

**SUDAKİ URANYUMUN
BİYOTEKNOLOJİK ARITIMI**

**BIOTECHNOLOGIC REMEDIATION
OF URANIUM IN WATER**

GULZAT KERIMBAEVA

Prof. Dr. AYŞENUR UĞURLU
Tez Danışmanı

Hacettepe Üniversitesi
Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliğinin
Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı İçin Öngördüğü
DOKTORA TEZİ
olarak hazırlanmıştır

2018

GULZAT KERIMBAEVA'nın hazırladığı **''SUDAKİ URANYUMUN BİYOTEKNOLOJİK ARITIMI''** adlı bu çalışma aşağıdaki jüri tarafından **ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI'nda DOKTORA TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

Prof.Dr. Mehmet Yakup ARICA
Başkan



Prof.Dr. Ayşenur UĞURLU
(Danışman)



Prof.Dr. Zümriye AKSU



Prof.Dr. Beril Salman Akın



Yrd.Doç.Dr. Hatice ŞENGÜL



Bu tez Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü tarafından **DOKTORA TEZİ** olarak onaylanmıştır.

Prof. Dr. Menemşe GÜMÜŞDERELİOĞLU
Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

YAYINLAMA VE FİKRİ MÜLKİYET HAKLARI BEYANI

Enstitü tarafından oraylanan lisansüstü tezimin / raporunun tamamını veya herhangi bir kısmını, basılı (kağıt) ve elektronik formatta arşivleme ve aşağıda verilen koşullarla kullanıma ama iznini Hacettepe Üniversitesine verdiğimi bildiririm. Bu izinle Üniversiteye verilen kullanım hakları dışındaki tüm fikri mülkiyet haklarım bende kalacak, tezimin tamamının ya da bir bölümünün gelecekteki çalışmalarda (makale, kitap, lisans ve patent vb.) kullanım hakları bana ait olacaktır.

Tezin kendi orijinal çalışmam olduğunu, başkalarının haklarını ihlal etmediğimi ve tezimin tek yetkili sahibi olduğumu beyan ve taahhüt ederim. Tezimde yer alan telif hakkı bulunan ve sahiplerinden yazılı izin alınarak kullanılması zorunlu metinlerin yazılı izin alınarak kullandığımı ve istenildiğinde suretlerini Üniversiteye teslim etmeyi taahhüt ederim.

Yükseköğretim Kurulu tarafından yayınlanan “ Lisansüstü Tezlerin Elektronik Ortamda Toplanması, Düzenlenmesi ve Erişime Açılmasına İlişkin Yönerge” kapsamında tezim aşağıda belirtilen koşullar haricinde YÖK Ulusal Tez Merkezi / H. Ü. Kütüphaneleri Açık Erişim Sisteminde erişime açılır.

- o Enstitü / Fakülte yönetim kurulu kararı ile tezimin erişime açılması mezuniyet tarihimden itibaren 2 yıl ertelenmiştir. ⁽¹⁾
- o Enstitü / Fakülte yönetim kurulunun gerekçeli kararı ile tezimin erişime açılması mezuniyet tarihimden Ay ertelenmiştir. ⁽²⁾
- o Tezimle ilgili gizlilik kararı verilmiştir. ⁽³⁾

08 /08 /2018



Gulzat KERIMBAEVA

“Lisansüstü Tezlerin Elektronik Ortamda Toplanması, Düzenlenmesi ve Erişime Açılmasına İlişkin Yönerge”

- (1) Madde 6. 1. Lisansüstü teze ilgili patent başvurusu yapılması veya patent alma sürecinin devam etmesi durumunda, tez danışmanının önerisi ve enstitü anabilim dalının uygun görüşü üzerine enstitü veya fakülte yönetim kurulu iki yıl süre ile tezin erişime açılmasının ertelenmesine karar verebilir
- (2) Madde 6. 2. Yeni teknik, materyal ve metodların kullanıldığı, henüz makaleye dönüşmemiş veya patent gibi yöntemlerle korunmamış ve internetten paylaşılması durumunda 3. Şahıslara veya kurumlara haksız kazanç imkanı oluşturabilecek bilgi ve bulguları içeren tezler hakkında tez danışmanının önerisi ve enstitü anabilim dalının uygun görüşü üzerine enstitü ve fakülte yönetim kurulunun gerekçeli kararı ile altı ayı aşmamak üzere tezin erişime açılması engellenebilir.
- (3) Madde 7. 1. Ulusal çıkarları veya güvenliği ilgilendiren, emniyet, istihbarat, savunma ve güvenlik, sağlık vb. konulara ilişkin lisansüstü tezlerle ilgili gizlilik kararı, tezin yapıldığı kurum tarafından verilir*. Kurum ve kuruluşlarla yapılan işbirliği protokolü çerçevesinde hazırlanan lisansüstü tezlere ilişkin gizlilik kararı ise, ilgili kurum ve kuruluşun önerisi ile enstitü veya fakültenin uygun görüşü üzerine üniversite yönetim kurulu tarafından verilir. Gizlilik kararı verilen tezler Yükseköğretim Kuruluna bildirilir.
Madde 7. 2. Gizlilik kararı verilen tezler gizlilik süresince enstitü veya fakülte tarafından gizlilik kuralları çerçevesinde muhafaza edilir, gizlilik kararının kaldırılması halinde Tez Otomasyon Sistemine yüklenir.
* Tez danışmanının önerisi ve enstitü anabilim dalının uygun görüşü üzerine enstitü veya fakülte yönetim kurulu tarafından karar verilir.

ETİK

Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, tez yazım kurallarına uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada;

- Tez içindeki bütün bilgi ve belgeleri akademik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi,
- görsel, işitsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçları bilimsel ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu,
- başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda ilgili eserlere bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunduğumu,
- atıfta bulunduğum eserlerin tümünü kaynak olarak gösterdiğimi,
- kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapmadığımı,
- ve bu tezin herhangi bir bölümünü bu üniversite veya başka bir üniversitede başka bir tez çalışması olarak sunmadığımı

beyan ederim.

08.08/2018



Gulzat KERIMBAEVA

ÖZET

SUDAKİ URANYUMUN BİYOTEKNOLOJİK ARITIMI

Gulzat KERIMBAEVA

Doktora, Çevre Mühendisliği Bölümü

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Ayşenur UĞURLU

Haziran 2018, 223 sayfa

Bu çalışmada, insan ve çevre sağlığı açısından çok tehlikeli bir radyoaktif ve ağır metal olan uranyum ile kirlenmiş suların farklı biyoteknolojik yöntemlerle giderimi araştırılmıştır. İki bölüm olarak sürdürülen çalışmaların ilk kısmı bakteriler (karışık anaerobik/ sülfat indirgeyen) ile uranyum giderimi araştırılırken, ikinci kısımda mikroalglerle biyosorpsiyonu incelenmiştir.

U.D.K.M. (uranyum indirgeyen karışık mikroorganizmalar) ile sudaki uranyumun anaerobik ortamda giderimi için öncelikle uranyuma dayanıklı mikroorganizmalar, 1 yıla yakın sürede farklı uranyum konsantrasyonlu içeren besi ortamlarında yetiştirilerek mikroorganizmaların ortam koşullarına adaptasyonu sağlanmıştır. Sonrasında, elde edilen U.D.K.M. ile 3 farklı uranyum giderim deneyleri yapılmıştır. Birinci set deneylerde sudaki uranyumun giderimi pH 7’de ve üç farklı uranyum konsantrasyonlarıyla (5mg/L, 25mg/L ve 50mg/L) canlı ve öldürülmüş U.D.K.M. ile gerçekleştirilmiştir. Isıyla öldürülmüş U.D.K.M. olan örneklerde % 24 – 78 ve canlı U.D.K.M.’da ise % 40 – 79 uranyum giderimi elde edilmiştir. İkinci set deneylerde ise değişik ORP (100mV, 50mV, -50mV, -100mV) ve pH aralıklarında (4-10) anaerobik kesikli reaktör deneylerinde sudaki uranyumun (100mgU/L) giderimi gerçekleştirilmiştir. 3. günün sonrasında %78.1 ile % 96.3 arasında uranyum giderimi sağlanmıştır ve en yüksek giderim ORP -50mV ve pH 7’de gerçekleşmiştir. Üçüncü set deneylerde ise farklı uranyum konsantrasyonlarında ve ultra safsu ortamında uranyumun giderimi yapılmıştır. Bu deneyin sonucunda ise uranyumun giderimi %0.33 – 53 arasında olmuştur. Tüm deneyler dörtlü olarak tekrarlanmıştır.

Sudaki uranyumun S.İ.B. (sülfat indirgeyen bakteriler) ile farklı redoks potansiyel (50mV, 100mV, -50mV and -100mV) ve pH (4; 7;10) şartlarında giderim deneyleri anaerobik kesikli reaktörlerde yapılmıştır. Tüm reaktörlerde uranyumun giderimi 3-10 gün içerisinde gerçekleşmiştir. Sonuçta yüksek uranyum giderim yüzdeleri (%95.36 - %99.9) elde edilmiştir. En yüksek giderim negatif (-50mV ve -100mV) redoks potansiyellerinde olup uranyumun 100mg/L başlangıç konsantrasyonundan 0,777mg/L (-50mV için) ve 0,115mg/L (-100mV için) kadar düştüğü belirlenmiştir. Deneyler dörtlü olarak tekrarlanmıştır. U(VI)’un S.İ.B.

ile indirgenmesinin kinetik, termodinamik hesaplamaları ve VisualMINTEQ programının yardımıyla analizi yapılmıştır.

İkinci bölümde mikroalgler kullanarak uranyum giderimi araştırılmıştır. Bu çalışmalarda *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalg türleri kullanılmıştır.

Sudaki uranyumun, *Scenedesmus sp.* mikroalglerle giderimi araştırılmıştır. Bu çalışmalarda 5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L uranyum konsantrasyonları, farklı *Scenedesmus sp.* konsantrasyonlarında (41.54mg/L ve 115.94mg/L) ve canlı/ ısıyla öldürülmüş mikroalglerle yapılmıştır. Farklı fiziksel-kimyasal şartlar (pH, sıcaklık) altında ve 2 saatlik sürede gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlarla farklı parametrelerin biyosorpsiyona etkileri araştırılmıştır. Box-Behnken programının yardımıyla üç boyutlu yüzeysel grafikler yardımıyla optimal şartlar bulunmuştur. Box-Behnken yöntemine göre giderimin 90-100% aralığında olduğu optimum koşullar pH 6-8 arası, sıcaklık 45°C, canlı mikroalgler, süre 55-62,4 dakika olarak belirlenmiştir. Buna ek olarak, ANOVA istatistiksel hesaplama yardımıyla uranyumun giderimini etkileyen önemli parametreler olarak pH, uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve mikroalg konsantrasyonu olduğu belirlenmiştir.

Chlorella sp. ile yapılan çalışmalarda iki farklı mikroalg konsantrasyonunda (71.61mg/L ve 282.42mg/L) uranyumun giderimi araştırılmıştır. Uranyumun giderimini etkileyen en önemli parametreler pH, uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve zaman olarak belirlenmiştir. Optimal şartlarda (pH 6-8 arası, sıcaklık 45°C, canlı mikroalgler, süre 55-62,4 dakika) %95 üzeri giderim elde edilmiştir.

Anaerobik bakterilerle uranyumun indirgenmesinin bazı çalışmalarda belirtildiği gibi 'Cytochrome C' proteini ile gerçekleşip gerçekleşmediğini belirlemek amacıyla kesikli reaktörlerde sudaki uranyumun bu protein ile giderimi için öncelikle laboratuvar şartlarında ekmek mayasından bu proteinin sentezi yapılmıştır. Deney sırasında indirgenmiş ve oksitlenmiş 'Cytochrome C'nin konsantrasyon değişimi her gün ölçülmüştür. Sonuçta 'Cytochrome C' proteininin oksitlenme derecesinin artmasının, indirgenme derecesinin azalmasıyla hemen hemen aynı olduğu gözlenmiştir. Sonuçlar incelendiğinde, uranyumun indirgenmesi 'Cytochrom C'nin oksitlenmesiyle gerçekleştiğini, yani elektronların proteinden uranyuma aktarıldığı sonucuna varılmıştır.

Anahtar kelimeler: Uranyumunbiyoremediyasyonu, uranyuma dayanıklı karışık mikroorganizmalar (U.D.K.M.), Sülfat İndirgeyen Bakteriler (S.İ.B.), anaerobik ve aerobik kesikli reaktörler, *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalgleri

ABSTRACT

BIOTECHNOLOGIC REMEDIATION OF URANIUM IN WATER

Gulzat KERIMBAEVA

Doctor of Philosophy, Department of Environmental Engineering

Supervisor: Prof. Dr. Ayşenur UĞURLU

June 2018, 223 pages

In the current work, the remediation of uranium contaminated water, which is a very dangerous radioactive and heavy metal in terms of human and environmental health, was investigated by different biotechnological methods. The first part of the studies carried out as two sections investigated the uranium removal with bacteria (mixed anaerobic / sulphate reducing), while biosorption with microalgae was investigated in the second part.

Prior to making the uranium removal in water with URMM (uranium resistant mixed microorganisms) in anaerobic conditions, uranium-resistant microorganisms was obtained by growing in the medium containing different uranium concentrations and making several transfers to the new medium containing uranium, in approximately 1 year period. The 3 different uranium removal experiments were performed by URMM. In the first experiment the removal of uranium in water was conducted at pH 7 and with low uranium concentrations (5mg/L, 25mg/L, 50mg/L) with live and heat killed URMM. In the samples with the heat killed URMM uranium removal of 24-78% and with the living URMM 40-79% have been obtained. In a second experiment uranium (100 mg/L) removal anaerobic Batch experiments in water in different ORP (100mV, 50mV, -50mv, -100mv) and pH values (4-10) were held. As a result, 78.1% to 96.3% uranium removal were obtained in 3 days. Most removal was obtained at -50 ORP and pH 7. In the third experiment was tried the removal of different uranium concentrations and in ultrapure water. As a result of this experiments, the uranium removal were between 0.33 - 53%. All the experiments were repeated 4 times.

The uranium removal experiments by SRB (sulfate reducing bacteria) at different redox potential (50mV, 100mV, -50mv and -100mv) and pH (4; 7; 10) conditions were performed in anaerobic Batch reactors. It took 3-10 days for uranium removal in all reactors. The high uranium removal percentages of 95.36% to 99.9% have been achieved. The highest removal was in the negative redox potentials (-50mv and -100mv). Here the uranium concentration decreased from initial 100 mg/L to 0,777mg/L (for -50mv) and 0,115mg L (for -100mv). The experiments were repeated 4 times. The U (VI) reducing the rate with SRB determination, thermodynamic and visualMINTEQ program calculations were made and the results were analyzed.

In the second part, uranium removal was investigated by using microalgae. In these studies, *Scenedesmus sp.* and *Chlorella sp.* microalgae species were used.

Uranium removal from water with *Scenedesmus sp.* microalgae has been investigated. The uranium concentrations of 5mg/L, 10mg/L, 15mg/L and different microalgae concentrations (41.54 mg / L and 115.94 mg / L) were used in the experiments. The uranium removal in the water was carried out under different physical-chemical conditions (pH, temperature) and for 2 hours. The obtained results were analyzed by plotting the adsorption effects of different parameters. Also the three-dimensional graphs were analyzed with the help of Box-Behnken program and the optimal conditions of the variable parameters were found. Optimal conditions were as follows: pH 6-8, temperature 45°C, algae alive, high algae concentration, duration 55-62,4 minutes. When such optimal conditions are met, the yield is as high as 90-100%. With the help of statistical calculation ANOVA it also revealed that pH, the first concentration of uranium and the concentration of algae, are important parameters affecting the removal of uranium.

Studies with *Chlorella* have investigated uranium removal in two different microalgae concentrations (71.61 mg / L and 282.42 mg / L). Here too, the experiments with *Chlorella sp.* microalgae have been carried out in the same way as with *Scenedesmus sp.* microalgae. Here, pH, the initial concentration of uranium and the duration were determined as the most important parameters affecting the removal of uranium. Optimal conditions were the same as those in the experiments with *Scenedesmus sp.* microalgae. When optimal conditions were met, it was gotten over 95% of uranium removal.

In order to determine whether or not the reduction of uranium with anaerobic bacteria has been accomplished with 'Cytochrome C' protein as mentioned in some studies, this protein was firstly synthesized from bread yeast in laboratory conditions for the removal of uranium in the Batch reactors by this protein. The concentration changes of the reduced and oxidized 'Cytochrome C' during the experiments were measured daily. As a result, it was observed that the increase of the degree of oxidation of 'Cytochrome C' protein was almost the same with the decrease of the degree of its reduction. Thus, the reduction of uranium is accomplished by the oxidation of *Cytochrome C*, which is the result of electrons transferring from the protein to uranium.

Key words: Uranium bioremediation, uranium-resistant mixed microorganisms (URMM), Sulfate Reducing Bacteria (SRB), anaerobic and aerobic Batch reactors, *Scenedesmus sp.* and *Chlorella sp.* microalgae.

TEŞEKKÜRLER

Bu tezi, bilime olan ilk sevgimin doğmasında büyük katkısı olan en sevgili, en kıymetli **rahmetli anneannem Burulcha DJUNUŞALİYEVA'ya** adamak ve kendisine sonsuz şükranlarımı sunmak istiyorum.

Bu çalışmanın gerçekleştirilmesinde, değerli bilgilerini benimle paylaşan, kendisine ne zaman danışsam bana kıymetli zamanını ayırıp sabırla ve büyük bir ilgiyle bana faydalı olabilmek için elinden gelenden fazlasını sunan, laboratuvar çalışmalarımın maddi ve her türlü desteklerini de sağlayan, her sorun yaşadığımda yanına çekinmeden gidebildiğim, güler yüzünü ve samimiyetini benden esirgemeyen ve gelecekteki mesleki hayatımda da bana verdiği değerli bilgilerden faydalanacağımı düşündüğüm kıymetli ve danışman hoca statüsünü hakkıyla yerine getiren **saygıdeğer hocam Prof. Dr. Ayşenur UĞURLU'ya** teşekkürü bir borç biliyor ve şükranlarımı sunuyorum.

Yine çalışmamda eksiklerim ve hatalarımı görüp düzeltmemde değerli katkılarını sağlayan, bilgi ve deneyimlerini benden esirgemeyen ve değerli zamanlarını bana ayıran tezimin jüri üyeleri olan **saygıdeğer hocalarım Prof Dr. Zümriye AKSU ve Prof. Dr. Mehmet Yakup ARICA'ya** sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Teşekkürlerin az kalacağı diğer üniversite hocalarımın da bana Hacettepe üniversitesinde doktora yapma sürem boyunca kazandırdıkları her şey için ve beni gelecekte söz sahibi yapacak bilgilerle donattıkları için hepsine teker teker teşekkürlerimi sunuyorum. Ve son olarak çalışmamda desteğini ve bana olan güvenini benden esirgemeyen ve beni bu günlere sevgi ve saygı kelimelerinin anlamlarını bilecek şekilde yetiştirerek getiren ve benden hiçbir zaman desteğini esirgemeyen bu hayattaki en büyük şansım olan aileme ve de arkadaşlarıma sonsuz teşekkürler.

