S., 2012, A Provisional Study Of Ads Within Turkic Accelerator Complex Project, Nurer 2012 – III., International Conference On Nuclear & Renewable Energy Resources, İstanbul, TÜRKİYE, 1-4.
- Askerov, B.M., Cankurtaran, M. 1994. Isobaric Specific-Heat And Thermal Expansion Of Solid In The Debye Approximation, *Physica Statatus. Solidi Basic*, 185, 341-348.
- Askerov, I.M., Koç, H., Eser, E., Mamedov, B.A. 2009. Accurate Evaluation Of The Specific Heat Capacity Of Solids And Its Application To Mgo And Zno Crystals, *International Journal Of Thermophysics*, 30(3), 1048-1054.
- Ata, P., Aksöz, S. (2015), ‘Lineer Isı Akış Metoduyla In-Bi İntermetalik Alaşımlarının Isıl İletkenlik Katsayısının Ölçümü’, Yüksek Lisans Tezi, Nevşehir Hacı Bektaş Veli Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, 1-13.
- Backhouse, D.J. 2017. A Study of the Dissolution of Nuclear Waste Glasses in Highly-Alkaline Conditions, The University of Sheffield Faculty of Engineering Department of Materials Science and Engineering, 3-6.
- Cankurtaran, M., Askerov, V. 1996. Equation Of State, İsoobaric Specific Heat, And Thermal Expansion Of Solids With Polyatomic Basis In The Einstein-Debye Approximation. *Phys. Stat. Sol. B*, 194, 499-507.
- Clark, D.L., Hecker S.S., Jarvinen, G.D., Neu M.P. 2006. "Plutonium." *The Chemistry Of The Actinide And Transactinide Elements*. Springer, Dordrecht, 2008, 813-1264.
- Demirkol, İ. 2005. Hızlandırıcıya Dayalı Yeni Nesil Reaktörler, *KSÜ Fen ve Mühendislik Dergisi* 8(1), 16-25.
- Dunnett, B.F. 2007. Review Of The Development Of UK High Level Waste Vitrified Product, *Nexia Solutions Report 7926 (06)*, 1-53
- Ekener, H., 1997, Nuclear Energy And Insurance, (INIS-TR--0032), Generali Sigorta A S, Turkey, 230-245.
- Eral, M., 2015, Nükleer Güç Santralleri Ve Ülkemiz, TMMOB Kimya Mühendisleri Odası, Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Nükleer Teknoloji Anabilim Dalı, 2-21.
- Erdoğan, M. 2017. İyonlaştırıcı Radyasyon ve Korunma Yöntemleri, Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi, *Fen Dergisi*, 43(2), 139-147.
- Eser, E., Duyuran, B., Bölükdemir, M.H., Koç, H. 2020. A Study On Heat Capacity Of Oxide And Nitride Nuclear Fuels By Using, *Nuclear Engineering and Technology* 52 (2020), 1208-1212.
- Ewing, R.C., Weber, W.J., Lian, J. 2004. Nuclear Waste Disposal—Pyrochlore (A₂B₂O₇) Nuclear Waste Form For The Immobilization Of Plutonium And “Minor” Actinides, *Journal Of Applied Physic*, 95(11), 5949-5971.
- Fizik Mühendisleri Odası TMMOB 27. Dönem Kurulu, 2011, FMO, Nükleer Enerji Raporu, 1, Ankara, 9-17.