İÇİNDEKİLER

Sayfa

KABUL VE ONAY.	Error! Bookmark not defined.
YAYINLAMA VE FİKRİ MÜLKİYET HAKLARI BEYANI	Error! Bookmark not defined.
ETİK	Error! Bookmark not defined.
ÖZET	iii
ABSTRACT	vi
TEŞEKKÜRLER.....	viii
İÇİNDEKİLER	ix
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	xiii
ŞEKİLLER DİZİNİ	xv
SİMGELER VE KISALTMALAR	xxiii
1. GİRİŞ	1
2. LİTERATÜR ÖZETİ.....	3
2.1. Suların Uranyumla Kirlenme Derecesi.....	3
2.2. Uranyumun Sağlığa ve Ekosisteme Olan Tehlikeli Etkileri.....	5
2.2.1. Sağlığa Olan Toksik Etkileri.....	5
2.2.2. Sağlığa Karşı Radyoaktif Etkileri	5
2.2.2.1. Uranyumun Radyoaktif Tehlike Derecesi	5
2.2.2.2. Düşük Dozdaki Radyasyonun Tehlikeliliği	11
2.3. Sudaki Uranyumun Biyoteknolojik Arıtma Yöntemleri.....	14
3. AMAÇ VE KAPSAM	21
4. MATERYAL VE METODLAR.....	23
4.1. U.D.K.M. ile Yapılan Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metodları	23
4.1.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroorganizma Kaynağı	23
4.1.2. Uranyuma Dayanıklı Mikroorganizmaların Elde Edilmesi ve Çoğaltılması	23
4.1.3. Stok Çözeltilerinin Hazırlanması	25
4.1.4. Analitik Yöntemler	26
4.1.4.1. Çözeltideki Bakterilerin Kütlesinin Ölçülmesi.....	26
4.1.4.2. Arsenazo Yöntemiyle Uranyum Konsantrasyonunun Ölçülmesi	27
4.1.4.3. Sülfat Konsantrasyonunun Ölçülmesi	27

4.1.5. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemleri.....	27
4.1.5.1. Termodinamik Hesaplamalar İçin	27
4.1.5.2. Uranyum (VI)'nın İndirgenme Hızının Hesaplanması	28
4.2. S.İ.B. ile Yapılan Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metodları.....	29
4.2.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroorganizma Kaynağı	29
4.2.2. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu	29
4.2.3. Stok Çözeltilerin Hazırlanması	32
4.2.4. Analitik Yöntemler	32
4.2.4.1. Hidrojen Sülfür Gazının Ölçülmesi	32
4.3. Algler ile Yapılan Aerobik Deneylerde Uygulanan Materyal ve Metodlar.....	33
4.3.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroalgler.....	33
4.3.2. Stok Çözeltilerinin Hazırlanması	33
4.3.3. Mikroalglerin Çoğaltılması	33
4.3.4. Analitik Yöntemler	35
4.3.4.1. Klorofil-a Ölçümü.....	35
4.3.4.2. Uranyum (VI) Konsantrasyonunun Ölçülmesi.....	35
4.3.5. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemler.....	35
4.3.5.1. Adsorpsiyon İzoterminin Hesaplamaları	35
4.3.5.2. Adsorpsiyon Termodinamiğinin Hesaplanması.....	39
4.3.5.3. Adsorpsiyon Kinetiği Hesaplamaları.....	39
4.4. 'Cytochrome C ₃ ' ile Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metotları	40
4.4.1. Kullanılan Kimyasallar Kaynağı	40
4.4.2. 'Cytochrome C ₃ ' Proteininin Sentezi.....	40
4.4.3. Analitik Yöntemler	41
4.4.3.1. U(VI) Konsantrasyonunun Ölçülmesi	41
4.4.3.2. İndirgenmiş ve Oksitlenmiş 'Cytochrome C ₃ ' Konsantrasyonlarının Ölçülmesi	41
4.4.4. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemler.....	41
5. KESİKLİ REAKTÖR DENEYLERİNİN YAPILMASI.....	42
5.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Mikroorganizmalarla Anaerobik Deneyler	42
5.1.1. Birinci Set: 5-50mg/L Uranyum İçeren Suların Standart Şartlarda Giderilmesi..	42
5.1.2. İkinci Set: 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı pH ve ORP Şartlarında Giderilmesi.....	44

5.1.3. Üçüncü Set: Uranyumun Ultrasafsu Ortamından U.D.K.M. ile Giderimi	45
5.2. Sülfat İndirgeyen Bakteriler ile Anaerobik Deneyler	46
5.3. <i>Scenedesmus</i> sp. Mikroalgleriyle Aerobik Deneyler	47
5.4. <i>Chlorella</i> sp. Mikroalgleriyle ile Aerobik Deneyler.....	48
5.5. Sudaki Uranyumun ‘Cytochrome C’ Proteinini ile Gideriminin Anaerobik Deneylerinin Yapılması	49
6. SONUÇ VE TARTIŞMALAR	50
6.1. U.D.K.M. ile Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları	50
6.1.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin (U.D.K.M.) Elde Edilmesi.....	52
6.1.2. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin (U.D.K.M.) Türlerinin Belirlenmesi...	56
6.1.3. Sudaki Uranyumun U.D.K.M. ile Giderim Deneylerinin Sonuçları	59
6.1.3.1. Birinci Set: 5-50mg/L Uranyum İçeren Suların Standart Şartlarda Giderilmesi	59
6.1.3.2. İkinci Set: 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı pH ve ORP Şartlarında Giderilmesi.....	60
6.1.3.3. Redoks Potansiyelin Etkisi	63
6.1.4. Üçüncü Set: Ultra Safsu Ortamında Uranyumun U.D.K.M. ile Giderilmesi	64
6.1.5. Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi	66
6.1.6. Uranyum (VI)’nın U.D.K.M. ile İndirgenme Hızının Hesaplanması.....	66
6.1.7. Termodinamik Hesaplamalar.....	71
6.1.8. VisualMINTEQ Programı ile Hesaplamalar.....	74
6.2. S.İ.B. ile Anaerobik Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları	74
6.2.1. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu	76
6.2.2. Sudaki Uranyumun S.İ.B. ile Giderimi Anaerobik Deneylerinin Sonuçları	78
6.2.3. Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi.....	82
6.2.4. Uranyum (VI)’nın S.İ.B. ile İndirgenme Hızının Hesaplanması	82
6.2.5. Termodinamik Hesaplamalar	88
6.2.6. VisualMINTEQ Programı ile Hesaplamalar	90
6.3. <i>Scenedesmus</i> sp. Mikroalgleriyle Deneylerinin Sonuç ve Tartışmaları	90
6.3.1. Temas Süresinin Etkisi	94
6.3.2. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun Etkisi	95
6.3.3. Başlangıç pH Değerinin Etkisi	100
6.3.4. Sıcaklığın Etkisi.....	103

6.3.6. Uranyum Adsorpsiyonunun Yanıt Yüzey Metodu (YYM) ile Optimizasyonu...	111
6.3.6.1. Model Oluşturulması ve İstatistiksel Analiz.....	111
6.3.6.2. YYM Optimizasyon Sonuç Analizleri.....	112
6.3.7. Adsorpsiyon İzoterminin Hesaplama Sonuçları	120
6.3.7.2. Freundlich İzotermi Hesaplama Sonuçları	124
6.3.8. Termodinamik Hesaplamaların Sonuçları	128
6.3.9. <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalglerinin Değişiminin Mikroskop Görüntüleri	131
6.4. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Uranyumun Gideriminin Aerobik Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları.....	133
6.4.1. Temas Süresinin Etkisi	135
6.4.2. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun Etkisi	137
6.4.3. Başlangıç pH Değerinin Etkisi	142
6.4.4. Sıcaklığın Etkisi.....	145
6.4.5. Mikroalg Konsantrasyonunun Etkisi	150
6.4.6. Uranyumun Adsorpsiyonunun Yanıt Yüzey Metodu (YYM) ile Optimizasyonu	152
6.4.6.1. Model Oluşturulması ve İstatistiksel Analiz.....	152
6.4.6.2. YYM Optimizasyon Sonuç Analizleri.....	153
6.4.7. Adsorpsiyon İzoterminin Hesaplama Sonuçları	161
6.4.7.1. Langmuir İzotermi Hesaplama Sonuçları	161
6.4.7.2. Freundlich İzotermi Hesaplama Sonuçları	165
6.4.8. Termodinamik Hesaplamalar.....	169
6.4.9. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalglerin Deneylerde Mikroskop Görüntüleri.....	172
6.5. ‘Cytochrome C ₃ ’ Proteini ile Uranyum Giderimi	174
6.5.1. U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi	175
6.5.2. İndirgenmiş ve Oksitlenmiş ‘Cytochrome C ₃ ’ Proteininin Konsantrasyonlarının Belirlenmesi	175
7. GENEL SONUÇ VE ÖNERİLER.....	179
7.1. Anerobik ve Aerobik Kesikli Reaktör Deneylerinin Sonuçlarının Kıyaslanması .	179
7.2. Öneriler	188
KAYNAKLAR.....	202
ÖZGEÇMİŞ.....	223

ÇİZELGELER DİZİNİ

Sayfa

Çizelge 2.1. Biyosferdeki Radyoaktif Elementler Ve Onların Kaynağı [7].....	6
Çizelge 2.2. ABD'nin Nükleer Elektrik Santrallerinin Sağlık Üzerindeki Etkileri [13]	8
Çizelge 2.3."Rancho Seco" N.E.S.'İn Çalıştırılmasından Önce Ve Sonraki Kadınların Meme Kanserinden 5 Yıllık Mortalite Sayısı (100 Bin Kişi Başına), Yerel Kolejlere Kayıt, 2005 [14].	9
Çizelge 2.4. Almanya'da Nükleer Enerji Endüstrisinin Halk Sağlığına Olan Etkisi.....	9
Çizelge 2.5. Az Dozdaki Radyasyonun Sağlığa Olan Etkileri [13].....	12
Çizelge 4.1. 'Complex Media' Besin Ortamı	23
Çizelge 4.2. Sülfat İndirgeyen Bakteri Kültürleri İçin Besin Ortamları, g/L	30
Konsantrasyonlarının (nm, mg/L ve %) Değişimi.....	192
Çizelge 6.1. U.D.K.M. ile Birinci Set Deneylerde Uranyumun Değişimi, mg/L, %	59
Çizelge 6.2. U.D.K.M. ile İkinci Set: Uranyumun Değişimi, mg/L, % (Deneyler Dörder Kere Tekrarlandığı İçin Sonuçların Ortalama Değerleri ve Standart Sapmaları Verilmiştir)	60
Çizelge 6.3. ANOVA Statistlik Analiz Sonuçları (Uranyum Giderim Yüzdesi)	63
Çizelge 6.4. Ultra Safsu Ortamında Uranyumun U.D.K.M. ile Gideriminde Uranyum Konsantrasyonunun Değişimi, mg/L.....	64
Çizelge 6.5. Uranyumun U.D.K.M. ile İndirgenmesinin Kinetik ve Termodinamik Hesaplama Sonuçları	68
Çizelge 6.6. Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi (mg/L ve %).....	78
Çizelge 6.7. U(VI)'nın S.İ.B. ile İndirgenmesinin Kinetik ve Termodinamik Hesaplama Sonuçları.....	83
Çizelge 6.8. <i>Scenedesmus sp. sp.</i> Mikroalgleriyle Uranyumun Konsantrasyonlarının Ce (mg/L), Giderim Yüzdelerinin (%) ve q_e (mg/g) Değerlerinin Değişimi: a) Sıcaklığa, b) pH'a Göre	93
Çizelge 6.9. ANOVA Model Analizi (<i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle).....	112
Çizelge 6.10. <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle Deneylerde q_e (mg/g) ve <u>Lagmuir İzoterm Sabitleri</u> : a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi	121

Çizelge 6.11. <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle Deneylerde <u>Freunlich İzoterm Sabitleri</u> (Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L): a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi	125
Çizelge 6.12. <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle Termodinamik Hesaplama Sonuçları (pH 7, Süre 120 Dakika, Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L)	129
Çizelge 6.13. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Uranyumun Konsantrasyonlarının C_e (mg/L), Giderim Yüzdelерinin (%) ve q_e (mg/g) Değerinin Değişimi: a) Sıcaklığa, b) pH'a Göre	134
Çizelge 6.14. ANOVA Model Analizi (<i>Chlorella sp.</i> ise 1. Set Deneyler).....	153
Çizelge 6.15. Deneylerde <i>Chlorella sp.</i> Mikroalglerinin q_e (mg/g) ve <u>Lagmuir İzoterm Sabitleri</u> : a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi.....	162
Çizelge 6.16. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Deneylerde <u>Freunlich İzoterm Sabitleri</u> (Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L): a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi	166
Çizelge 6.17. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Deneylerde Termodinamik Hesaplama Sonuçları (Süre 120 Dakika, Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L).....	170
Çizelge 6. 18. U(VI) Konsantrasyonunun 'Cytochrome C_3 ' ile Deneylerde Değişimi (mg/L)	175
Çizelge 6.19. 'Cytochrome C_3 ' Proteininin Konsantrasyonun Belirlenmesi	175
Çizelge 6.20. 'Cytochrome C_3 ' Proteininin Konsantrasyonunun Hesaplanması, mg/L....	176
Çizelge 7.1. Sudaki Uranyumun Gideriminde Kullanılan Biyoteknolojik Yöntemlerin Kıyaslanması ve Avantajlı / Dezavantajlı Yanların	185

ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa

Şekil 2.1. Uranyumun Nötronla Bombardıman Edilmesi Sonucu Radyoaktif Parçalanma Zinciri	6
Şekil 2.2. Radyasyona Maruziyet Süresine Göre Kansere Türlerinin Sıklığı	7
Şekil 2.3. İyonlaştırıcı Parçacıkların Biyolojik Etkilerinin Başlıca Türleri: 1) Canlı Hücreler Üzerinde Doğrudan Fiziksel Etkisi, 2) Serbest Radikallerin Oluşumuna O ₂ - İle Canlı Hücreler Üzerinde Dolaylı Etkileri (Kimyasal) [17].	11
Şekil 2.4. A.E.S.'lerin Canlı Hayata Olan Etkisi: 1) 'İsviçre'deki 'Rötental' A.E.S.'in Etrafındaki Mutasyona Uğrayan Böcek, 2) 'Laybstadt' A.E.S.'nin Etrafındaki Büyümüş Meşenin Mutasyona Uğramış Yaprakları.	13
Şekil 2.5. Uranyumun Biyoteknolojik Arıtma Yöntemleri [48].	15
Şekil 4.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin İzolasyonu: a) Çeşitli Uranyum Konsantrasyonlarında (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L, 1000mg/L) ve Farklı pH Değerlerinde (4, 7 ve 10) Mikroorganizmaların Yetiştirilmesi, b) U.D.K.M.'lerin Reaktörlerde Kullanılmak Amaçlı Uranyum İçermeyen Besin Ortamına Aktarılması ve Anaerobik Şart Sağlamak İçin Azot Gazı Verilmesi, c) U.D.K.M.'ların İnkübatörde 31.1°C'de Çoğaltılması, d) U.D.K.M.'ların İzolasyonu ve Çoğaltılması Esnalarında 600nm Dalga Boyunda Sürekli Spektrofotometrik Ölçümlerin Yapılması.	24
Şekil 4.3. 'Kompleks Media'da Çoğaltılmış U.D.K.M.'ların Kütlesinin Belirlenmesi	26
Şekil 4.4. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu: a) 'Hungate' Yöntemiyle Anaerobik Şartın Sağlanması, b) S.İ.B. Sürekli Karıştırılarak Çoğaltılması, c) Yeni Besin Ortamına Aktarılması, d) S.İ.B. İnkübasyonu	31
Şekil 4.5. S.İ.B.'lerin Petri Şişelerinde Saflaştırılması: a) 1. Aktarma Sonucu Bakterilerin Büyümesi, b) En Son Aktarma Sonucu, c) Sade Agar İçeren Ortamda Bakterilerin Büyümemesi	32
Şekil 4.6. <i>Scenedesmus sp.</i> 'in Çoğaltılması	34
Şekil 4.7. Langmuir Adsorbsiyon İzoterminin Grafiksel İfadesi	37
Şekil 4.8. Freundlich İzoterminin Lineerize Şekli	39
Şekil 4.9. 'Cytochrome C' Proteininin Sentezi	41
Şekil 5.1. Deney Çözeltilerinin Hazırlanması: a) ve b) Oksijen İndikatörü Olarak Metilen Blue Eklenen Bmm Çözeltilisine Azot Gazı ve Sodyum Sülfat Verilerek Oksijensiz	

Anaerobik Çözelti Elde Edilmesi (a) Oksijenli, b) Oksijensiz), c) ve d) Hazırlanan Anaerobik Çözeltileri Serum Şişelerinden Kesikli Reaktör Olarak Kullanılacak Olan 250ml Steril ve Havasız Vakum Şişelerine Şırınga İle Aktarılması (c) Serum Şişelerindeki Anaerobik Bmm Çözeltisi, d) Vakum Şişesine Bmm Çözeltisinin Aktarılması).....	43
Şekil 5.2. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültür İle Sudaki Uranyumun Giderilmesinin Kesikli Reaktör Deneyi: a) Bmm, Elektron Verici (E.V.) ve Farklı Konsantrasyonlarda (5mg/L, 25mg/L, 50mg/L) Uranyum İçeren Çözeltiler, b) BMM+E.V.+U(5, 25,50) + Isıyla Öldürülmüş U.D.K.M. Çözeltileri, c) BMM+E.V.+U(5, 25, 50) + Canlı U.D.K.M. İçeren Çözeltiler, d) 120rpm Hızında Labcon Karıştırıcısında Sürekli Karıştırılarak Deneyin Yapılması, e) ‘Arsenazo’ Yöntemiyle Uranyum Konsantrasyonunun Spektrofotometrede Ölçülmesi.....	43
Şekil 5.3. Farklı ORP (100mV, 50mV, -50mV, -100mV) ve pH (4, 7, 10) Değerinde Anaerobik Kesikli Reaktör Deney Çözeltisi Hazırlaması: a) ORP ve pH Ayarlaması, b) ‘Metilen Blue’ Eklenmesi, c) Su Banyosu İçindeyken Azot Gazı Verilmesi	44
Şekil 5.4. 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı ORP (100mV, 50mV , -50mV, -100mV) ve pH (4, 7, 10) Değerlerinde Giderilmesinin Anaerobik Kesikli Reaktör Deneyinin Yapılması.....	45
Şekil 5.5. Sudaki Uranyumun S.İ.B. İle Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Reaktörlerinde S.İ.B. Çoğaldıkça Çözeltinin Kararması	47
Şekil 5.6. <i>Scenedesmus</i> sp. İle Farklı Koşullarda Sudaki Uranyumun Gideriminin Aerobik Kesikli Reaktör Deneyleri	48
Şekil 5.8. Sudaki Uranyumun ‘Cytochrome C’ Proteini İle Gideriminin Anaerobik Kesikli Reaktör Deneyi.....	49
Şekil 6.1. Doğal Sularda Farklı ORP ve pH’da U(VI)’nın Farklı Kompleks Bileşenleri [101].	51
Şekil 6.2. Birinci İnkübasyon Sırasında Farklı Uranyum Konsantrasyonları (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L, 1000mg/L) ve Farklı pH Değerlerinde Büyüyen Mikroorganizmaların Kütlesinin Değişimi, mg: A) 50mgU/L, B) 100mgU/L, C) 500mgU/L Ve 1000mgU/L İçin.	52
Şekil 6.3. İkinci İnkübasyon Sırasında Farklı Uranyum Konsantrasyonları (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L) ve Farklı pH Değerlerinde Çoğalan	

Mikroorganizmaların Kütlesinin Değişimi, mg: A) 50mgU/L, B) 100mgU/L, C) 500mgU/L Ve 1000mgU/L İçin.	53
Şekil 6.4. ‘Complex Media’, Agar Ve Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Petrilerde Daha Önce İzole Edilmiş U.D.K.M’ların Çoğalması: a) 50mg/L, b) 100mg/L, c) 500mg/L, d) 1000mg/L Uranyum Konsantrasyonunda, e) pH 4’te, f) pH 10’da, g) Daha Önce 50mg/L Uranyum Ortamında Çoğaltılmış U.D.K.M.’Lar Sade Agar Ortamında, h) 100mgU/L’da Çoğaltılmış Sade Agar Ortamında, k) 500mg/L’da Çoğaltılmış Sade Agar Ortamında, l) 1000mgU/L’da Çoğaltılmış U.D.K.M.’Lar Sade Agar Ortamında, m) 50mgU/L’da Çoğaltılmış U.D.K.M.’ların 500mg/L U + ‘Complex Media’ + Agar Ortamında Çoğalması.	55
Şekil 6.5. Kesikli Reaktör Deney İçin Seçilmiş Olan Büyük Koloninin Saflaştırılması: a) Seçilen Büyük Koloni, b) Büyük Koloninin Birinci Aktarması, c) İkinci Aktarmadan Sonra, d) Üçüncü Aktarmadan Sonra, e) Dördüncü Aktarmadan Sonra, f) Beşinci Aktarmadan Sonra, g) Altıncı Aktarmadan Sonra, h) Yedinci Aktarmadan Sonra. ...	56
Şekil 6.6. Deney İçin Seçilmiş Küçük Koloninin Saflaştırılması: a) Seçilen Küçük Koloni, b) Küçük Koloninin Birinci Aktarması, c) İkinci Aktarmadan Sonra, d) Üçüncü Aktarmadan Sonra, e) Dördüncü Aktarmadan Sonra, f) Beşinci Aktarmadan Sonra, g) Altıncı Aktarmadan Sonra, h) Yedinci Aktarmadan Sonra.	57
Şekil 6.7. Büyük Koloninin Gram Boyama Sonucu Mikroskop Altındaki Görüntüsü	58
Sonuçta Görüldüğü Gibi Büyük Kolonideki Kültürlerin Gram Pozitif Basil Türlerinden Olduğu Belirlenmiştir. Küçük Kolonidekilerin İse Gram Pozitif Koklar Olduğu Görülmektedir.	
Şekil 6.8. Küçük Koloninin Gram Boyama Sonucu Mikroskopta Görüntüsü	58
Şekil 6.9. U.D.K.M. İle Uranyum Giderim Kesikli Reaktör Deneylerinde U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi ve Giderim Yüzdesi, %	62
Şekil 6.10. U.D.K.M. İle Sudaki Uranyumun Farklı ORP Değerlerinde Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi (Deneyler Dörder Kere Tekrarlandığı İçin Ortalama Değerlerine Göre Standart Sapmaları Verilmiştir)	66
Şekil 6.11. Farklı ORP Değerlerinde Uranyum Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin K, U(VI) Konsantrasyonunun Logaritmasına Karşı Değişimi.	68
Şekil 6.12. Farklı Orp Değerlerinde Uranyumun U.D.K.M. İle Giderim Kesikli Reaktörlerinde: a) Deneysel Hız Sabitinin Bulunması İçin $\ln(U/U_0)$ ’ Nin Zamana	