- Gamsjager, E., Wiessner, M. 2018. Low Temperature Heat Capacities And Thermodynamic Functions Described By Debye-Einstein Integrals, *Monatsh Chem*, 149, 357-368.
- Guseinov, I. I., Mamedov, B. A. 2007. Calculation Of Integer And Noninteger N-Dimensional Debye Functions Using Binomial Coefficients And Incomplete Gamma Functions, *International Journal Of Thermophysics*, 28(4), 1420-1426.
- Hawang, J.S., Lin, K.J., Tien, C. 1997. Measurement Of Heat Capacity By Fitting The Whole Temperature Response Of A Heat-Pulse Calorimeter, : *Rev. Sci. Instrum*, 68, 94-99.
- Landau, L. D., Lifshitz, E. M. 1980. *Statistical Physics Pt, 1. Course in Theoretical Physics*, 5 (3rd ed.). Oxford: Pergamon Press. P, ISBN 978-0-7506-3372-7, 193-196.
- Lumetta, G.J., Thompson, MC., Penneman, RA., Eller, PG. 2008. Curium. In: Morss, LR., Edelstein, NM., Fuger, J., (eds) *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements*, Springer Dordrecht, 978-1-4020-3555-5, 1397-1443.
- Kaku, M., 2011. Geleceğin Fiziği, Cilt 10, Yasemin Saraç Oymak, Hüseyin Oymak, Odtü Yayıncılık, Ankara, 298-306.
- Karaoğlu, B., 2003, *Katıhal Fiziğine Giriş*, İstanbul, 84-117.
- Kessler, G., 2004, *Nuclear Fission Reactors By Guenther Kessler*, Öztekt, S.S., EÜAŞ, (INIS-TR--0101), Turkey, 13-42.
- Kitamura, A., Kirishima, A., Saito, T., Shibutani, S., Tochiyama, O. 2010. JAEA Thermodynamic Database for Performance Assessment of Geological Disposal of High-level and TRU Wastes: Selection of Thermodynamic Data of Molybdenum, *JAEA-Review*, 1-75.
- Kittel, C., 1966, *Introduction To Solid State Physics*, Seventh Edition, ISBN 0-471-11181-3, 1-600.
- Koç, H., Eser, E., Mamedov, B.A. 2011. "Calculation Of Heat Capacity Of The Nuclear Fuels UO₂ And NpO₂ Using Integer And Non-Integer N-Dimensional Debye Functions." *Nuclear Engineering And Design*, 241(9), 3678-3682.
- Ma, C., Woodfield B.F., Navrotsky, A.J., Low Temperature Heat Capacity Of Bulk And Nanophase ZnO And Zn_{1-x}Co_xO Wurtzite Phases *The Journal Of Chemical Thermodynamics*, 60, 191-196.
- Mamedov, BA., Eser, E., Koç, H., Askerov, I.M., 2009, Accurate Evaluation of the Specific Heat Capacity of Solids and its Application to MgO and ZnO Crystals, *Int. J. Thermophy.*, 30, 1048-1054.
- Mehmetoğlu, T., 2019. Analytical Evaluation Of Temperature Dependence Of Heat Capacities Of Americium Dioxide, *Umteb International Congress On Vocational And Technial Sciences*, 140-143.
- Miekina, M. 2018. *Crystal Formation During The Vitrification Of HLW In Ca/Zn Base Glass*, A Thesis Submitted To The Department Of Materials Science And Engineering, At The University Of Sheffield In Partial Fulfilment Of The Requirement For The Degree Of Doctor Of Philosophy, 1-52.
- Morishita, M., Koyama, K., Shikata, S., Kusumoto, M. 2004. Standard Gibbs Energy Of Formation Of Mg₄₈Zn₅₂ Determined By Solution Calorimetry And Measurement

Of Heat Capacity From Near Absolute Zero Kelvin Metallurgical And Materials Transactions B, 35, 891-895.

- Morishita, M., Yamamoto, H., Tsuboki, K., Matsumoto, Y., 2006, Standard Gibbs Energy of Formation of Zn_8La Determined by Solution Calorimetry and Measurement of Heat Capacity from Near Absolute Zero Kelvin, *Materials Transactions*, 47(6), 1555-1559.
- Morishita, M., Yamamoto, M., Koderu, M., Ikeda, K., Miura, S., Yamada, Y. 2011. Calorimetric Study Of $AlNd_2$ Heat Capacity. Standard Gibbs Energy Of Formation, *Thermochim. Acta*, 526(1-2), 90-98.
- Morishita, M., Ikeda, K., Nishimura, N., Miura, S., Yamada, Y. 2012. Standard Gibbs Energies Of Formation Of The Ferro- And Paramagnetic Phases Of $AlNd_3$, *J. Phys. Chem. C*, 116, 20489-20495.
- Morishita, M., Houshiyama, H.. 2015. The Third Law Entropy of Strontium Molybdates, *Materials Transactions*, 56(4), 545-549.
- Morishita, M., Fukushima, M., Houshiyama, H. 2016. Third Law Entropy of Barium Molybdate, *Materials Transactions*, 57(1), 46-51.
- Morishita, M., Houshiyama, H., Kinoshita, Y., Nozaki, A., Yamamoto, H. 2017. Third Law Entropy of Silver Molybdate, *Materials Transactions*, 58(6), 868-872.
- Morishita, M., Kinoshita, Y., Houshiyama, H., Nozaki, A., Yamamoto, H. 2017. The Journal Of Chemical Thermodynamics, Thermodynamic properties for calcium molybdate, molybdenum tri-oxide and aqueous molybdate ion, 114, 30-43.
- Morishita, M., Houshiyama, H., Kinoshita, Y., Nozaki, A., Yamamoto, H., 2018. Thermodynamic Properties for $Nd_2 (MoO_4)_3$ Formed in the Nuclear Fuel Waste Glasses, *Applied Geochemistry*, 98(1), 310-318.
- Morishita, M., Kinoshita, Y., Nozaki, A., Yamamoto, H. 2018. Thermodynamic Properties For MmO_4 (M = Mg, Sr And Ba) As The End-Members Of The Yellow Phases Formed In The Nuclear Fuel Waste Glasses, *Applied Geochemistry* 98 (2018) 310-320.
- Musikhin, A.E., Naumov, V.N., Bespyatov, M.A., Ivannikova, N.V. 2015. The Heat Capacity Of Li_2MoO_4 In The Temperature Range 6–310 K, *Journal Of Alloys And Compounds*, 639, 145-148.
- Musikhin, A.E., Naumov, V.N., Bespyatov, Shlegel, V.N. 2016. Heat Capacity And Thermodynamic Functions Of $CaMoO_4$ At Low Temperatures, *Journal Of Alloys And Compounds*, 655, 165-171.
- Ojovan, M.I., Lee, W.E. 2005. *An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation*, Elsevier, 1-250.
- Özgener, H.A., 2009, Nükleer Atık Problemi Ve Transuranyum Elementlerinin Transformasyonu, 10 Ulusal Nükleer Bilim Ve Teknolojileri Kongresi, Bildiriler Kitabı Tam Metinler Cilt 1, Muğla Üniversitesi Muğla Türkiye, 27-48.
- Pegg, Ian L. 2015. Turning Nuclear Waste Into Glass, *Physics Today* 68 (2), Doi: 10.1063/PT.3.2687, 33-38.
- Rose, P.B. 2007. The Crystallisation and Aqueous Durability of Borosilicate Nuclear Waste Glasses, University of Sheffield Department of Engineering Materials Immobilisation Science Laboratory, 8-18.
- Sevim, C., 2019, Küresel Enerji Stratejileri Ve Jeopolitik, Cilt 4, Seçkin Yayınları, Ankara, 7-15.