Karşı Grafiği, b) Uranyumun İndirgeme Hız Sabitinin K, U(VI) Konsantrasyonuna Karşı Değişimi.....	69
Şekil 6.13. Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun U.D.K.M. İle Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin Effektif Redoks Potansiyele Göre Değişimi	70
Şekil 6.14. Uranyumun U.D.K.M. İle İndirgenme Hız Sabitinin Hesaplanan ve Deneysel Değerleri Arasındaki Bağlantı	71
Şekil 6.15. a) Serbest Enerjinin Değişmesi, b) Uranyumun U.D.K.M. İle İndirgenme Reaksiyon Hız Sabitinin Serbest Enerjiye Göre Değişimi	73
Şekil 6.16. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin ‘Postgate’ Ortamında Büyümesi, mg/L.....	77
Şekil 6.17. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin ‘Postgate’ Ortamında Büyümesi Sırasında Hidrojen Sülfür (H ₂ S) Gazının Oluşması, mg/L	77
Şekil 6. 18. Uranyumun S.İ.B. İle Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi.....	80
Şekil 6.19. Uranyumun S.İ.B. İle Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi.....	81
Şekil 6.20. Uranyumun S.İ.B. İle Giderim Deneylerinde Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi, mg/L.....	82
Şekil 6.21. Uranyumun S.İ.B. İle İndirgenme Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun İndirgenme Hız Sabitinin: a) Uranyumun Konsantrasyonunun Logaritmasına, b) Uranyum Konsantrasyonuna Göre Değişimi	85
Şekil 6.22. Uranyumun S.İ.B. İle İndirgenmesinin Potansiyele Karşı Değişimi	86
Şekil 6.23. Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun S.İ.B. İle Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin K: a) Deneysel Değerinin Bulunması	87
Şekil 6.24. Farklı ORP Değerlerinde S.İ.B. İle U(VI) İndirgeme Kesikli Reaktör Deneylerinde Reaksiyon Serbest Enerjisinin: a) Zamana, b) Reaksiyon Hızının Sabitine Göre Değişimi	89
Şekil 6.25. Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> Algleri İle Gideriminde Temas Süresinin: a) Adsorplanmaya, b) Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi.....	94
Şekil 6.26. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun: a) <i>Scenedesmus sp.</i> Algleri Üzerine Adsorplanmasına, b) Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, 41.54mg/L Alg, Canlı Alg, 25°C).....	96

Şekil 6.27. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun 41.54mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60 Dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9	98
Şekil 6.28. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun 115.94mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9	99
Şekil 6.31. Farklı pH Değerinin Uranyumun <i>Scenedesmus sp. sp.</i> mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi: (25°C, Canlı Alg, C ₀ =15mgU/L): a) 41.54mg/L ve b) 115.94mg/L mikroalg İçeren Reaktörlerde	101
Şekil 6.30. Başlangıç pH'ın Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> Algleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 Dakika): a), b) ve c) 41.54mg/L Mikroalg İle Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), d) ve f) İse 115.94mg/L Mikroalg İle.....	102
Şekil 6.32. Sıcaklığın Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, Canlı mikroalg, C ₀ =15mgU/L): a) 41.54mg/L, b) 115.94mg/L Mikroalg İçeren Reaktörler İçin	105
Şekil 6.33. Sıcaklığın Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 Dakika): a), b) ve c) 41.54mg/L Alg İle Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) İse 115.94mg/L mikroalg İle	108
Şekil 6.34. Uranyumun a) <i>Scenedesmus sp.</i> mikroalgleri Üzerine Adsorpsiyonunun Değişen Adsorban Miktarı Değerlerine Göre, b) Giderim Yüzdesine Göre Grafikleri (25°C, Ph 7, 15mg/L Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonu ve Canlı Alg Türü)	110
Şekil 6.35. pH-Sıcaklık Parametrelerin Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> İle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerini Gösteren 3D-Grafikleri: a) Optimal Şartlar, b) Optimal Şart Ama U(VI) 5mg/L	115
Şekil 6.36. pH-Canlı Yada Ölü (Mikroalg) Parametrelerin U(VI)'un <i>Scenedesmus sp.</i> İle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-Grafikleri	116
Şekil 6.37. U(VI) – pH / U(VI) - Mikroalg Konsantrasyonu / U(VI) - Sıcaklık Parametrelerin Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> İle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerini Gösteren 3D-Grafikler.....	117
Şekil 6.38. U(VI) Konsantrasyonu - Süre, Sıcaklık - mikroalg Konsantrasyonu, Sıcaklık-Canlı / Ölü, Canlı / Ölü - mikroalg Konsantrasyonu Grafikleri	119

Şekil 6.39. <i>Scenedesmus sp.</i> mikroalgleriyle Lagmiur İzoterm Grafikleri: a) 41.54mg/L ve b) 115.94mg/L Mikroalg İçeren Farklı Sıcaklıklarda, c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Deneyler İçin	123
Şekil 6.40. <i>Scenedesmus sp.</i> mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde Freundlich İzoterm Eğrileri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklarda, c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Sırasıyla 41.54mg/L Mikroalg ve 115.94mg/L Mikroalg İle	127
Şekil 6.41. Uranyumun <i>Scenedesmus sp.</i> Algleriyle Biyosorpsyonunun Termodinamik Modeli: a) 41.54mg/L ve b) 115.94mg/L Mikroalg İle	130
Şekil 6.42. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli Reaktörlerde <i>Scenedesmus sp.</i> mikroalglerinin Mikroskop Görüntüleri: a) Uranyum Olmayan, Sadece <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleri Olan Örnek, b) ve c) 5mg/L Uranyum İçeren Örnekler, d) ve e) 10mg/L Uranyum İçeren Örnekler, f) ve g) 15mg/L Uranyum İçeren Örnekler	132
Şekil 6.43. Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle İle Gideriminde Temas Süresinin: a) Adsorplanmaya, b) Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi	136
Şekil 6.44. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun: a) <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına, b) Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, 71.61 mg/L Mikroalg, Canlı Mikroalg, 25°C)	138
Şekil 6.45. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun 71.61mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9	140
Şekil 6.46. Farklı Sıcaklıklarda Uranyumun 282.42mg/L <i>Chlorella sp.</i> mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9	141
Şekil 6.47. Farklı pH Değerinin Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi (25°C, Canlı Alg, C ₀ =15mgU/L): a) 71.61 mg/L, b) 282.42 mg/L Mikroalg İle	143
Şekil 6.48. Başlangıç pH'ın Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 Dakika): a), b) ve c) 71.61mg/L Alg İle Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L Ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) İse 282.42mg/L Mikroalg İle	144

Şekil 6.49. Sıcaklığın <i>Chlorella sp.</i> İle Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, Canlı Mikroalg, $C_0=15\text{mgU/L}$): a) $71,61\text{mg/L}$ Mikroalg, b) $282,42\text{mg/L}$ Mikroalg İçeren Reaktörler İçin	145
Şekil 6.50. Sıcaklığın Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 Dakika): a), b) ve c) $71,61\text{mg/L}$ Mikroalg İle Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L , 10mgU/L Ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) İse $282,42\text{mg/L}$ Mikroalg	149
Şekil 6.51. Farklı Mikroalg Konsantrasyonlarında: a) Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleri Üzerine Adsorpsiyonunun Değişen Adsorban Miktarı Değerlerine Göre, b) Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> İle Giderim Yüzdesinin Zamana Göre Değişiminin Grafikleri (25°C , pH 7, 15mg/L Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonu ve Canlı Mikroalg Türü)	151
Şekil 6.52. pH-Sıcaklık Parametrelerin U(VI)'un <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-Grafikleri	156
Şekil 6.53. pH-Canlı Yada Ölü (Mikroalg) Parametrelerin U(VI)'un <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-Grafikleri	157
Şekil 6.54. pH-Mikroalg Konsantrasyonu/pH-Süre Parametrelerin Sudaki Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkilerini Gösteren 3D-	158
Şekil 6.55. U(VI)-pH/ U(VI)-Mikroalg Konsantrasyonu/ U(VI)-Sıcaklık Parametrelerin Sudaki Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Olan Etkileri	159
Şekil 6.56. <i>Chlorella sp.</i> mikroalgleriyle U(VI) Konsantrasyonu-Süre, Sıcaklık-Mikroalg Konsantrasyonu, Sıcaklık-Canlı/Ölü, Canlı/Ölü-mikroalg Konsantrasyonu	160
Şekil 6.57. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Deneylerde Lagmiur İzoterm Grafikleri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklarda c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Sırasıyla $41,54\text{mg/L}$ ve $282,42\text{mg/L}$ mikroalg İle	164
Şekil 6.58. <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde Freundlich İzoterm Eğrileri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklar İçin, c) ve d) Farklı pH Değerleri İçin Sırasıyla $41,54\text{mg/L}$ ve $282,42\text{mg/L}$ mikroalg İle	168
Şekil 6.59. Uranyumun <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle Biyosorpsiyonunun Termodinamic Modelleri: a) $41,54\text{mg/L}$ ve b) $282,42\text{mg/L}$ mikroalg İle	171
Şekil 6.60. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli Reaktörlerde <i>Chlorella sp.</i> Alglerinin Mikroskop Görüntüleri: a) Uranyum Olmayan Sadece Alg Olan Örnek, b), c), d) ve e) 5mg/L Uranyum İçeren Örnekler.	172

Şekil 6.61. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli Reaktörlerde <i>Chlorella sp.</i> Mikroalglerinin Mikroskop Görüntüleri: a), b), c) 10mg/L Uranyum İçeren Örnekler, d), e) ve f) 15mg/L Uranyum İçeren Örnekler	173
Şekil 6.62. Sudaki Uranyumun ‘Cytochrome C’ Proteinini İle Anaerobik Kesikli Reaktörde Giderim Deneylerinde: a) Uranyumun (VI), b) Oksitlenmiş ‘Cytochrome C ₃ ’ün, C) İndirgenmiş ‘Cytochrome C ₃ ’ün.....	178



SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler:

α	Alfa parçacıkları
β	Beta parçacıkları
γ	Gamma parçacıkları

Kısaltmalar:

R.A.	Radyoaktif atık
A.E.S.	Atom Elektrik Santrali
T.E.S.	Termik Elektrik Santral
S.İ.B.	Sülfat İndirgeyen Bakteriler
U.D.K.M.	Uranyuma Dayanıklı Karışık Mikroorganizmalar
A.S.K.İ.	Ankara Su ve Kanalizasyon Sisteminden
IAEA	International Atomic Energy Agency
N.E.S.	Nükleer Elektrik Santrali

1. GİRİŞ

Radyoaktif ve ağır metal olan uranyum bir taraftan büyük bir ekonomik değere sahip iken, aynı zamanda da canlılar için büyük bir risk oluşturmaktadır. Bu değerli metalin çevreye ve sağlığa olan yüksek toksik etkilerinin azaltılması için çevrenin ve özellikle hızla yayılmasına sebep olan suların bu radyoaktif metalden arıtılması büyük önem arz etmektedir.

Nükleer yakıt olan uranyum ve toryumun enerji payı tüm fosil yakıtlarının (kömür, petrol, gaz) toplam enerjisinden bir hayli büyüktür ve çok yoğunlaştırılmış halinde olduğu için elde edilmesi fosil yakıtlara göre daha ekonomiktir [1]. Uranyumun 1 tane atomunun parçalanması sonucu 200 milyon elektron-volt enerji açığa çıkmaktadır, bu ise birkaç milyon karbon atomunun oksitlenmesi enerjisine denktir [2]. Yani 1 ton uranyumun enerjisi 2.5-3 milyon ton kömürün enerjisine eşdeğerdir [3]. 1g uranyumun radyoaktif parçalanması sonucunda 20·10⁹cal enerji açığa çıkmaktadır. Bu enerji 8000 ton ağırlığı 1000 metre yüksekliğe kaldırmaya, yada 200 ton suyu 100°C ısıtmaya veya 60W gücündeki 15000 adet lambanın birkaç gün yanmasını sağlamaya yeterlidir [4]. Yeryüzündeki Uranyumun konsantrasyonu ortalama olarak 2.7mg/kg'dır [5] ve yerkürenin kabuğunda bulunup toplam olarak yaklaşık 1,3·10¹⁴ ton bulunmaktadır [6]. Bu kadar değerli metalin bu kadar bol olması çok miktarda kullanılmasına neden olmuştur. Bu da dünya çapında suların bu radyoaktif ve toksik ağır metalle kirlenmesine yol açmıştır. Dolayısıyla bu suların arıtılması güncel küresel bir probleme dönüşmüştür.

Bu çalışmanın amacı; ekonomik açıdan çok değerli ama aynı zamanda da insan ve çevre sağlığı için tehdit oluşturan uranyum ile kontamine olmuş suların arıtılması için uygun biyoteknolojik yöntemlerin araştırılması, optimum koşullarının belirlenmesi, yöntemlerin ortaya konulmasını içermektedir.

Bu amaca ulaşmak için aşağıdaki çalışmalar yapılmıştır:

Bu tezin **ikinci bölümünde** sudaki uranyumun arıtılmasının önemini ortaya koymak için, suların uranyumla kirlenme dereceleri ve bu metalin sağlığa ve ekosisteme olan tehlikesi üzerinde durulmuştur. Uranyumun olumsuz etkilerinin belirlenmesi için fiziksel, kimyasal özelliklerinin bilinmesi de önemlidir. Bu yüzden burada uranyumun özelliklerinden de kısaca bahsedilmektedir. Bu bölümde uranyumu nükleer enerji ve atom bombası için kullanan çeşitli ülkelerde, senelerce ortaya çıkan sağlık problemlerinden ve bu sağlık problemlerinin uranyumla ilişkisi olduğunu açıklayan literatür bilgilerine de yer verilmiştir. İnsanlarda, hayvanlarda ve bitkilerde, nükleer enerji kullanımı sonucu ortaya çıkan

mutasyon ve kanser vakaları ile ilgili birçok arařtırmalardan bu bölümde faydalanılmıřtır. Düşük dozdaki uranyumun saęlık üzerinde etkileri hakkındaki literatür bilgileri ara özetlenmiřtir. Uranyumun tehlikesinin belirlenmesinin yanısıra, bu bölümde sudaki uranyumun biyoteknolojik yöntemlerle arıtılmasında bugüne kadar yapılan arařtırmalar ve elde edilen sonuçlar, uygulanan biyoteknolojik yöntemlerin avantajlı ve dezavantajlı yanları ile ilgili bilgiler de verilmiřtir.

Üçüncü bölümde, bu çalışmanın amacı ve bu amaca ulaşmak için izlenen yollar hakkında bilgi verilmiřtir.

Dördüncü bölüm olan ‘Materyal ve Metodlar’da, sudaki uranyumun laboratuvarda uranyuma dayanıklı karışık mikroorganizmaları (U.D.K.M.) ve sulfat indirgeyen bakterileri (S.İ.B.), *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalgleri ve ‘Cytochrome C₃’ proteini ile giderilmesi için kullanılan yöntemler ile ilgili detaylı bilgiler verilmiřtir.

Beřinci bölüm olan ‘Kesikli Reaktör Deneylerin Yapılması’nda anaerobik bakterilerle, mikroalglerle ve protein ile sudaki uranyumun giderilmesi için yapılan deneyler ayrı ayrı olarak anlatılmıřtır. Bu bölüm 5 alt bölümlerden oluşup sırasıyla U.D.K.M. ve S.İ.B. anaerobik bakterileri, *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalgleri ve ‘Cytochrome C₃’ proteini ile yapılan deneylerden oluşmaktadır:

Altıncı bölüm olan ‘Sonuç ve Tartışmalar’ bölümünde anaerobik bakterilerle, mikroalglerle ve proteinle yapılan kesikli reaktör deneylerden elde edilen sonuçlar, deęerlendirmeler, hesaplamalar ve tartışmalar detaylı olarak verilmiřtir.

Son bölüm olan **yedinci bölümde** genel sonuçlar ve öneriler üzerinde durulmuřtur. Bu bölümde bakteri, mikroalg ve maya ile yapılan deneylerinden elde edilen sonuçlar deęerlendirilerek kıyaslanmış ve öneriler ortaya konulmuřtur.

2. LİTERATÜR ÖZETİ

2.1. Suların Uranyumla Kirlenme Derecesi

Uranyum doğada genellikle yeraltında bulunan radyoaktif bir kimyasal elementtir ve daha küçük atomlara parçalanabilen enerji ve atom bombası elde etmek için cevherinden çıkartılması ve kullanılması ekosisteme ve insan sağlığına olan tehlikesini daha da arttırmaktadır. Bunu görebilmek için atom enerjisi/ atom bombası endüstrilerinin işletilmesi sonucu oluşan radyoaktif atıkların özelliklerinin bilinmesi gerekmektedir.

Doğada uranyumun 3 izotopu vardır: U-238 – %99.284, U-235-%0.711, U-234 – %0.005 [7]. Bunlardan U-235'in radyoaktif parçalanması sonucu ortaya çıkan enerji, diğer uranyum atomunu parçalamaya yetecek kadar yüksektir. Dolayısıyla 1 tane U-235 atomunun parçalanması sonucu oluşan enerji, doğal yolla kendi kendine parçalanacak olan uranyum atomlarını saniyenin milyonda bir zaman diliminde parçalayıp zincirli parçalanma etkisi yaratma potansiyeline sahiptir. Bu tür zincirleme parçalanmalar doğada U-235 konsantrasyonu çok düşük olduğu için (%0.711) genelde görünmemektedir. U-235 parçalanması sonucu ortaya çıkan yüksek enerjili nötronu, doğada hayli yüksek oranda bulunan (%99.284) U-238 izotopu tarafından hapsedilerek U-239 izotopuna dönüşmektedir. Sonuçta uranyum parçalanmamaktadır, yani soğutulmaktadır. Uranyumun farklı kullanımlarında ise (atom enerjisi/ bombası) zincirli parçalanma etkisine ihtiyaç duyulmaktadır. Atom elektrik santrallerinin işletilmesi için uranyum karışımındaki U-235 izotopunun konsantrasyonunun %2 ile %10 arasında, sualtı atom gemileri için %40 ve atom bombası için %80 olması gerekmektedir [7]. Bunun için doğadan elde edilen uranyumun U-235 izotopunun konsantrasyonunun arttırılması işlemi olarak zenginleştirme yapılmaktadır. Uranyumun zenginleştirilmesi sonucu geride kalan U-238 izotopu atık niteliği taşımaktadır. 1kg %5 U-235 izotopu içeren uranyumu elde etmek için 7-12 kg saf uranyum izotop karışımı gerekmektedir, 1kg saf uranyum izotop karışımı için ise 5 ton uranyum cevheri işletilmesi gerekmektedir. Böylece zenginleştirme sonucu, elde edilen uranyumun %90 radyoaktif atık olarak atılmaktadır. Dolayısıyla cevherinden çıkartılarak kullanıldığı için kalan atıkta uranyum konsantrasyonu çok düşüktür gibi düşünceler yanlıştır. 1 ton uranyum cevherinin işletilmesi sonucu da 4 ton sıvı radyoaktif atık oluşmaktadır [7]. Tüm dünyada 1906-1960 yılları arasında toplam olarak $1.26 \cdot 10^5$ ton uranyum çıkartılıp işletilmiştir [2]. Enerji üretimi sırasında da çok yüksek sıcaklıktaki reaktörlerin soğutulması için reaktördeki uranyum üzerinden büyük hacimlerde su geçirilmektedir [4]. Bunun yanı sıra atom elektrik santrallerin (A.E.S.) işletilmesiyle oluşan katı radyoaktif atıklar çeşitli nedenlerden dolayı

(su taşkınları, nehirlerle yıkanması, aşırı yağış, çığlar v.s. doğal felaketler) doğal sulara karıştıkları için yüzeysel ve yeraltı suların uranyumla kirlenmesi söz konusudur.

Dünyada uranyum madenciliği sonucu her sene 20 milyon ton radyoaktif katı atık oluşmaktadır [8]. Dolayısıyla uranyumun cevherinden çıkartılması, zenginleştirilmesi ve işletilmesi sonucu yüksek konsantrasyonlarda uranyum içeren radyoaktif sıvı atık oluşmaktadır. Reaktörlerde kullanıldığı için atıklarda uranyum konsantrasyonu yok denecek kadar azdır düşüncesi tamamen yanlıştır. Örneğin, Rusya'da 2006 yılında 500 milyon m³'ten fazla sıvı ve yaklaşık 180 milyon ton katı R.A. (radyoaktif atık) toplanmıştır. Bunların toplam aktivitesi 2008 yılında 8.5 milyar Cu (Küri) oluşturmıştır. Bu sayının ne kadar büyük olduğunu anlamak için Çernobil kazası sonucu oluşan radyoaktif atıkları ile kıyaslanabilir. Çernobil'de AES (Atom Elektrik Santrali) patlaması sonucu oluşan radyasyonun toplam aktivitesi 50 milyon Küri oluşturmıştı. Bu durum Rusya'da 2006 yılına kadar toplanan R.A.'ların aktivitesi **YÜZ YETMİŞ "Çernobil'e"** eşit olduğunu göstermektedir. Çernobil'deki facia sonucu oluşan radyoaktif kirlenme ise Hiroşima ve Nagasaki'deki atom bombalarının patlamasından 600 kat daha tehlike meydana getirmiştir [7].

New Meksiko'da 1979 yılında radyoaktif atıkların sularla yıkanması sonucu 1100 ton katı ve 93 milyon galon sıvı R.A. Puerko nehrine karışmıştır. Sonuçta nehirdeki uranyum konsantrasyonu izin verilenin 7000 katına ulaşmıştır ve bugüne kadar binlerce insan ve hayvanın kansere yakalanarak hayatını kaybetmesine neden olmuştur. Radyoaktif atıkların yıkanması sonucu önemli su kaynaklarının kirlenmesi bugüne kadar dünyanın çoğu yerinde gözlenmiştir. Nükleer Santrallerin bulunduğu ülkelerde ise içme sularındaki uranyum konsantrasyonu çok yüksek değerlere ulaştığı belirlenmiştir. Örneğin Kanada'da içme suyundaki uranyum konsantrasyonunun 700µg/l'den fazla olduğunu araştırma sonuçları göstermiştir [9]. US EPA standartlarına göre içme suyundaki uranyumun konsantrasyonu 30µg/l'yi aşmaması gerekmektedir [10].

Almanya'da ise uranyum atıklarında konsantrasyon 275mgU/kg ve yeraltı sularında da 707µgU/L olduğu tespit edilmiştir [11].

Rusya'nın Sibirya bölgesinde 30 yıldır işletilmekte olan uranyum yatağında toprağın üst kısmındaki uranyumun konsantrasyonu 1000mg/L aşmıştır. Bölgedeki böceklerde mutasyon oranı uranyum konsantrasyonu kontrol bölgelerine nazaran 2-41 kere daha yüksek çıkmıştır [12].

Tüm dünyada bugünlerde radyoaktif atık miktarı her sene 10 000 tona artmaktadır. Bu atıklar ne kadar radyoaktif olmayan topraklarla örtülse de bunlardan havaya verilen gamma-ışınlarının büyüklüğü 250µR/saati ve alfa ışınları yayan radyonüklidlerin aktivitesi 13000Bq/kg oluşturmaktadır. Bu değerler, doğal radyasyondan oldukça fazla olduğunu göstermektedir. Böyle radyoaktif atık depolarından atmosfere sürekli olarak Radon-222 ve uranyum atılmaktadır. Bu atıkların aktivitesi, radyoaktif atık depolarının çok uzağındaki su, toprak ve havayı radyoaktif olarak kirletmektedir.

2.2. Uranyumun Sağlığa ve Ekosisteme Olan Tehlikeli Etkileri

Uranyum hem ağır metal hem de radyoaktif metal olduğu için onun sağlığa olan etkisi iki çeşittir: toksik ve radyoaktif.

2.2.1. Sağlığa Olan Toksik Etkileri

Uranyumun ağır metal olarak toksik etkileri iyi bilinmektedir. Doğada, suda hiç çözünmeyen U(IV) halindeki uranyum, çeşitli amaçlar için yeraltından çıkartılınca maden cevherinden onu ayırabilmek için güçlü asit ve bazların yardımıyla suda çok iyi çözünen ve dolayısıyla hızlı dağılan ve biyolojik birikmeye elverişli U(VI) haline, yani daha çok tehlikeli uranyuma dönüştürülmektedir. Son zamanlarda yapılan araştırmalara göre biyoakümüülasyon sonucu suda yetişen planktondaki radyoaktif maddelerin konsantrasyonu sudakine nazaran 2000 kat; bu planktonlarla beslenen balıklarda ise 15000 kat; balıklarla beslenen kuşlarda 40000 kat; su üzerinde uçan böceklerle beslenen kırlangıç yavrularında 500000 kat ve suda yüzen kuşların yumurtalarında 1000000 kat daha fazla olduğu saptanmıştır [7]. Böylece insan tarafından çözünür hale getirilerek sularda hızlı dağılan ve su canlıları tarafından biyoakümüülasyona (biyolojik birikim) uğrayan uranyum, canlılar ve ekosistem için aşırı tehlikeli konsantrasyonlara ulaşmaktadır. Uranyum yüksek düzeyde zehirlidir ve böbrek gibi iç organlara saldırır. Araştırmalar uranyumun fetüslerde ve bebeklerde kalıtsal bozukluklara sebep olurken lösemi riskinin de arttığını göstermektedir.

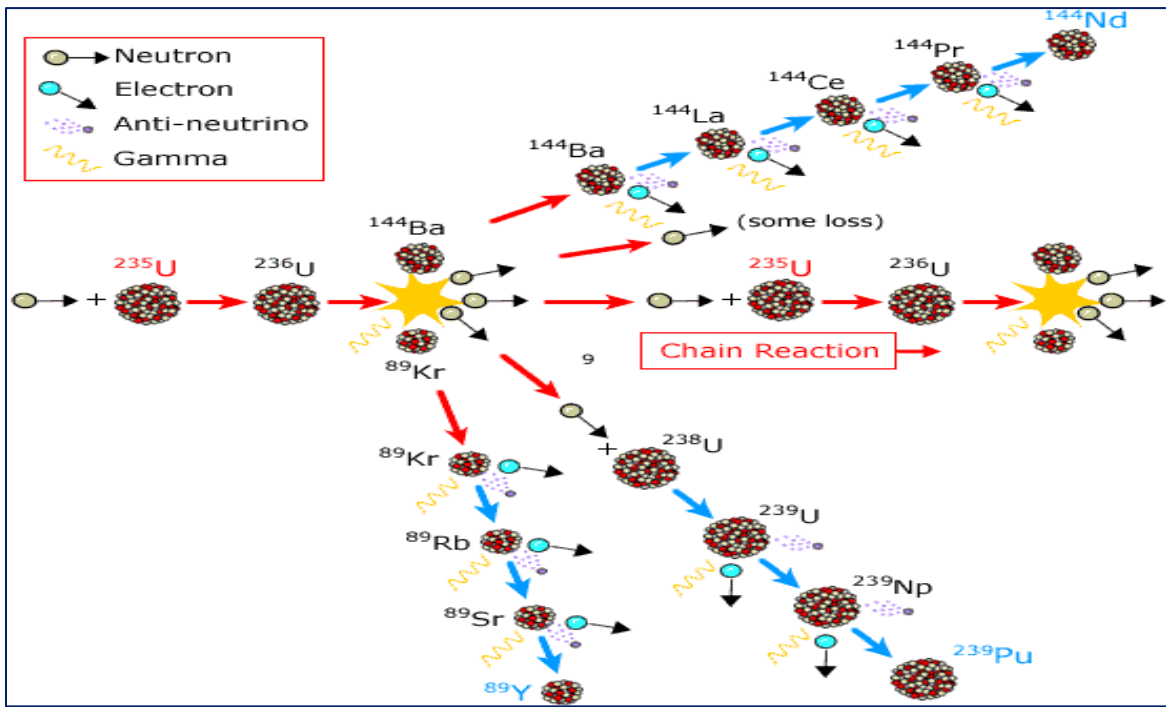
2.2.2. Sağlığa Karşı Radyoaktif Etkileri

2.2.2.1. Uranyumun Radyoaktif Tehlike Derecesi

Uranyumun ekosisteme ve canlıların sağlığına olan korkunç radyoaktif etkileri insanlar tarafından kullanımı sonucu ortaya çıkmaktadır.

Doğadaki uranyumun parçalanma yarıömrü oldukça uzun olduğu için ($4.5 \cdot 10^9$ yıl) [4] ve genelde yeraltında suda çözünmez halde (U(IV)) bulunduğu için çok büyük radyoaktif tehlike yaratmamaktadır. Ancak enerji elde etmek amacıyla yapay olarak nötronlarla

bombardıman edilerek saniyeler içinde parçalanın uranyum, Şekil 2.1.'deki zincire göre yarı ömrü çok kısa olan başka tehlikeli radyoaktif elementlere yapay olarak parçalanmaktadır (Şekil2.1). Bunun yanı sıra parçalanma sırasında çevreye çok yüksek enerjili çeşitli atom parçacıkları (proton, nötron, α , β , γ) salgıladığı için, bu parçacıklar radyoaktif olmayan çevredeki başka elementlere bombardıman olarak bu elementleri de radyoaktif hale dönüştürmektedir. Örneğin, radyoaktif olmayan İyodür-127 nötronla bombardıman olunca radyoaktif İyodür-128'e dönüşmektedir [4]. Dolayısıyla uranyumun kullanımı sonucu hayat için tehlikesi çok yüksek olan yapay radyoaktif elementler de ortaya çıkmaktadır (Çizelge 2.1.) [7].



Şekil 2.1. Uranyumun nötronla bombardıman edilmesi sonucu radyoaktif parçalanma zinciri

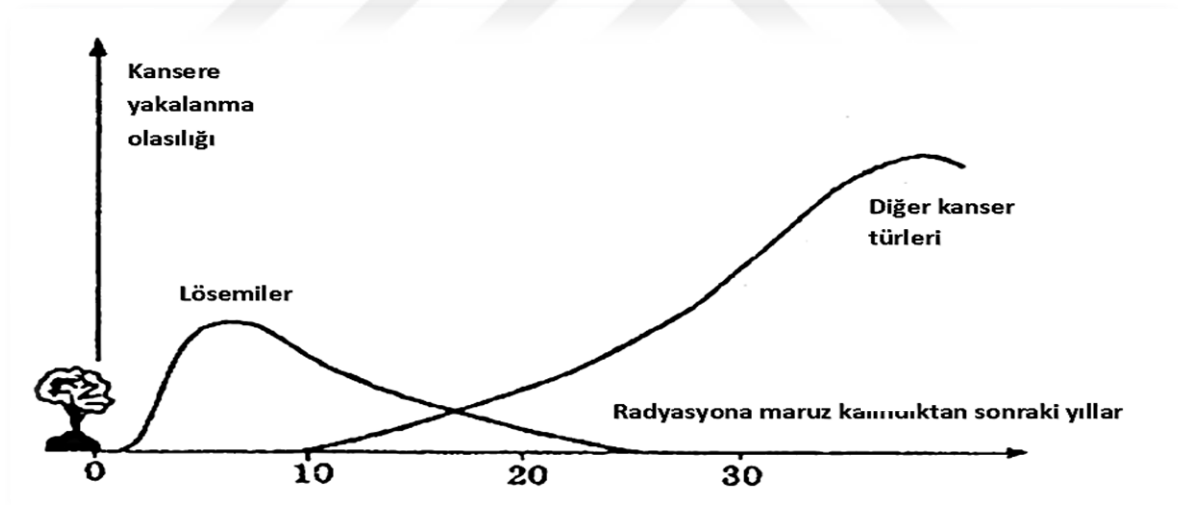
Çizelge 2.1. Biyosferdeki Radyoaktif Elementler ve Onların Kaynağı [7]

Radyoaktif Element	Kaynağı
Uranyum (U-238 ve U-235), Potasyum (K-40), Karbon (C-14), Berilyum (Be-7), Toryum (Th-232), Radon (Rn-222), Rubidyum (Rb-87)	Doğal radyoaktivite (yer kabuğundaki radyoaktif maddeler ve uzay radyasyonu)
Uranyum (U-238 VE U-235), Kurşun (Pb-210), Radyum (Ra-226), Toryum (Th-232), Radon (Rn-222), Polonyum (Po-210)	<u>Uranyum</u> madenciliği
Trityum (H-3), Karbon (C-14), Mangan (Mn-54), Demir (Fe-55), Çinko (Zn-65), Kripton (Kr-85), Stronsiyum (Sr-90 ve Sr-89), Rutenyum (Ru-106), İyodür (I-131), Sezyum (Cs-137), Baryum (Ba-140), Seryum (Ce-144), Plütonyum (Pu-239, Pu-240 ve Pu-241), Amerikyum (Am-241)	<u>Uranyumdan</u> elde edilen atom bombasının denemesi ve kullanımı

Mangan (Mn-54), Gümüş (Ag-110), Kobalt (Co-58 ve Co-60), Antimon (Sb-124 ve Sb-125), İyodür (I-129 ve I-131), Sezyum (Cs-134 ve Cs-137), Tritiyum (H-3), Karbon (C-14), Kripton (Kr-85)	<u>Uranyumdan</u> enerji elde etmek için işletilen Nükleer Elektrik Santrallerinin (N.E.S.) atıkları
Praseodim (Pr-144), Mangan (Mn-54), Kobalt (Co-58 ve Co-60), Stronsiyum (Sr-90), Rutenyum (Ru-106), Rodyum (Rh-106), Gümüş (Ag-110), Antimon (Sb-125), Sezyum (Cs-137), Seryum (Ce-144), Plütonyum (Pu-238, Pu-239 ve Pu-240), Amerikyum (Am-241), Kripton (Kr-85)	<u>Uranyumdan</u> enerji elde etmek için işletilen N.E.S.'nin nükleer yakıtlarının geri dönüşümü
Rutenyum (Ru-103 ve Ru-106), Rodyum (Rh-106), Sezyum (Cs-134 ve Cs-137), İyodür (I-131), Stronsiyum (Sr-90),	<u>Uranyumdan</u> enerji elde etmek için işletilen N.E.S.'lerde Nükleer Teknogen kazalar

2007 yılında, Strahlentelex bilgi servisi uranyum, radon ve diğer uranyumun radyoaktif bozulma elementlerine maruz kalmanın sebep olduğu, bilimsel olarak kanıtlanmış hastalıkları sıralamıştır (Şekil 2.2):

- Bronş ve akciğer kanserleri,
- Lösemi ve diğer kan hastalıkları,
- İlik, mide, karaciğer, bağırsak, safra keseri, böbrek ve deri kanserleri,
- Fizyolojik ve kalıtsal bozukluklar (mutasyon).



Şekil 2.2. Radyasyona Maruziyet Süresine Göre Kanser Türlerinin Sıklığı

Nükleer Elektrik Santrallerin (N.E.S.) insan sağlığı üzerine etkileri ABD’de N.E.S.’lere yakın çevresindeki halkın sağlığının incelenmesinin sonuçları Çizelge 2.2’de gösterilmektedir. Çizelgede net olarak görüldüğü gibi insanlarda kanser, lösemi, gelişimdeki bozukluklar, mutasyon, düşük kilolu doğum ve bunun gibi hastalıkların artışı Nükleer tesislerin çalıştırılması ile doğrudan alakalıdır (Çizelge 2.2) [13].

Çizelge 2.2. ABD'nin Nükleer Elektrik Santrallerinin Sağlık Üzerindeki Etkileri [13]

Bölge	Sağlık Üzerinde Etkisi
"Oyster Creek" N.E.S.	Nükleer elektrik Santrali (N.E.S.) çalıştırıldıktan birkaç yıl sonra çocuklarda kanser vakalarının sayısı %35-50 oranında arttı
"Big Rock" N.E.S. (Nükleer Santran çalıştırıldıktan 9 yıl sonra)	Bebeklerde ölüm sayısındaki, düşük kilolu doğum, gelişimdeki bozukluk, kanserler ve lösemnin artışı
"Pil grim" N.E.S.	1978-1983yy. arasında N.E.S.'in 16 km çapında lösemi ile hastalanma riski çok yüksek olduğu belirtilmiştir. 1983-1986yy. N.E.S.'in emisyonları 0,2 mSv/yıl'ya indirildikten sonra yeni lösemi olayları rastlamamıştır.
"Duana Arnold» N.E.S.	Nükleer Santral çalışmaya başladığından beri çocuklarda lösemi sayısı arttı
Wisconsin'deki 3 N.E.S. ve Minnesota'daki 3 adet N.E.S.'lerin yakınında bulunan ilçe	Ebeveynleri N.E.S. yakınında yaşayan bebeklerin düşük kiloyla doğumu (2500 gramdan az) ve ölüm sıklığı arasındaki bağlantı
Beş nükleer santraller Bakanlığının ve 46 ABD nükleer santralinin 80 km uzağında bulunan bulunan 268 ilçenin nüfusu,	N.E.S.'lerin çevresinde meme kanserindenölüm sayısının 2.5 kere artışı ve askeri nükleer tesislerinin çevresinde 10 kere artışı
ABD Enerji Bakanlığının dokuz nükleer santralleri	8 santralin yakınında kemik kanserinden ölüm sayısının artışı ve çevresinde 3-5 kere artışı
"Three Mile Island" Nükleer santrali (1979 yılı kazadan önceki emisyon), rüzgarın yönündeki nüfus	Çocuklarda kanser hastalıklarının artışı, non-Hodgkin lenfoma insidansı, çocuk ve erişkinlerde kan ve akciğer kanseri sıklığında on kat artışı ; kamuda bulantı, hazımsızlık, erken kellik şikayetlerin sayısında artış
"Salem" N.E.S.'i	Bebek ölümlerinin ve düşüklerinin artışı. <u>N.E.S. durdurulduğunda veya minimum kapasitede çalıştığı yıllarda, bu rakamlar hızla azalıyordu</u>
"Fort San Vreyn", "La Croce", "Millstone", "Heddem Boyun", "Truva" N.E.S.'leri	Nükleer santrallerin rüzgar yönünde 64 km uzaklığına kadar <u>bebeklerin ölüm sayısı N.E.S.'ler durdurulduğundan sonra 15 ila 20% oranında düştü</u>
"Rancho Seco" N.E.S.'i	Nükleer santral çalışmaya başlatıldıktan sonra bebek ölümlerinde artış, durdurduktan sonra ise yedi yıl içinde konjenital anomali, lösemi, kanser ve ölüm vakalarının azalması gözlenmiştir.
Nükleer yakıt üretim tesisi (Pensilvania)	N.E.S. yakınındaki Apollo kasabasında düşük radyasyon dozlarına maruz kalma sonucu her beş kişinin biri kansere yakalanmıştır (ABD ortalamasının 17 katı daha yüksek).

Gould'un "The Enemy Within. The Hight cost of living near nuclear reactors" da, ("İçerdeki Düşman. Nükleer Reaktörlerin Yakınında Yaşamının Çok Yüksek Bedeli") ABD'de tüm Nükleer Santrallerin yakınındaki ilçelerde, N.E.S.'lerin çalıştırılmasından

önceki ve sonraki meme kanseri ölümlerinin istatistiksel verileri verilmiştir. Örnek olarak Çizelge-3 gösterileri Kaliforniya'daki "Rancho Seco" N.E.S.'lerin verileri verilmiştir (Çizelge 2.3) [14].

Çizelge 2.3. "Rancho Seco" N.E.S.'in çalıştırılmasından önce ve sonraki kadınların meme kanserinden 5 yıllık mortalite sayısı (100 bin kişi başına), Yerel kolejlere kayıt, 2005 [14].

ABD'deki Bölgeler	1950-1954	1985-1989	Artış (%)
Rüzgâr yönünde yer alan 6 il	20,8	26,5	+27
100 mil çapındaki 26 il	24,2	25,8	+7
Kaliforniya Eyaleti	25,5	25,9	+0,4

Çok iyi tıbbi istatistiksel verilere sahip olan Almanya'da ise Nükleer Santrallerin sağlık üzerine olan etkileri bu veriler incelendiğinde net olarak ortaya çıkmıştır. Çizelge 2.4'te bu etkiler yansıtılmaktadır (Çizelge 2.4) [13].

Çizelge 2.4. Almanya'da Nükleer Enerji Endüstrisinin Halk Sağlığına Olan Etkisi

"Garching", "Nauherberg" N.E.S.'leri	1 yaşından küçük erkek çocuklar arasında lösemi morbidite ve mortalite oranlarındaki artış
"Julie" N.E.S.'i	Çocuklarda akut lösemi vakalarının sayısındaki artış
"Vyurgassen" N.E.S.	20 yaşa kadar lösemi insidansında artış. Yetişkinlerde kromozomal anomaliler sayısında dört kat artış
"Krummel" N.E.S.	Lösemi insidansında artış. Kromozomal anomaliler sayısında artış
"Rosendorf", "Rheinsberg" N.E.S.'leri	Çocuk kanseri sayısındaki artış
"Gunzburg", "Dillingen", "Augsburg" N.E.S.'lere yakın Bavyera'nın üç ilçesi	Çocuk kanseri vakalarının %40 oranında artması
"Lingen" N.E.S.	«İnert» radyoaktif gazların emisyonu ile kanserden ölen çocuk sayısı, ölü doğma ve bebek ölümü arasındaki ilişki

İngiltere'de Seascale, Berkshire, Hampshire, Sellafield, Dounreay, Harwell, Oldbari, Somerset, Essex nükleer merkezleri ve nükleer santraller etrafındaki kanser hastalıklarının ulusal ortalamadan önemli ölçüde daha yüksek olduğu bağımsız araştırma sonucu belirlenmiştir. 50 yaşından genç kadınlarda görülen tüm kanserlerin görülme sıklığı ulusala

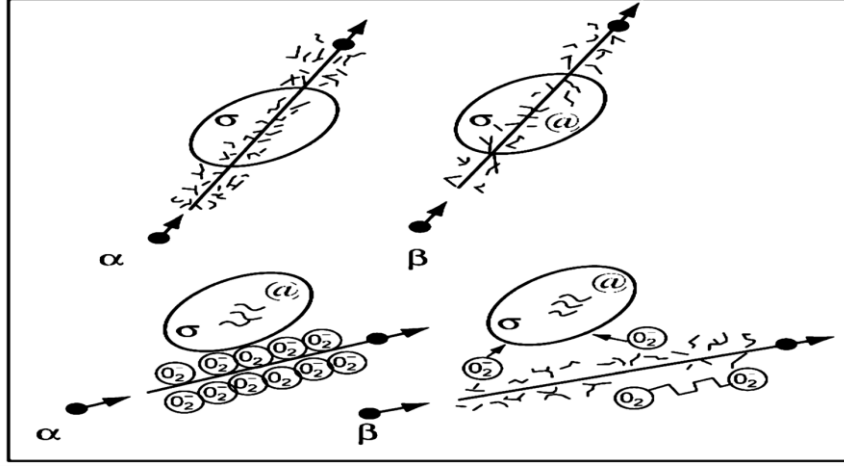
göre 15 kat daha fazla ve 51-60 yaşlarındaki kadınlarda meme kanseri riskinin ülkedeki ilgili yaş grubu için ortalamasından beş kat daha yüksek olduğu tespit edilmiştir [7].