- Schulz, WW., Penneman, RA. 1986. Americium., In: Katz, JJ., Seaborg, GT., Morss, LR., (eds) *The Chemistry Of The Actinide Elements*, 1986, Second Edition, Springer Dordrecht, 887-961.
- Shi, Q., Boerio-Goates, J., Woodfileld, B.F. J. 2013. Low temperature heat capacity study of FePO_4 and $\text{Fe}_3(\text{P}_2\text{O}_7)_2$, *The Journal of Chemical Thermodynamics*, Cilt 62, 35-42.
- Short R, J Hand, R, J., Hyatt, N, C. 2003. Molybdenum İn Nuclear Waste Glasses - Incorporation And Redox State, *MRS Proceedings*, 757. 10.1557/PROC-757-II5.4, 1-6.
- Sultansoy, S., Şahin, S., Ünal, S., 2015, Türkiye’de Toryum: Enerji, Ekonomi ve Siyasette Fırsatlar, Türkiye Enerji Vakfı, Yayın: 2 Şubat 2015, 6-34.
- Sultansoy, S. 2017. Trans Pasifik Ortaklığı, Asya Ülkeleri ve Türkiye, 1. Baskı, Tasam Yayınları, Uluslararası İlişkiler Serisi, İstanbul, 33-45.
- Temurçin, K., Aliğaoğlu, A. 2003. Nükleer Enerji Ve Tartışmalar Işığında Türkiye’de Nükleer Enerji Gerçeği, *Coğrafi Bilimler Dergisi*, 1(2), 25-39
- Türkiye Atom Enerji Kurumu, 2010, Nükleer Enerjinin Temel Prensipleri, www.taek.gov.tr, Erişim Tarihi: 10 Ocak 2020.
- Türkiye Atom Enerji Kurumu, 2010, Nükleer Yakıt Çevrimi, www.taek.gov.tr, Erişim Tarihi: 10 Ocak 2020.
- United States Nuclear Regulatory Commision, 2019. Radioactive Waste, 301.415.8220, www.nrc.gov, Erişim Tarihi: 23 Temmuz 2019.
- United States of America Department of Energy, 1993, Nuclear Physics And Reactor Theory, *Doe Fundamentals Handbook*, Washington, D.C. 20585, 2(2), 1-14.
- Üçpırtı, H., İleri, R., Çerezci, O. 1997. Nükleer Atıkların Meydana Getirdiği Çevre Sorunları Ve Bertaraf Edilmesinde Amerika Örneği, *Saü Fen Bilimleri Entitüsü Dergisi*, 2 (1997), 145-150.
- Yanikömer, N., Asal, S., Hacıyakupoğlu, S., Akyıl Erentürk, S. 2016. New Solidification Materials in Nuclear Waste Management, *International Journal Of Engineering Technologies IJET*. 2. 76. 10.19072/ijet.54627, 76-82.
- Yoshida Z., Johnson. SG., Kimura, T., Krsul, JR.. 2008. Neptunium, Morss LR, Edelstein NM, Fuger J. (eds), *Chemistry of Actinide and Transactinide Elements*, Springer, Dordrecht, 978-1-4020-3555- 5, 699-812.
- Weller, W.W., King, E.G. 1962. U.S. Dept. Of The Interior, Bureau Of Mines, Report Of Investigation, 6147, 6-7.
- Woodfield B.F., Boerio-Goates J, Shapiro JL, Putnam RL, Navrotsky A. J., 1999, Molar Heat Capacity And Thermodynamic Functions Of Zirconolite CaZr_2O_7 , *The Journal Of Chemical Thermodynamics*, 31 (2), 245-253.
- Wu, L., Schliesser, J., Woodfileld, B.F., Xu, H., Navrotsky, A. J Chem., 2016, Heat Capacities, Standard Entropies And Gibbs Energies Of Sr-, Rb- And Cs-Substituted Barium Aluminotitanate Hollandites, *The Journal Of Chemical Thermodynamics*, (93), 1-7.

ÖZGEÇMİŞ**KİŞİSEL BİLGİLER**

Adı Soyadı : Okan KÖSE