Fransa'daki 'Cape La Lahey'de nükleer yakıtın geri işletme tesisi etrafında çocuk lösemi sayısında büyük artış kaydedilmiştir. Japonya'nın nükleer santrallerinin etrafında lösemi ve lenfomadan dolayı mortalite sayısındaki artış kaydedilmiştir [7].

Rusya'da ise uranyum madenlerinde çalışan işçilerin radyoaktif toz solunması sonucunda akciğer kanseri hastalıkları insidansı önemli ölçüde artmıştır [7]. Çevrenin uranyumla kirlenmesi Rusya'nın Zabaykal Bölgesinde de etkisiz kalmamış, Daun sendromu ve kanser vakalarında, perinatal mortalite ve ölü doğumda artış gözlenmiştir. 1999 yılının acemi askerlerin %70'de zeka geriliğinden muzdariptiler, çocukların %67 ise ortopedik patolojiler bulunmuştur. Bunun dışında bu bölgenin sakinlerinde konjenital katarakt ve asfiksi sayısı çok yüksek rakamlara ulaşmıştır.

Ukrayna'nın Çernobil şehrinde ise reaktörün patlaması sonucu bölge temizleme işlerinde katılan 4000 işçi kansere yakalanarak hayatını kaybetmiştir. Sovyetler döneminde yüzlerce nükleer silah denemeleri yapılan Kazakistan'ın batı-kuzeyinde kan kanserine yakalananların ve doğuştan nörolojik ve fiziksel özürlülerin sayısı çok fazladır [15].

Uranyum ve diğer radyoaktif elementlerin sağlık üzerine karsinojenik etkilerinin yanı sıra radyasyona maruz kalanların kendilerine ve özellikle nesillerine mutasyon yapma etkisi olduğu da iyi bilinmektedir. Mutasyon, radyoaktif parçalanma sonucu ortaya çıkan yüksek enerjili parçacıkların (α , β , γ) canlılarda genetik bilgi kaynağı olan DNA'yı bozması sonucu, yani iyonlaştırması sonucu ortaya çıkmaktadır. Bu parçacıkların DNA üzerinde doğrudan ve dolaylı etkileri belirlenmiştir. Doğrudan etki çok hızlıdır ve hücre çekirdeğinde DNA hasarının başlıca nedenidir. Dolaylı etkide ise bu parçacıklar, hücrenin fosfolipid zar oksidasyonu ve hücre zarı etkilerinin ortaya çıkmasına yol açan bir kimyasal reaksiyon başlatabilen çok zehirli O_2 -iyonu veya peroksit radikalinin oluşmasına neden olmaktadır (Şekil 2.3) [16].



Şekil 2. 3. İyonlaştırıcı parçacıkların biyolojik etkilerinin başlıca türleri. 1) Canlı hücreler üzerinde doğrudan fiziksel etkisi. 2) Serbest radikallerin oluşumuna O_2^- ile canlı hücreler üzerinde dolaylı etkileri (kimyasal) [17].

İyonize edici radyasyon etkisi altında DNA molekülünde aşağıdaki gibi değişiklikler oluşmaktadır [18], [19]:

- Tek ayırmalar,
- Çift ayırmalar,
- n-hidrojen bağlarının kopması sonucu kısmi denatürasyonu,
- Bazların radyasyonla değişimi,
- Bazların bozulması,
- Çapraz bağların oluşumu
- Deoksiribozün parçalanması

DNA'daki mutasyonlar genetik olarak çocuklara da geçmektedir. Atomcular, her sene trafik kazasından ölenlerin sayısının radyasyondan ölene göre daha çok olduğunu söyleyerek bu durumu dikkate almamaktadır. Yani bir mutasyondan daha ne kadar mutant nesil doğacağını hesaba katmamaktadırlar. Tek radyoaktif atom bile mutasyona neden olabilir [20]. Bu yüzden uranyuma radyoaktif metal olarak herhangi bir standart koyulmamıştır. Ancak toksik etkileri iyi bilindiği için toksik etkilerini önlemek için içme suyundaki en fazla izin verilebilir uranyum konsantrasyonu $30\mu g/L$ olarak belirlenmiştir.

2.2.2.2. Düşük Dozdaki Radyasyonun Tehlikeliliği

Her ne kadar atomcular az dozdaki radyasyonun sağlığa zararı olmadığını vurgulamaya çalışsalar da, hayattan alınan tecrübeler tersini göstermektedir. Küçük doz olarak genelde: 0.1 Gy ya da 10 rad emilen doz ve 0.1 Sv ya da 10 rem eşdeğer tek doz sayılmaktadır. Çizelge 5'te küçük dozdaki yapay radyasyonun sağlık üzerine olan etkileri gösterilmiştir (Çizelge 5) [13].

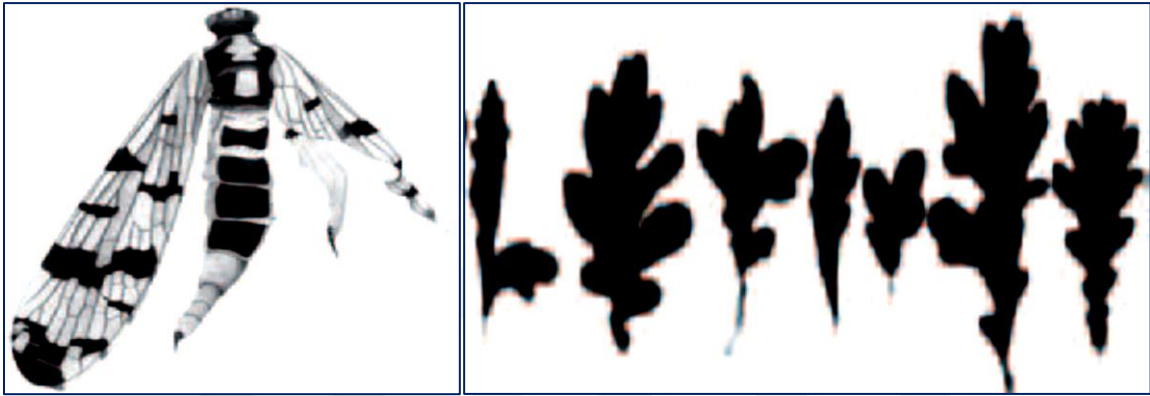
Burada Rusya'daki 'Semipalatinsk' atom deneme sitesinin tıbbi-biyolojik araştırma merkezinin müdürü Prof.Dr. İ.Y.Vasilenko'nun, yani bir atomcunun sözünü hatırlatmak gerekir: 'Uzun süreli klinik gözlemler göstermektedir: 0.25 Gy dozda ışınlama vücutta kayda değer değişikliklere yol açmaz ...' [21]. Ama Çizelge 2.5'te hayattan alınmış tecrübeden, 0,25Gy altındaki dozların sağlığa ne gibi tehlikelerinin olduğu ve bir atomcunun sözüyle ne kadar uyuşmadığı net olarak görülmektedir.

Çizelge 2.5. Az Dozdaki Radyasyonun Sağlığa Olan Etkileri [13].

Absorbe edilen radyasyon dozu, Grey (Gy)	Radyasyona Maaruziyetin Sonuçları
0,25	Dış ışınlamaya maruz kalan kadınlarda geçici (2 - 6 ay) kısırlık. 70 yıllık toplam maruz kalma sonucu 100 kişiden birinin kanserden ölmesi [22].
0,15	8-15 haftalık hamile kadınların tek seferlik maruziyeti sonucu bebekte mental retardasyon (beyin gelişmemesi) [23]. Tek bir ışınlama sonucu kemik iliğindeki hematopoezin (kan yapımı) önemli derecede azalması [24].
0,1	Yeni doğanlarda deformitelerin oluşumu, tek ışınlamada 1 yıl süreye kadar sperm sayısının azalması [25].Ellerin kapiler geçirgenliğinin artması ve cilt direncinin faz değişimi [26].Lipidlerin oksidatif hasarı, hücre membranının özelliklerindeki bozukluklar [27].
0,09	Tiroid kanseri vakalarındaki artış [28].
0,05	İnsan timusunun tahrişi [29]. İnsan gelişimindeki doğuştan molformasyonların (bozukluklar) ortaya çıkışı [30].
0,04	Radyasyona maruz kalmamış personele kıyasla, 30 yıllık toplam dış ışınlama sonucu çeşitli kanserden ölüm sayısının artması [31].
0,016	İnsanlarda leykomi vakalarındaki artış [32].
0,001	Ölü doğan bebek sayısındaki artış [33]. Birinci kuşak yeni doğan bebeklerde milyonda 50-350 tane kalıtsal bozukluklar [34]. Tek ışınlama sonucu rahimdeki bebeklerin beyin lezyonları hasarı [35].
0,0002	Anne karnının ışınlamaya maruz kalan bebekte bozuklukların fayda olma eşik dozu [36]

Çok küçük dozdaki radyasyonun ekosistem üzerindeki mutasyon yapma özelliğini İsviçreli ressam Karneliye Hosse-Honneger kendi bağımsız araştırması sonuçlarıyla ispatlamıştır. Karneliye Çernobil'e yakın İsviçre bölgesindeki ve Çernobil'in kendisindeki böceklerin ve bitkilerin 30 yıl süre boyunca resimlerini çekmiştir. Sonuçta Çernobil'e yakın bölgelerde mutasyona uğrayan böceklerin/bitkilerin sayısının fazla olduğunu ve ayrıca Çernobil'in kendisindeki böceklerin/bitkilerin hemen hemen hepsinin mutasyona uğradıklarını tespit

etmiştir. Bu sonuçlar çoğu bilim adamlarının, küçük dozdaki radyasyonun ekosistem üzerinde herhangi bir etkisi yoktur iddiasının yanlış olduğunu ortaya koymuştur. Dolayısıyla büyük tepkilerle karşılanmıştır. Sonuçlarının doğrululuğunu bir daha ispat etmek amacıyla Karneliye diğer ülkelerin A.E.S. etraflarındaki; İsviçre'deki 'Gösgen' ve 'Laybstdt' A.E.S.'lerin, Almanya'daki 'Gundremingen' A.E.S.'nin, Büyük Britanya'daki 'Sellafield' atom kompleksinin, Fransa'daki A.E.S. atıklarının geri dönüşüm fabrikasının ve ABD'deki 'Three Mile Island', 'Pich Bottom' A.E.S.'lerinin böceklerini de toplamıştır. Sonuçlara göre tüm bu A.E.S.'lerin etrafındaki böceklerde mutasyon derecesinin yüksek olduğu gözlenmiştir (Şekil 2.4) [37], [38]



Şekil 2.4. A.E.S.'lerin Canlı Hayata Olan Etkisi: 1) 'İsviçre'deki 'Rötental' A.E.S.'in etrafındaki mutasyona uğrayan böcek, 2) 'Laybstdt' A.E.S.'nin etrafındaki büyümüş meşenin mutasyona uğramış yaprakları.

Düşük dozdaki radyasyonun insan ve diğer canlılar üzerindeki etkileri hakkında resmi olarak kabul edilen bilgilerin, hayattan alınan tecrübelerle gösterdiği uyumsuzluklar aşağıdaki nedenlerden dolayı ortaya çıkmıştır: bilindiği üzere az dozdaki radyasyonun insan üzerindeki etkileri hakkındaki **resmi bilgiler**, atom bombasına maruz kalan Hiroşima ve Nagasaki sakinlerinin sağlık durumlarının araştırılması sonucu elde edilmişlerdir. Bu bilgiler ise aşağıdaki nedenlerden dolayı güvenilir değildir [13]:

a) Az dozdaki radyasyonun insan üzerine etkisi belirlenirken dozlardaki belirsizliklerden dolayı. Radyasyona maruz kalan insanların maruziyet dozajı, bu insanların o anda nerede bulunduklarını kendileri anlatmalarından ortaya çıkarak hesaplama yöntemiyle belirlenmiştir. Ancak bu insanlar yıllar geçtikçe anlatmalarında radyasyon merkezine daha yakın olduklarını belirtmeye başlamışlardır [39]. Çünkü radyasyonun merkezine bulunduğu yakınlığa göre yardım miktarı artıyordu. Ayrıca, dozlar yeniden belirlenirken çalışma ABD Enerji Departmanının, Oak Ridge Laboratuvarı'nda kalitesiz yapılmıştır ve ilk çalışmaların kayıtları onlar tarafından imha edilmiştir [40], [41]. Dolayısıyla radyasyon merkezinden

patlama sırasında çok uzakta olanlar da yakında olduklarını söyledikleri için yüksek dozlara maruz kalıp da az hasar görmüş olarak kayda geçtikleri için az dozun etkisi belirlenirken gerçek bilgilere dayanılmamıştır.

b) Eksik veriler. Ekim 1945 yılında İşgal kuvvetleri Japonya'ya girdiklerinde Japon bilim adamları ve sağlık görevlilerine, atom bombası sonucu hayatta kalanlar hakkında araştırma yapmalarını tamamen yasaklamışlardır. Buna rağmen Japon hemotoloğu, lösemi hastalarındaki artışlar hakkında gizli bilgileri toplamaya devam etmiştir ve 'Radiation Effect Research Foundation' Uluslararası Konferansında bunları sunduğunda komisyon tarafından ciddi suçlamayla karşılaşmıştır. Ama 5 yıl sonra bu bilgileri dergilerde yayınladığında bu gerçeği ABD kabul etmek zorunda kalmış ve araştırmaların yenilenmesine karar vermiştir. Ancak bu araştırmada, 1950 yılında Japonya'da nüfus sayımından sonraki bilgiler dikkate alınmış, ve 1945 yılından 1950 yılına kadar lösemiden ölenler hesaba katılmamışlardır [42].

c) Uluslararası Radyasyondan Korunma Komitesi (ICRP) tarafından yapılan, çocukların lösemi vakalarının tahminlerinin resmi risk modellerinde (yukarıda belirtildiği gibi, Hiroşima ve Nagazaki'deki verilere dayanılarak hesaplanan), Cumbria'daki (Büyük Britanya'da) plütonyum üretim tesisi etrafındaki gerçek kanser vakaları ile karşılaştırıldığında riskin yüz misli azaltıldığı görülmektedir. Bu tür risk hesaplamalarında gerçek hayatla 100 misli kadar uyumsuzluklar Almanya, Yunanistan ve Amerika Birleşik Devlet'lerinde de belirlenmiştir [43].

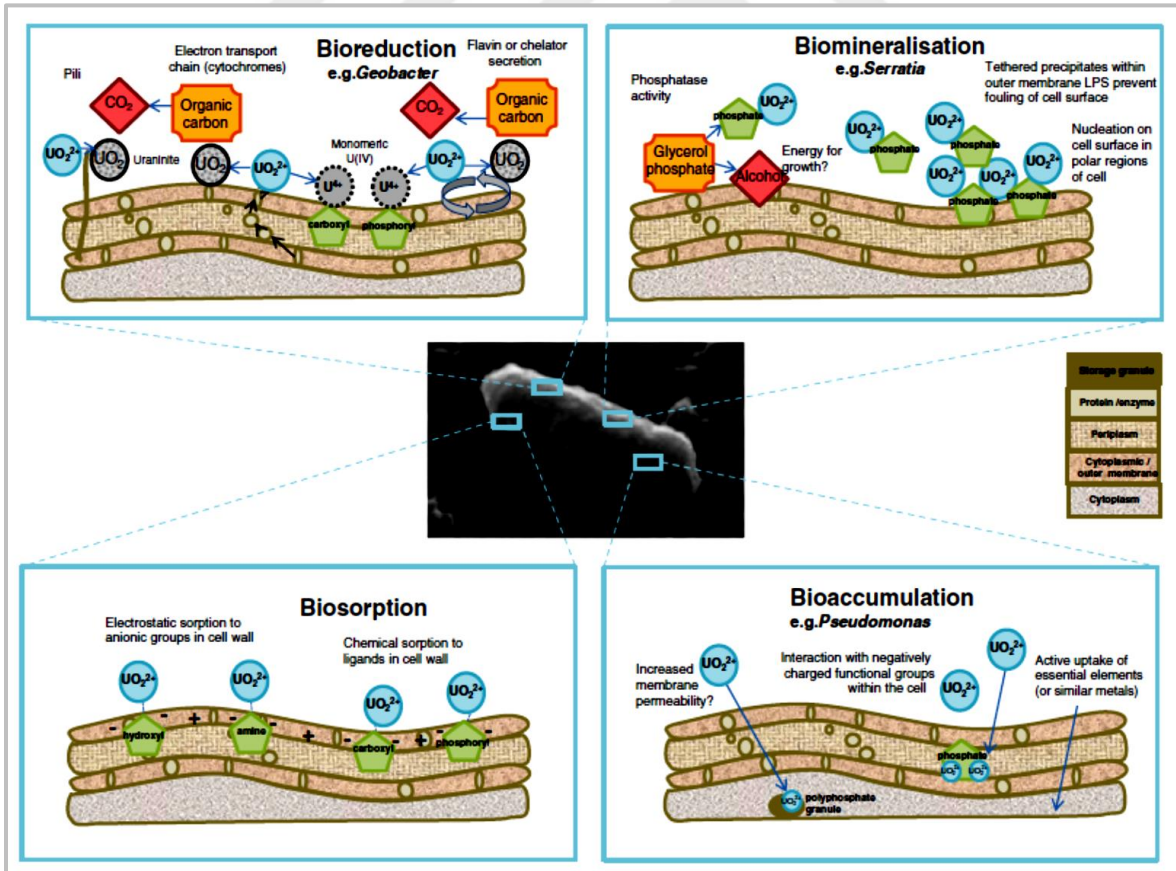
Görüldüğü gibi resmi olarak 'küçük doz' olarak nitellendirilen radyasyon konsantrasyonları o kadar da tehlikesiz değildir ve yukarıda belirtilen nedenlerden dolayı sağlığa olan tehlike derecesi de resmi olarak yanlış belirlenmiştir. Atom bombası denemeleri sonucu atmosferin radyoaktif olarak kirlenmesi küresel olduğu için, denemelerden birkaç yıl sonra yeryüzünün istisnasız tüm bölgelerinde uzun ömürlü ("sonsuz") radyonüklidler düşmüştür. Sonuçta 1960'ların ortalarından bu yana birçok ülkede gıdalarda radyoaktif stronsiyum-90 konsantrasyonu radyasyon güvenlik standartlarının (125 Bq/L süt ve içmesuyu için) izin verilen maksimum konsantrasyonunu aşmıştır ve tüm insanlar 'küçük doz' seviyelerindeki radyasyona maruz kalmıştır. Bundan dolayı, son yıllarda dünyada kanser, Down sendromu ve ölü bebek doğum vakalarındaki artış da tesadüf değildir [44], [45], [46], [47].

2.3. Sudaki Uranyumun Biyoteknolojik Arıtma Yöntemleri

Son yıllarda uranyumun çözüldüğü uzaklaştırılması için mikroorganizmaları kullanan birkaç biyoteknolojik yöntem geliştirilmiştir. Bunlar genel olarak 3 grup altında toplanmaktadır:

1) iyi çözünen U(VI)'nın çözünmeyen U(IV) şekline mikroorganizmalar tarafından

enzimatik olarak indirgenmesi ve sonuçta suda çözünmeyen U(IV)'ün çöktürülerek uzaklaştırılması (enzimatik indirgeme), 2) canlı mikroorganizmaların bünyesine uranyumun hücre membranındaki organik bileşiklerle kompleksler şeklinde alınması (biyoakümülyasyon) ve 3) ölü ve canlı mikroorganizmaların hücrelerinin dış membranı tarafından uranyumun adsorplanması (biyoadsorpsiyon) (Şekil 2.5) [48]. Uranyumun biyoteknolojik arıtım için mikroorganizmaların çeşitli türleri: bakteriler, yosunlar [49], [50], [51], [52], mayalar [53], [54] ve algler [55] kullanılmıştır. Arıtım için kullanılan mikroorganizmaların büyük çoğunluğu uranyum atıklarının bulunduğu bölgelerdeki mikroorganizma kültürlerinin laboratuvara getirilerek yetiştirilmesiyle alınmıştır, bazılarının ise önce uranyumun toksisitesine karşı olan toleransı belirlenmiş daha sonra da uranyumu arıtılabilirliği denenmiştir. Örneğin, *Deinococcus Radiodurans* bakterisinin çok yüksek radyasyon dozunda (5000-30000 Gray) bile yaşayabileceği saptanmıştır [56]. Bu bakteri uranyumun arıtımı için kullanıldığında olumlu sonuçlar elde edilmiştir. *Deinococcus R.'a* genetik olarak fosfat üreten periplazmik asit fosfotaz PhoN geni verilmekte ve oluşan fosfat uranyumla birleşerek çökelti oluşturmaktadır [57].



Şekil 2.5. Uranyumun Biyoteknolojik Arıtma Yöntemleri [48].

Enzimatik İndirgeme

Uranyum gibi ağır metallerin bakterilere olan toksisitesi, hücrede hayati önemi olan iyonların yerine geçmesi veya enzim, besin maddeleri gibi önemli biyokimyasal moleküllerin fonksiyonel gruplarını bloke etmesinden kaynaklandığı varsayılmaktadır. Ancak, uranyumun derişik halde olduğu yerlerde de mikroorganizmaların bol miktarlarda bulunduğu tespit edilmiştir [58]. Böyle mikroorganizmaların uranyuma olan dayanıklılığının nedeni laboratuvar şartlarında incelendiğinde, bunların dışarıya enzim salgılayarak suda iyi çözünen U(VI)'nın çözünmeyen U(IV)'e indirgeyerek biyolojik akümülyasyona elverişsiz hale dönüştürdükleri belirlenmiştir [59]. Bu mikroorganizmaların uranyumun çözeltilisinden ayrıştırılması yani uranyumla kirlenmiş suların arıtılması için kullanılabileceğı sonucuna varılmıştır. Böyle mikroorganizmalara hipertermofilik archeon, termofilik bakteriler, mezofilik demir ve sülfatı indirgeyen bakteriler ve fermentatif bakteriler girmektedir [60]. Bunların arasında özellikle demir ve sülfatı indirgeyen bakteriler olan *Geobacter* [61], [62], *Shewanella* [63] ve *Desulfovibrio* [63] v.s. türlerinin uranyumu indirgemesi yoğun bir biçimde araştırılmıştır. Bu bakterilerin hepsi anaerobik oldukları için havasız şartlarda kullanılmaktadır ve genellikle oksijenin kısıtlı olduğu yeraltı suyuındaki uranyumun giderilmesi için iyi alternatif olarak düşünülmektedir. Sülfat indirgeyen bakteriler elektron verici olarak laktat ve H₂ [64], elektron alıcı olarak da sülfat, thiosülfat, sülfür, nitrat, nitrit, Cr(VI), Mn(IV), Fe(III), Tc(VII) ve U(VI) kullanabilmektedir [65].

Sülfat, nitrat gibi daha güçlü elektron alıcıların varlığı, 5000mg/l gibi yüksek konsantrasyonlarda bile U(VI)'nın sülfat indirgeyen bakteriler tarafından indirgenmesine engel olmadığı, sülfat ve uranyumun böyle bakterilerle aynı zamanda indirgendiği; ancak bakırın, demirin (III) ve organik ligantların uranyumun indirgenmesinde inhibe etkisi meydana getirdiğı gözlenmiştir [64], [66]. Daha derin araştırmalar sonucu sülfat indirgeyen bakterilerin uranyumu elektron alıcı olarak kullanmasına nazaran bu süreci enerji kaynağı olarak kullanmadığı, ancak kendini toksik metalden savunmak için uranyumu indirgediğı ortaya çıkmıştır. Bu durum neden sülfat ve nitratın varlığının uranyumun indirgenmesine engel olmadığını açıklamaktadır. Bu bakterilerin diğeri bir avantajı; büyümesi için ekstra besin maddeleri ve vitaminlere ihtiyaç duymaması ve sülfat indirgeyen bakterilerin sülfatı indirgediğinde ortaya çıkan sülfür Mn²⁺, Zn²⁺, Pb²⁺ ve Fe²⁺ gibi ağır metallerle birleşince çökelti oluşturduğu için bunların toksik etkilerini ortadan kaldırmasıdır [67]. Ancak doğal şartlarda sülfat indirgeyen *Desulfovibrio* türleri deniz suyunda, demir indirgeyen *Geobacter*

ve *Shewanella* türleri de içme suyu içeren yeraltı sularında daha sık rastlanmıştır [62]. Bu yüzden yeraltı suyu arıtımında demir indirgeyen bakteriler olarak bilinen *Shewanella* ve *Geobacter* türleri daha çok araştırılmıştır. Bu türler elektron alıcısı olarak Fe(III) dışında Mn(IV), nitrat, nitrit, thiosülfat, sülfite trimetilamine, N-oxide, dimetil sülfoksit, fumarate, U(VI), Tc(VII), Cr(VI), sülfür, karbon tetraklorür gibi element ve bileşikler ve elektron verici olarak genellikle etilen, asetat (*Geobakter*) ve hidrojen (*Shewanella*) kullanabilmektedirler [68]. Yani sülfat ve demir indirgeyen bakteriler organik atıkları elektron verici olarak kullanabilirler, çünkü organik bileşikler hidroliz ve fermantasyon sonucu, H₂, asetat veya etilene ayrılmaktadırlar [69], dolayısıyla organik atık sorunu da çözülmüş olmaktadır. *Geobakter*'in ise daha basit besin ihtiyacı vardır, azot kaynağı olarak atmosferdeki azotu yakalama kabiliyetine sahiptir [58]. Ancak sülfat indirgeyen bakterilere nazaran bu bakteriler uranyumu enerji kaynağı olarak kullandıkları için yukarıda sıralanan elektron alıcılardan uranyumdan daha önce gelenleri elektron alıcı olarak U(VI)'dan daha çok tercih etmektedirler. Dolayısıyla bunların hepsi uranyumun indirgenmesinde engel yaratan koşulları oluşturmaktadırlar. Sülfat ve demir indirgeyen bakteriler bazı çevresel etkenlere karşı çok hassas olmasına rağmen uranyuma karşı seçici olarak davrandıkları için ve aynı bakteriler enzim üreterek sürekli uranyumu indirgedikleri için bakterilerin sürekli yenilenmesi gerekmektedir ve bakteriler bertaraf işlemigerektiren sorunlar meydana getirmemektedir. Ayrıca yukarıda belirtildiği gibi özel besin ihtiyacı olmadığı için uranyumun arıtılmasında çok avantajlı seçenek hale gelmektedir. Böyle bakterilerin uranyuma karşı seçici davranmasına neden olan *Cytochrome c3* proteini genetik deneyler sonucu belirlenmiştir [65]. Ancak, çevreye olan etkilerini azaltmak ve sudaki uranyumun indirgenmesini inhibe eden (Cu, ağır metaller v.s.) ve uranyumun geri U(VI) haline dönmesine neden olan (O₂, NO₃, NO₂) bileşiklerin giderimi için, uranyumla kirlenmiş suların pump-and-treat denilen, kaynağından alınarak arıtıma engel olan bu bileşenlerin dışarıda arıtımı sağlanabilmektedir. Uranyum böylece sudan tamamen uzaklaştırılmış olur ve geri oksitlenme gibi sorunlar yaşanmaz. Yani uranyumun bu tür bakteriler ile arıtılabilmesi için uygun reaktör tipi seçilmeli arıtıma engel olan bileşiklerin biyoteknolojik giderimi için de uygun mikroorganizma türleri belirlenmeli ve karışık bakteri türleri kullanılarak suyun arıtımı araştırılmalıdır.

Bu bakterilere nazaran aerobik şartlarda da uranyumu indirgeyen, yani geri oksitlenme sorunu olmayan 65-80°C gibi yüksek sıcaklıkları tercih eden *Thermus scotoductus* bakterisi bulunmuştur [70]. Bu bakteriler uranyumu indirgedikten sonra kendi bünyesine

absorpladıkları için uranyumu geri oksitlenmesi sorunu yaşanmamaktadır. Ama bunların zamanla uranyum absorblama kapasitesinin tamamlanması gibi olumsuz yanı olduğu için, bakterilerin sürekli yenilenmesi gerekmektedir. Ama yine de bu bakteriler oksijenin bol olduğu yüzeysel sularda, özellikle havanın sıcak olduğu bölgelerde uranyumla kirlenmiş suların yerinde (in-situ) arıtımı için çok verimli biyoteknolojik bir yöntemdir. Burada ise engelleyici bileşenlerin olup olmayacağı konusunun araştırılması gerekmektedir. Bu bileşiklerin bulunması halinde, bunların giderimi için uygun biyoteknolojik yöntemler geliştirilmelidir.

Bu bakterilerin dışında *Cellulomonas* [71], *Pseudomonas fluorescens*, *Clostridium sp.* [60], *Pseudomonas sp.*, *Pantoea*, *Enterobacter sp.* [72] gibi bakteri türlerinin de U(VI)'yı U(IV)'e indirgedikleri laboratuvar şartlarında araştırılmıştır. Yüksek radyasyon dozuna (10-15kGy) dayanıklı *Deinococcus radiodurans* aerobik gram pozitif bakterileri fosfotaz asitleri oluşturarak uranyumu fosfat halinde çöktürdükleri de tespit edilmiştir [57]. Yapılan bu araştırmaların hepsi laboratuvar şartlarında ve tek tür kullanılarak yapılmıştır. Doğal sularda bol miktarda bulunan çeşitli indirgeyici etkilerin nasıl önleneceği ve çevresel şartların nasıl optimize edilmesi gerektiği göz önüne alınmamıştır, dolayısıyla büyük başarı göstermelerine rağmen doğal sudaki uranyumun arıtılması için daha geliştirilmiş yöntemlere ihtiyaç duyulmaktadır. 'In-situ' denilen yöntemde, uranyumun arıtımının direkt uranyumlu atık sularda yapıldığı birkaç çalışma da vardır. Uranyumun in-situ gideriminde başarılı çalışmalar Old Rifle'de (Colorado), Oak Ridge National Laboratory (TenN.E.S.see), San Juan River in Shiprock'da (Mexico), the Midnight Mine in Stevens Country'de (Washington) yapılmıştır [62], [61], [60]. Ancak, bu çalışmalarda, yeraltı suyundaki uranyumun indirgenmesi için etilen, asetat yada laktat gibi elektron vericilerin enjekte edilmesinin yeterli olduğu, bu şekilde uranyumu indirgeyecek demir, sülfat indirgeyen bakterilerin kendi kendine çoğalarak, metalin indirgemisini sağladıkları iddia edilmektedir. Ayrıca, burada da yine doğada bulunan indirgeyici bileşenler (ağır metaller, diğer elektron alıcılar) ve indirgenen uranyumu tekrar yükseltgeyebilecek faktörler (oksitleyiciler, nitratlar, nitritler v.s.) göz ardı edilmiştir. Bu yüzden bu çalışmalardan elde edilen başarılar uzun süreli olmamıştır. İren O. ve arkadaşları bu yöntemle arıtılmış yeraltı suyunun, kesin olarak Old Rifle'da (Colorado) uranyum bileşenlerini araştırdığında, uranyumun tekrar U(VI) şekline döndüğünü belirlemişlerdir. Dolayısıyla doğal sudaki uranyumun arıtılması bu araştırmalarda bahsedildiği gibi kolay olmamakla birlikte, bir tek elektron vericinin (etonol, laktat, H₂ v.s.) doğal suya enjekte edilmesi yeterli değildir.

Biyoakümülyasyon

Radyoaktif bir metalin, bazı mikroorganizmaların biyolojik fonksiyonları için gerekli olmamasına rağmen kendi bünyesinde akümüle ettiđi gözlenmiştir [73]. Uranyumun mikroorganizmanın bünyesine alınması pH ve K⁺ konsantrasyonuna bađlıdır. Çünkü uranyumun hücrede absorplanması bünyedeki potasyumun (K⁺) taşıma sistemi tarafından gerçekleştirilmektedir. Bazı mikroorganizmalar ise radyonüklide bağlanmak için özel biyomolekülleri (peptidler) üretmektedirler [74]. Uranyumun biyoakümülyasyonu için *Pseudomonas aeruginosa* gram negatif bakterisi [75], [76], *Bacillus sphaericus* JG-A12 bakterisi [77], *Arthrobacter* G975 gram pozitif aerobik bakterisi [78], *Rhodocyclaceae*, *Clostridium* genus anaerobik bakterileri, *leguminous* bitkisiyle genetik olarak metallothionin enzimi yerleřtirilmiş *Escherechia coli* bakterisinin simbiyozu [79] gibi mikroorganizmalar laboratuvar şartlarında denenmiş ve sudaki uranyumun %43-99 civarında arıtıldığı sonuçları elde edilmiştir. Bu yöntemde kalsiyum, karbonat gibi element ve bileřikler uranyumla kompleksler yarattığı için metalin akümülyasyonu için engel oluşturmaktadır. Biyoakümülyasyon yönteminin dezavantajları: uranyuma karşı seçici olmaması dolayısıyla uranyum dışında başka metal ve bileřikleri de akümüle ettiđi için mikroorganizmanın hızlı tıkanması ve sürekli yenilenmesinin gerekliliđi; sürekli mikroorganizma yenilendiđi için bertaraf edilmesi gereken büyük miktarlardaki mikroorganizma atıklarının oluşması; dođal sularda bol miktarlarda bulunan CaCO₃, karmařık organik bileřikler uranyumla kompleksler oluşturarak uranyumun biyoakümülyasyonunu engellemesi, dolayısıyla bu bileřiklerin daha önce giderimi gerektirmesi sebebiyle bu yöntemin in-situ olarak kullanılması uygun deđildir.

Biyosorpsyon

Biyosorpsyon yönteminde mikroorganizmaların ölü hücreleri kullanılmaktadır. Böyle hücreler çevresinde mevcut olan element (onların içinde uranyumu da) ve bileřikleri difuzyonla kendi bünyelerine almaktadırlar. Bu yöntem için mikroorganizmaların herhangi türü kullanılabilir. Burada mikroorganizmaların içinden kütle başına absorplanan metal kütlesi en yüksek olanı arıtım için tercih edilir. Bu yöntemle arıtmak için en çok fungus denilen mantar türleri denenmiştir. Örneđin, *Lentinus sajor-caju* [50], *Tramets versicolor*, *Phanerochaete chrysosporium* [51], *Aspergillus fumigatus* [52], *Rhizopus arrhizus* [52] fungus türleri uranyumun biyosorpsyonu için denenmişler ve %95 varan uranyum giderim sonuçları elde edilmiştir. Bunların dışında uranyumun biyosorbenti olarak *Sporotalea* genus, *Rhodocyclaceae* anaerobik bakteri türleri [80], *Citrobacter freudii* bakterisi [81], *Rhodotorula glutinis* mayası [53], *Sargassum fluitans* algleri [55] de denenmiş ve başarılı

sonular elde edilmiřtir. Bu yntemde l hcreler kullanıldıkları iin bunların evre etkilerine ve inhibitrlere karřı hassas olmaması ve ek besine ihtiyaı olmaması gibi avantajlı noktalarının yanı sıra, l hcreler oğalmadığı iin kullanılmış hcrelerin yerini srekli zel řartlarda oğaltılmış ve ldrlmř bu trlerin yenileriyle yenilenmesi gibi dezavantajları mevcuttur. Bu nedenle, istenilen hcrelerin oğaltıp, iřlemlere tabi tutulması amacıyla ayrı alıřmalara ihtiya duyulmaktadır. l mikroorganizmaların hazırlanması iin eřitli fiziksel iřlemler gerekmektedir. rneğın yukarıda sıralanmış mikroorganizmaları ldrmek iin 70°C'nin zeri yksek sıcaklıklar kullanılmıştır. Yani l mikroorganizmaların elde etmek iin ek ekipman, ek enerji ve dolayısı ile ek masraflar gerekmektedir. Diğerk bir dezavantajı ise daha nceki yntemde olduėu gibi burada da tıkanma, oluřan mikroorganizma atıkları ve metale karřı seici olmadığı iin besi da minerallerini de absorplayarak gidermesi gibi sorunları meydana getirmesidir.

Burada grldėu gibi uranyumun farklı biyoteknolojik arıtım yntemlerinin dezavantajlı noktaları da vardır. Bu yntemlerin dezavantajlı yanlarını en aza indirecek kolay ve masrafsız yntemler kullanılarak geliřtirilmelidir.

3. AMAÇ VE KAPSAM

Uranyum çok düşük konsantrasyonlarda bile olsa sağlık için çok tehlikelidir. Çeşitli kullanım amaçlı asitlerle/bazlarla oksitlenerek suda iyi çözünen hale getirilen uranyum sulara karışınca daha çabuk dağılarak tehlikesi daha çok artmaktadır.

Sudaki uranyumun arıtımı için mevcut olan fiziksel, kimyasal yöntemler (çöktürme, koagülasyon, membran perosesleri ve iyon değiştirme [77] doğal ve içme suların arıtımında pahalı teknoloji ve kimyasallara gereksinim duyulması ve özellikle az konsantrasyondaki metalin arıtımı için hiç etkin değildir [76]. Bu yöntemlerle 1 ton radyoaktif atığın arıtımının maliyeti 1000\$'dir [73]. Örneğin, Amerikadaki sıvı ve katı toplam radyoaktif atıkların toplamının mevcut yöntemlerle arıtılması trilyon dolar, İngilterede ise 50 milyar sterline mal olacağı hesaplanmıştır [48]. Bu yüzden mikroorganizmaları kullanan, düşük maliyeti, herhangi bir kompleks ekipman gerektirmeyen, etkili ve tehlikesiz biyoteknolojik yöntemlere olan ilgi son 10 yıl içinde çok artmıştır.

Bundan dolayı bu çalışmanın amacı; biyoteknolojik yöntemler kullanarak laboratuvar şartlarında sudaki uranyumun mikroorganizmalar ile arıtılmasının anaerobik ve aerobik kesikli reaktör deneylerinin gerçekleştirilmesi ve sonuçlarının hesap ve analizlerinin yapılması olarak belirlenmiştir. Bu amaca ulaşmak için aşağıdaki hedeflere ulaşılması planlanmaktadır:

- ✓ Uranyuma dayanıklı karışık anaerobik mikroorganizmaların (U.D.K.M.) geliştirilmesi,
- ✓ Geliştirilen U.D.K.M.'ın çoğaltılması ve sudaki uranyumun giderilmesinin anaerobik kesikli reaktör deneylerinde kullanılması,
- ✓ U.D.K.M. ile sudaki uranyumun giderilmesinde farklı uranyum konsantrasyonları, farklı pH ve farklı ORP, canlı ve ölü mikroorganizma türlerinin kullanılması ve optimal şartların belirlenmesi,
- ✓ Kinetik ve termodinamik hesaplamalarının ve VisualMINTEQ programı analizinin yapılması,
- ✓ Sülfat İndirgeyen Bakterilerin (S.İ.B.) izolasyonu ve çoğaltılması,
- ✓ S.İ.B. ile farklı pH ve ORP değerlerinde sudaki uranyumun giderim anaerobik kesikli reaktör deneylerinin yapılması,

- ✓ Farklı fiziksel-kimyasal parametrelerin (pH, sıcaklık, alg konsantrasyonu, uranyum konsantrasyonu, alglerin canlı yada ölü olması) sudaki uranyumun kullanılan anaerobik bakterilerle giderimindeki etkilerinin belirlenmesi,
- ✓ Sonuçların analizi, optimal şartların belirlenmesi, kinetik ve termodinamik hesaplamalarının ve VisualMINTEQ programı analizinin yapılması.

Sudaki uranyumun adsorpsiyonla gideriminde mikroalglerin etkinliğinin belirlenmesi amacıyla aşağıdaki çalışmalar yapılmıştır:

- ✓ *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalglerinin çoğaltılması,
- ✓ Algler ile aerobik kesikli reaktörlerde sudaki uranyumun giderim deneylerinin farklı uranyum ve alg konsantrasyonlarında, canlı ve ölü alg türleriyle yapılması,
- ✓ Box-Behnken programının yardımıyla farklı fiziksel-kimyasal parametrelerin (pH, sıcaklık, alg konsantrasyonu, uranyum konsantrasyonu, alglerin canlı yada ölü olması) sudaki uranyumun alglerle giderimindeki etkilerinin belirlenmesi,
- ✓ İzoterm, Kinetik çalışmaların yapılması ve optimal koşulların belirlenmesi.
- ✓ Sonuçların analizi ve hesaplamaların yapılması,
- ✓ ‘Cytochrome C₃’ proteinin ekmek mayasından elde edilmesi,
- ✓ ‘Cytochrome C₃’ ile anaerobik kesikli reaktör deneylerin yapılması,
- ✓ Sonuçların analizi.

4. MATERİYAL VE METODLAR

4.1. U.D.K.M. ile Yapılan Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metodları

4.1.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroorganizma Kaynağı

Uranyuma dayanıklı karışık kültürlerin geliştirilmesi için mikroorganizma kaynağı olarak Ankara Tatlar Atıksu Arıtma tesisinden alınan anaerobik çamur kullanılmıştır.

Bunun yanında Beef extract, Yeast extract, Peptone, Glucose, Sodyum hidroksit ve laktik asit (pH düzenleyici) ('VWR Chemicals') kullanılmıştır.

4.1.2. Uranyuma Dayanıklı Mikroorganizmaların Elde Edilmesi ve Çoğaltılması

Uranyuma dayanıklı karışık kültürü elde etmek için laboratuvar şartlarında anaerobik çamurdaki mikroorganizmalar, tüm mikroorganizma türlerinin gelişmesi için elverişli olan 'Complex Media' (Çizelge 4.1) besin ortamında [82] çeşitli uranyum konsantrasyonları ve farklı pH değerlerinde çoğaltıldı.

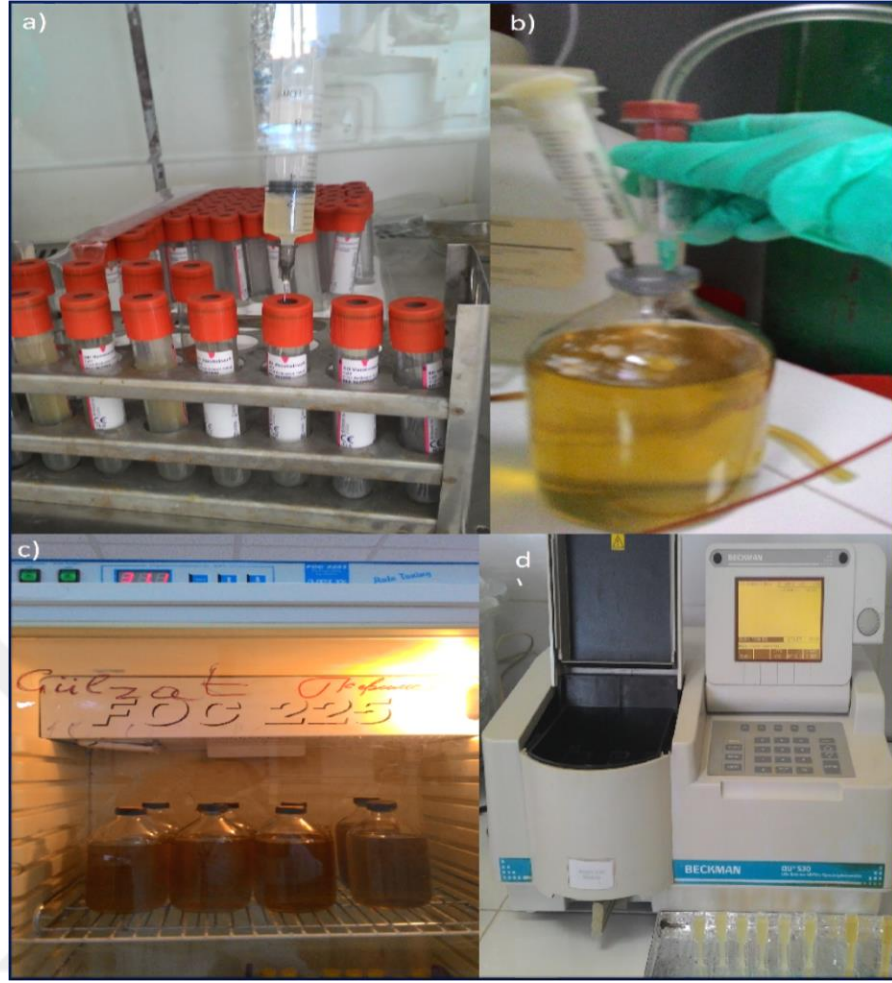
Çizelge 4.1. 'Complex Media' Besin Ortamı

Bileşenler	Miktarı	Bileşenlerin Fonksiyonları
Beef extract	1.5 g	Vitamin ve diğer üreme faktörlerinin kaynağı
Yeast extract	3.0 g	Vitamin ve diğer üreme faktörlerinin kaynağı
Peptone	6.0 g	Aminoasitler, N, S ve P kaynağı
Glucose	1.0 g	Karbon (C) ve enerji kaynağı
Su	1000 ml	

50mg/L, 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L konsantrasyonlardaki uranyum çözeltileri ve besin ortamı içeren çözeltiler, 20 dakika 121°C'de otoklavlandıktan sonra her bir konsantrasyondaki çözeltilerden 4'er tekrar olmak üzere 16 adet havasız vakum tüpüne 10ml'lik steril şırınganın yardımıyla 10mL çözelti koyulmuştur (Şekil 4.1. a).

Her bir konsantrasyon için (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L) 1.'si standart (kontrol) olup, diğerlerinin pH'ı 4, 7, ve 10'a ayarlanmıştır. Standart çözeltilerin bulunduğu tüplerin dışındaki tüplere 1mL anaerobik çamur eklendi ve inkübatörde 31°C'de 7 gün inkübasyona bırakıldı. Bakterilerin çoğalması spektrofotometre yardımıyla 600nm ışık boyutunda absorbansları ölçmek suretiyle günlük olarak izlenmiştir.

7. günün sonunda yukarıda belirlendiği şekilde hazırlanan 16 yeni tüpe inkübe edilen tüplerden 1'er mL aktarma yapılmıştır. Bu aktarma işlemi birkaç kez tekrarlanmıştır. Spektrofotometreyle her gün biyoksitleölçümleri yapılmıştır.

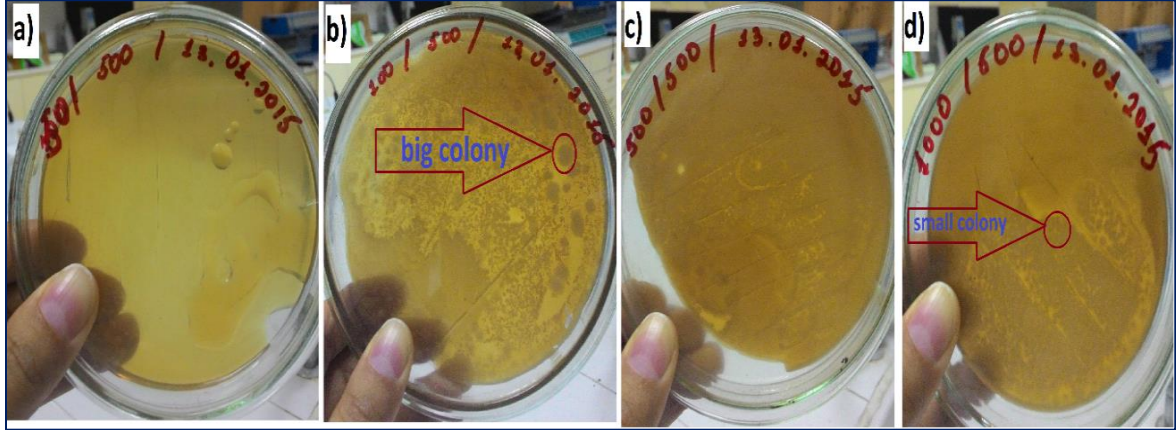


Şekil 4.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin izolasyonu: a) çeşitli uranyum konsantrasyonlarında (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L, 1000mg/L) ve farklı pH değerlerinde (4, 7 ve 10) mikroorganizmaların yetiştirilmesi, b) U.D.K.M.'lerin reaktörlerde kullanılmak amaçlı uranyum içermeyen besin ortamına aktarılması ve anaerobik şartların sağlanması için azot gazı verilmesi, c) U.D.K.M.'ların inkübatörde 31°C'de çoğaltılması, d) U.D.K.M.'ların izolasyonu ve çoğaltılması esnalarında 600nm dalga boyunda sürekli spektrofotometrik ölçümlerin yapılması.

Bu şekilde elde edilen uranyuma dayanıklı karışık kültürler (U.D.K.M.), daha önce hazırlanıp otoklavlanmış agar içeren petri kaplarına aktarıldı.

Sudaki uranyumun giderimi için yapılan kesikli reaktör deneylerde kullanılmak üzere elde edilen U.D.K.M.'lerden uranyuma en dayanıklı kültürler seçildi. Bunun için daha önce farklı uranyum konsantrasyonlarında yetiştirilmiş U.D.K.M.'lar, 'Complex Media', agar ve 500mg/L uranyum içeren petri kaplarına ekilerek inkübatörlerde büyütüldü. Sonuçta daha önce 50mg/L uranyum konsantrasyonunda yetiştirilen U.D.K.M.'lar 500mg/L uranyum içeren besin ortamında hiç büyüme göstermemiştir. Daha önce 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L uranyum konsantrasyonlarında yetiştirilen U.D.K.M.'larda ise büyük ve küçük kolonilerin büyüdüğü gözlemlenmiştir. Bunların arasından uranyum giderimi kesikli reaktör

deneylerinde kullanılmak üzere bir büyük koloni ve bir de küçük koloni seçilmiştir. Büyük koloni daha önce 100mg/L uranyum konsantrasyonlarında yetiştirilip sonra 500mg/L uranyum içeren petrilere yetiştirilmiştir. Küçük koloni ise uranyumun en büyük konsantrasyonu olarak seçilen 1000mg/L uranyum ortamında yetiştirilmiş olan petriden alınmıştır (Şekil 4.2).



Şekil 4.2. Farklı uranyum konsantrasyonlarında büyüyen U.D.K.M.'ların 500mg/L uranyum içeren besin ortamında büyümesi: a) daha önce 50mg/L uranyum içeren ortamda büyüyen U.D.K.M.'lar, b) daha önce 50mg/L uranyum içeren ortamda büyüyen U.D.K.M.'lar, c) daha önce 50mg/L uranyum içeren ortamda büyüyen U.D.K.M.'lar, d) daha önce 50mg/L uranyum içeren ortamda büyüyen U.D.K.M.'lar

Kesikli reaktör deneylerinde kullanılmak için petrilere büyüyen mikroorganizmalar daha önce hazırlanıp 120°C'de otoklavlanmış ve azot gazıyla 'Hungate Yöntemi' [83] kullanılarak anaerobik hale getirilmiş olan 'Complex Media' besin ortamına aktarılmıştır ve 31°C'de inkübatörde çoğalması sağlanmıştır. Mikroorganizmaların büyümesi spektrofotometre yardımıyla 600nm dalga boyunda ölçülmüştür (Şekil 4.1. a, b, c, d).

4.1.3. Stok Çözeltilerinin Hazırlanması

- ✓ 1000mg/L uranyum stok çözeltisi: 1L ultra safsuda 1,647g Uranil asetat ($UO_2(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$) eklenerek çözülerek hazırlanmıştır.
- ✓ 50mL %50 NaOH çözeltisi hazırlanması: 25g NaOH 50mL saf su ile hazırlanmıştır.
- ✓ 'Complex Media' hazırlanması: 1L ultra safsuya aşağıdaki kimyasallar eklenerek manyetik karıştırıcıda sürekli karıştırılarak çözündü: 1,5g beef extract, 3g yeast extract, 6g peptone, 1g glukoz [82].
- ✓ Farklı uranyum konsantrasyonları içeren Complex Media çözeltisi: Uranyum konsantrasyonları 50mg/L, 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L olacak şekilde ayarlanmış ultra safsu çözeltilerine 'Complex Media' kimyasalları gerekli miktarlarda eklenmiştir.

- ✓ 'Basal Mineral Media'nın hazırlanması: 1L distile suya aşağıda belirtilen kimyasallar eklenmiştir: 10mM NH_4Cl , 30mM NaHPO_4 , 20mM KH_2PO_4 , 0,8mM NaSO_4 , 0,2mM MgSO_4 , 50 μM CaCl_2 , 25 μM FeSO_4 , 0,1 μM ZnCl_2 , 0,2 μM CuCl_2 , 0,1 μM Na_2Br , 0,05 μM Na_2MoO_4 , 0,1 μM MnCl_2 , 0,1 μM KI , 0,2 μM H_3BO_3 , 0,1 μM CoCl_2 ve 0,1 μM NiCl_2 . Manyetik karıştırıcıda kimyasallar tamamen çözünene kadar sürekli karıştırıldı [72].
- ✓ Arsenazo-III çözeltisi hazırlanması: 0.25g Arsenazo-III 0.5N NaOH çözeltisinde çözüldükten sonra hacmi 100mL olacak şekilde ultra safsu eklenmiştir [84].
- ✓ %10 Tartarik Asid hazırlanması: 10g Tartarik asit 100mL ultra safsuda çözünerek hazırlanmıştır.
- ✓ 2,5g/L Sodyum Hidrocarbon anoksik tampon çözeltisinin hazırlanmıştır.

4.1.4. Analitik Yöntemler

4.1.4.1. Çözeltideki Bakterilerin Kütlesinin Ölçülmesi

Çözeltilerdeki bakterilerin miktarı 600nm dalga boyunda spektrofotometrede ölçülerek belirlenmiştir. Daha sonra nm boyunda ölçülen miktarları mg/L cinsine dönüştürmek için kalibeasyon eğrisi hazırlanarak 600nm'de ölçülmüş olan belli hacimdeki çözeltinin kütleleri ölçülmüş ve 'İnterpolasyon' yöntemiyle hesaplanarak nm cinsinden mg/L'ye dönüştürülmüştür.

İnkübatörde 'Complex Media' besin ortamında büyütülmüş U.D.K.M., Nüve NF200 santrifüjünde 5000rpm hızında 20 dakika santrifüjlendikten ve 0.1 μm 'lik fiber glass filtre ile, havadan başka bakterilen bulaşmasını engellemek için UV altında, filtrelendikten sonra hassas terazide tartıldı. Sonuçta 100 mL çözeltide yaklaşık 10 mg mikroorganizma olduğu tespit edildi (Şekil 4.3).



Şekil 4.3. 'Kompleks Media'da Çoğaltılmış U.D.K.M.'ların Kütlesinin Belirlenmesi

4.1.4.2. Arsenazo Yöntemiyle Uranyum Konsantrasyonunun Ölçülmesi

Kesikli reaktörlerinden her gün 2mL örnek, steril 1mL'lik şırınga yardımıyla alınıp 10mL'lik vakum tüplerde 5000rpm hızında 10 dakika santrifüjlendikten sonra uranyum (VI) konsantrasyonu UV/Vis spektrofotometre (BECKMAN DU530Life Science) yardımıyla 'Arsenazo' yöntemi kullanılarak belirlendi. Bu yöntemle göre çözeltideki U(VI) Arsenazo III (1,8-dihydroxynaphthalene-3,6-disulfonic acid-2,7-bis[(azo-2) -phenylarsonic acid) ile kompleks oluşturmaktadır ve bu kompleks UV/Vis spektrofotometrede 651nm boyutundaki ışığı absorbe etmektedir. Kesikli reaktörlerdeki U(VI)'yı analiz etmek için santrifüjlenen 10 mL'lik vakum tüplerden 1 mL'lik şırınganın yardımıyla 0,5 mL örnek üst kısmından çekilerek 50ml'lik behere koyuldu. Üzerine 4,5 mL ultrasaf su eklendi (1:10 seyreltme). Daha sonra 1mL Arsenazo III ve 1mL %10 tartarik asit da koyuldu. Seyreltilmiş Sülfürik asit ile pH 2'ye ayarlandıktan sonra rengi pembemsi-mora dönüştü. Çözelti iyice karıştırıldıktan sonra 2 mL'lik küvete koyularak 651nm dalga boyunda spektrofotometrede ölçüm yapıldı [84].

4.1.4.3. Sülfat Konsantrasyonunun Ölçülmesi

Elde edilen uranyuma dayanıklı karışık kültürlerin içinde Sülfat indirgeyen bakterilerin olup olmadığını belirlemek için kesikli reaktör deneylerinden her gün alınan örneklerde sülfat konsantrasyonunun değişimi de Turbidimetrik yöntemle ölçüldü [85].

Sülfate indirgeyen bakterilerle sudaki uranyum giderimi anaerobik kesikli reaktör deneylerinde analitik ölçümler için deney sırasında her gün alınan örnekler santrifüjlendikten sonra 1mL şırınga ile çekilerek sülfat analizleri yapıldı. Sonra 1mL şartlandırma reagenti ile tüpte iyice karıştırıldı. Elde edilen karışıma 60mg baryum klorür eklenerek iyice karıştırıldı. Bu çözeltinin absorbansı spektrofotometrede 420nm dalga boyunda ölçülerek sülfat konsantrasyonu belirlendi [85]

4.1.5. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemleri

4.1.5.1. Termodinamik Hesaplamalar İçin

Uranyum U(VI)'nın U.D.K.M.ile indirgenmesi, elektron donörü olan glikozun oksitlenmesi eşliğinde gerçekleşmektedir. Anaerobik şartlarda bu reaksiyonun genel formülü aşağıdaki kimyasal denklem ile verilmektedir:



Uranyum U(VI)'nın S.İ.B. ile indirgenmesi, elektron donor olan laktatın oksitlenmesi ile gerçekleşmektedir. Anaerobik şartlarda bu reaksiyonun genel formülü [4.2] denklem ile verilmektedir?



Bu reaksiyonların gerçekleşmesi enerji açısından elverişli olup olmadığı, Gibbs sabit enerjisine bağlıdır. Eğer Gibbs sabit enerjisi eksi ise reaksiyon enerji açısında elverişlidir ve kendi kendinde dış enerji kaynağı olmadan da gerçekleşebilir. Gibbs enerjisi [4.3] eşitlik ile hesaplanabilir:

$$\Delta G_r = \Delta G_r^0 + RT \ln Q \quad [4.3]$$

Burada ΔG_r kimyasal reaksiyonun Gibbs sabit enerjisidir, ΔG_r^0 standard Gibbs sabit enerjisi, R – sabit, T - sıcaklık (K) ve Q - kimyasal reaksiyon sabiti ve [3] eşitliğine göre hesaplanır:

$$Q_2 = \frac{\{CH_3CH(OH)COO^-\} \{2HCO_3^-\}^2 \{5H^+\}^5}{\{UO_2^{2+}\}} = \frac{\eta \cdot (2 \cdot \eta)^2 (5 \cdot \eta)^5}{\eta} = 12500 \cdot \eta^7 \quad [4.4]$$

Efektif redok potansiyel Nernst eşitliğine göre hesaplanır [86]):



$$E_H = E_H^0 - \frac{0.059}{n} \log\left(\frac{1}{\{UO_2^{2+}\}}\right) \quad [4.6]$$

Burada E_H - efektif redoks potansiyel, n- iletilen elektron sayısı, E_H^0 - standart haldeki yarı hücre potansiyeli.

4.1.5.2. Uranyum (VI)'nın İndirgenme Hızının Hesaplanması

Uranyum (VI)'nın indirgenme hızı birinci-dereceden kinetik süreç eşitliği ile hesaplanmıştır:

$$\left(\frac{d[U(VI)]}{dt}\right) = -k[U(VI)] \quad \Rightarrow \quad \ln\left(\frac{[U(VI)]}{[U(VI)]_0}\right) = -kt \Rightarrow k = -\frac{\ln\left(\frac{[U(VI)]}{[U(VI)]_0}\right)}{t} , \quad [4.7]$$

Uranyum (VI)'nın indirgenme hızı mikroorganizma hücrelerinin yoğunluğuna da bağlıdır. Ancak burada kesikli reaktör deneylerinde çoğalma durgunluk fazına ulaşan (hücrelerin büyüme hızı azalma hızına eşit olduğu zaman) mikroorganizmalar kullanılmıştır. Bu yüzden burada hücre yoğunluğu deney süresi boyunca değişmez olarak kabul edilmiştir. Bundan dolayı birinci-dereceden kinetik modeli uranyumun indirgenme hızını hesaplamak için,

karmaşık olan Monod veya Michaelis-Menten kinetik modellerinin yerine kullanılmıştır [86].

4.2. S.İ.B. ile Yapılan Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metodları

4.2.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroorganizma Kaynağı

Sülfat İndirgeyen Bakterilerin (S.İ.B.) izolasyonu için Ankara Tatlar Atıksu Arıtma Tesisinden alınan anaerobik çamur kullanılmıştır. Bakterilerin izolasyonu için kullanılan kimyasallar: potasyum dihidrojen fosfat, amonyum klorür, yeast extract, kalsiyum klorür heksahidrat, magnezyum sülfat heptahidrat, sodyum sülfat, demir sülfat heptahidrat, laktat, ascorbic asit, sodyum hidroksit ('VWR Chemicals').

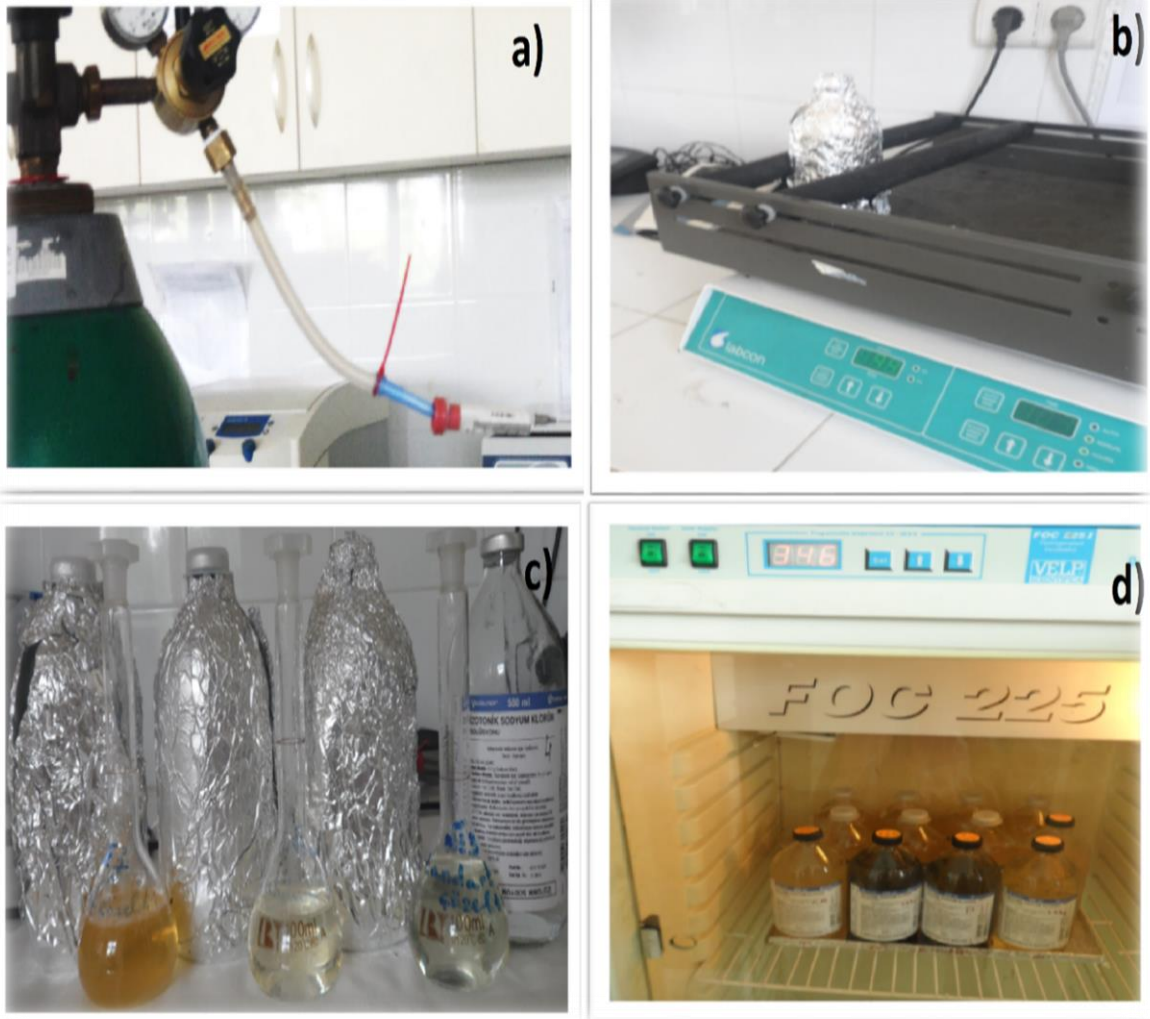
4.2.2. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu

Sülfat indirgeyen bakterilerin (S.İ.B.) çoğalma hızının düşük olmasından dolayı izole edilmesi zordur. Dolayısıyla bu bakterilerin izolasyonu için özel ve seçkin bir besin ortamı gerekmektedir. Sülfür indirgeyen bakterilerinin besin ortamı olarak en sık kullanılan: 1) Postgate, 2) B. Starkey, 3) Baar's, 4) API besin ortamlarının (Çizelge 4.2) bu bakterilerin çoğalmasına olan etkileri araştırıldığında Postgate B besin ortamının en iyi olduğu görülmüştür [87]. Bu yüzden bu çalışmada sülfat indirgeyen bakterilerin izolasyonu için Postgate B besin ortamı kullanılmıştır. Ayrıca ascorbic asit S.İ.B.'in indirgeme kapasitesini arttırmak için eklenmiştir.

Çizelge 4.2. Sülfat İndirgeyen Bakteri Kültürleri İçin Besin Ortamları, g/L

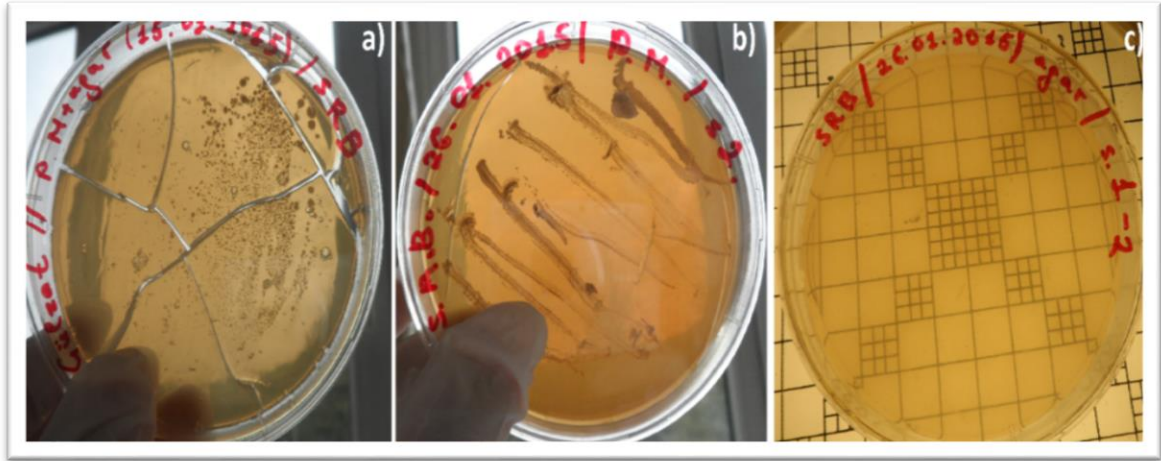
Chemical ingredient	Postgate B	API	Starkey	Baar's
KH_2PO_4	0.5	0.01	0.5	0.5
NH_4Cl	1.0	-	1.0	1.0
Na_2SO_4	1.0	-	1.0	-
$\text{CaCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	0.1	-	0.1	-
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	2.0	0.2	2.0	2.0
Sodium Lactate (60 –70%)	5 ml	4ml	5 ml	5ml
Yeast extract	1.0	1.0	-	-
Ascorbic acid	0.1	0.1	0.1	0.1
Thioglycollic acid	0.1	0.1	0.1	0.1
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.5	-	-	-
NaCl	26	26	26	26
$\text{Fe}(\text{SO}_4)_2(\text{NH}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	-	0.2	0.5	0.5
CaSO_4	-	-	-	1.0
Sea water	500 ml	500 ml	500 ml	500 ml
Distilled water	500 ml	500 ml	500 ml	500 ml
pH	7-7.5	7-7.2	7-7.3	7-7.5

Besin maddeleri 500ml'lik serum şişelerine steril şırınga ile beslenmiştir. Sonra 121°C'de 20 dakika otoklavda sterilize edildi. Sterilize edilen besin ortamında, Hungate yöntemiyle anaerobik şartları sağlamak için ağzı kauçuk kapak ile kapatılan şırınga aracılığıyla N_2 gazı, besin çözeltisi içeren serum şişesine enjekte edildi. Gazın serum şişesine verilmesi çözeltide kabarcıkların oluşumu durulana kadar devam edildi. Sterilize edilmiş ve anaerobik şartlar sağlanmış bu besin ortamına 5ml anaerobik çamur steril şırınga ile eklendi. Sülfür indirgeyen bakteriler mezofilik olup nötr pH'da daha hızlı çoğaldıkları için $32 \pm 2^\circ\text{C}$ sıcaklıkta ve pH 7'de 100rpm'de manyetik karıştırıcıda 7 gün süre ile inkübe edildi. Serum şişesi ışığın etkisini azaltmak için alüminyum folyo ile kaplandı. 3 gün sonra çözeltinin renginin siyahlaştığı görüldü. Bu da sülfat indirgeyen bakterilerin çoğaldığının işareti olarak görülmüştür. 7 günlük inkübasyondan sonra yukarıda verilen besin ortamı yeniden hazırlanarak bu yeni ortama 5ml şırınganın yardımıyla transfer edildi. Yeni ortamdaki bakterilerin çoğalması için yine 7 günlük inkübasyona maaruz tutuldu. Besin ortamda çoğaltılan bakterilerin yeni besin ortamına transfer edilmesi işlemi birkaç kez tekrarlandı (Şekil 4.4).



Şekil 4.4. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu: a) 'Hungate' Yöntemiyle Anaerobik Şartın Sağlanması, b) S.İ.B. Sürekli Karıştırılarak Çoğaltılması, c) Yeni Besin Ortamına Aktarılması, d) S.İ.B. İnkübasyonu

S.İ.B. için özgü olan 'Postgate' besin ortamına birkaç aktarma yapılmak suretiyle elde edilen S.İ.B.'leri saflaştırmak için petri kaplarına 'Postgate' besi ortamı eklenerek büyütüldü (Şekil 4.5a). Agar ortamında büyüyen S.İ.B.'lerden bir koloni seçilerek yeni besi ortamı içeren petri şişesine aktarıldı. Oradan koloni seçilerek yine yeni besi ortamına aktarılmak suretiyle birkaç aktarma işi kültürün saflaştırılması için yapılmıştır (Şekil 4.5b). Ayrıca 'Postgate' besi ortamı içermeyen sade agar ortamında S.İ.B.'lerin hiç büyüme göstermediği gözlenmiştir (Şekil 4.5c).



Şekil 4.5 S.İ.B.’lerin Petri Şişelerinde Saflaştırılması: 1) 1. Aktarma Sonucu Bakterilerin Büyümesi, b) En Son Aktarma Sonucu, c) Sade Agar İçeren Ortamda Bakterilerin Büyümemesi

Saflaştırılmış S.İ.B.’ler sudaki uranyumun giderimi için kesikli reaktör deneylerinde kullanılmak üzere anaerobik şartlarda $30 \pm 2^\circ\text{C}$ sıcaklıkta inkübatörde çoğaltıldı (Şekil 4.4d).

4.2.3. Stok Çözeltilerin Hazırlanması

✓ ‘Postgate’ Besin Ortamının Hazırlanması: Çizelge 4.2’de gösterilen kimyasallar, 1L ultra safsuda gereken ölçülerde manyetik karıştırıcıda iyice karıştırılmak suretiyle eklendi. Daha sonra 121°C ’de 20dakika otoklavda sterilizasyonu yapıldı.

✓ Şartlandırma Reagentinin Hazırlanması: 1L ultrasafsuya 150g NaCl ve 200mL %95 etanol eklenerek hazırlandı.

4.2.4. Analitik Yöntemler

Burada sülfat ve uranyum konsantrasyonları daha önce belirtilen ‘Turbidimetrik’ ve Arsenazo-III’ yöntemleri kullanılarak ölçülmüştür.

4.2.4.1. Hidrojen Sülfür Gazının Ölçülmesi

Çözeltide sülfat indirgeyen bakterilerin önemli indikatörü (göstergesi) indirgenen sülfürün, H_2S hidrojen sülfür gazına dönüşmesidir. Yani H_2S gazının konsantrasyonunu ölçerek sülfat indirgeyen bakterilerin çoğalma hızları belirlenebilmektedir. Çözeltideki H_2S spektrofotometrik yöntemle ölçülebilir. Bu teknik HS^- iyonunun 230nm boyunda ışığı absorblamasına dayanır. Ölçmeden önce analiz edilecek örneğin pH’ı 8 üzerine çıkartılması gerekmektedir. pH 8’de sülfidin %95’ten fazlası HS^- iyonu halinde bulunmaktadır [88].

H_2S ’ün analizi için önce ağzı kauçuk ile kapatılmış tüpte anaerobik şartlar daha önce bahsedilmiş Hungate yöntemiyle sağlanmıştır. Azot gazıyla oksijenin süpürüldüğü örnek

çözeltiden şırıngayla alınmış ve NaOH (%50) çözeltisi pH değerini 8'e yükseltmek için eklenmiştir. 5 dakika bekletildikten sonra spektrofotometrede 230nm dalga boyunda ölçümleri yapılmıştır.

4.3. Algler ile Yapılan Aerobik Deneylerde Uygulanan Materyal ve Metodlar

4.3.1. Kullanılan Kimyasallar ve Mikroalgler

Scenedesmus sp.'un kaynağı olarak daha önce Hacettepe Üniversitesi Çevre Mühendisliği Bölümünde yetiştirilmiş olan mikroalgler kullanıldı. Alglerin büyümesi için 'VWR Chemicals'ın kimyasalları kullanıldı.

4.3.2. Stok Çözeltilerinin Hazırlanması

Alglerin büyümesi için besi ortamı bileşenlerinin stok çözeltileri aşağıdaki gibi hazırlanmıştır:

- 1) 25 g/L NaNO₃ çözeltisi: 25g NaNO₃ 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır.
- 2) 2,5g/L CaCl₂·2H₂O çözeltisi: 2,5g CaCl₂·2H₂O 1L ultra saf suda çözülür.
- 3) 7,5g/L MgSO₄·7H₂O: 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır
- 4) 7,5g/L K₂HPO₄: 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır.
- 5) 17,5g/L KH₂PO₄: 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır.
- 6) 2,5g/L NaCl: 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır.
- 7) 50g/L disodyum EDTA, 31g/L KOH: 1L ultra saf suda çözülerek hazırlanır.
- 8) 4,98g/L FeSO₄·7H₂O 1L asitlenmiş suda çözülür (asitlenmiş su: 999mL ultra safsu + 1mL konsantre H₂SO₄ asidi).
- 9) 11,42g/L H₃BO₃: 1L ultra safsuda çözülerek hazırlanır.
- 10) 8,82g/L ZnSO₄·7H₂O, 1,44g/L MnCl₂·4H₂O, 0,71g/L MoO₃, 1,57g/L CuSO₄·5H₂O ve 0,49g/L CoNO₃·6H₂O çözeltileri: 1L ultra saf suda çözülerek hazırlanırlar.

Stok çözeltiler hazırlandıktan sonra 120°C'de 20 dakika otoklavda sterilizasyonu yapıldıktan sonra üzeri iyice kapatılarak kullanılabilecek buzdolabında saklanmıştır

4.3.3. Mikroalglerin Çoğaltılması

Scenedesmus sp. türü için besi ortamı olan BBM (Bold's Basal Medium) stok çözeltileri kullanılarak aşağıdaki gibi hazırlanmıştır [89]:

950mL 120°C'de 20 dakika otoklavda sterilizasyonu yapılan ultra safsuya daha önce hazırlanan stok çözeltiler aşağıdaki ölçülerde eklendi:

- a) 10mL 1., 2., 3., 4., 5. ve 6. stok çözeltileri,

- b) 1mL 7., 8. ve 9. stok çözeltileri
- c) 2mL 10. stok çözeltisi.

Böylece hazırlanmış olan besi ortamına *Scenedesmus sp.* eklendi. Sonrasında, güneş ışığının altında büyüme süresi boyunca (2-3 hafta) bekletilmiştir (Şekil 4.6). Sürekli karışımın ve oksijenin sağlanması amacıyla reaktörlere hava verilmiştir. Alglerin büyümesi her gün klorofil-a ve kuru alg ağırlığının ölçülmesi ile belirlenmiştir.



Şekil 4.6. *Scenedesmus sp.* 'un Çoğaltılması

Chlorella sp. besi ortamı olarak *Scenedesmus sp.*'un BBM (Bold's Basal Medium) besi ortamı kullanılmıştır ve daha önce anlatıldığı gibi stok çözeltiler kullanılarak hazırlanmıştır

Hazırlanmış olan besi ortamına *Chlorella sp.* eklendi. Sonra 32°C sıcaklığında ışık altında iklim dolabında büyüme süresi boyunca bekletilmiştir ve her gün klorofil-a konsantrasyonları ve kuru ağırlıkları ölçülerek *Chlorella sp.*'nin büyümesi belirlenmiştir.

4.3.4. Analitik Yöntemler

4.3.4.1. Klorofil-a Ölçümü

Sularda bulunan klorofil-a miktarının belirlenmesi için önce 20 mL hacmindeki numune selüloz asetat filtre kağıdından (0.8 µm) vakum ile süzülür. Sonra süzüntünün kaldığı filtre kağıdı içinde 14 ml metanol bulunan 20-25 ml'lik kapaklı cam şişeye konur. Şişeler 70°C'de su banyosuna yerleştirilir ve metanolün 10 dakikalık kaynama süresi sonrasında şişeler su banyosundan alınarak karanlık bir yerde 5 dakika bekletilir. Bu işlemi takiben metanol santrifüj tüpüne alınır ve 5000 devir/dakikada 10 dakika santrifüjlenir. Saf metanol kullanılarak 665 nm'de ölçülür. Santrifüjlenmiş süzüntünün absorbansı ölçülür. Okuma bittikten sonra 750 nm'de bir okuma daha yapılır. Bu değer 0.02'den küçük olmalıdır. Eğer büyük bir değer bulunursa numune hala bulanık demektir, santrifüjleme işlemi tekrarlanır. Okuması yapılan süzüntünün hacmi ölçülür. Aşağıdaki formül kullanılarak klorofil-a konsantrasyonu hesaplanır [90]:

$$\text{Klorofil - a _ Konsantrasyonu}(\mu\text{g} / \text{L}) = \frac{13.6 \cdot A \cdot v}{d \cdot V} \quad [4.8]$$

Bu eşitlikte; A = 665 nm'de ölçülen absorbans, v = Süzüntü hacmi (ml), V = Süzülen numune miktarı (lt), d = Spektro küvetinin genişliği olarak tarif edilmektedir.

4.3.4.2. Uranyum (VI) Konsantrasyonunun Ölçülmesi

Uranyum konsantrasyonunu ölçmek için Aerobik Kesikli Reaktörlerden her gün steril şırınga yardımıyla 4mL örnek çekilerek alınıp 5000rpm hızında 10dakika santrifüjlendikten sonra 'Arsenazo' yöntemi daha önce anlatıldığı gibi kullanılarak U(VI) konsantrasyonu spektrofotometrede ölçülmüştür. Burada ve daha önceki ölçmelerde de örneklerde sadece konsantrasyonu ölçülmüştür.

4.3.5. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemler

4.3.5.1. Adsorpsiyon İzoterminin Hesaplamaları

“Adsorpsiyon, adsorbent yüzeyinde biriken madde derişimi ve çözeltide kalan madde derişimi arasında bir denge oluşuncaya kadar devam eder. Adsorpsiyon dengesini belirlemek için, sabit sıcaklıkta dengede çözeltide kalan çözünen derişimine karşı adsorbentin birim ağırlığında adsorbe edilen çözünen miktarının derişimi izlenerek adsorpsiyon izotermi adı verilen eğriler elde edilir [91].”

“Adsorpsiyon işlemi sırasında sistem dengeye geldiği anda, adsorban maddenin birim kütesinin adsorpladığı madde miktarı, sıcaklık, derişim, basınç veya denge basıncının bir fonksiyonudur. Sıcaklığın sabit tutulduğu durumlarda bu fonksiyon aşağıdaki denkleme eşittir;

$$q_e = \frac{(C_o - C_e) \cdot V}{m} \quad [4.9]$$

q_e = Adsorbentin adsorpsiyon kapasitesi (mg/g, mol/g), C_o = Adsorbatın (adsorplanan maddenin) başlangıç derişimi (mg/L, mol/L), C_e = Adsorbatın (adsorplanan maddenin) denge anındaki (adsorplanmadan kalan) derişimi (mg/L, mol/L), V = Çözelti hacmi (L), m = adsorbentin ağırlığı (g). Adsorpsiyon izotermi için önerilen bazı matematiksel modeller vardır. Bunlardan bazıları Freundlich, Langmuir, Polonyi, Sylgin-Frumkin, Hill, Temkin, Fowler ve BET (Brunauer, Emmett, Teller) izotermidir [92]. ”Biyoteknolojik olarak adsorbsyonla giderim açısından üç tür izoterm; lineer, Freundlich ve Langmuir önemlidir.

Bu izotermi; 1) Alternatifler arasından en uygun adsorbanı seçmek, 2) Bir filtre içindeki adsorbanın ömrünü tespit etmek, 3) Adsorbanın geriye kalan adsorpsiyon kapasitesini test etmekte kullanılabılır [91]’.

Langmuir İzotermi

”Langmuir izotermi, temel kabul üzerine oturtulmuş basit ve fiziksel olarak mantıklı bir adsorpsiyondur. Bu kabuller: 1) Adsorpsiyonda adsorban yüzeyi tek tabakalı kaplanmadan öteye gidemez. 2) Adsorbanın tüm yüzey gözenekleri eşittir ve en fazla bir adet adsorbat molekülü için yerleşime elverişlidir. Böylece meydana gelen tabaka bir molekül kalınlığında olur. 3) Bunun yanında, tüm adsorpsiyon alanları adsorbat iyonlarına karşı eşit miktarda çekim uygular ve adsorbe olan bir molekül bitişik alandaki bir başka molekülle herhangi bir etkileşim içinde olamaz. Yani bir molekülün gözeneğe bağlanması, komşu gözeneğin bir molekül tarafından doldurulup doldurulmadığından bağımsızdır. Adsorbentler adsorbanın homojen yüzeyini denge anına kadar doldururlar. Denge anında ise maksimum adsorplama miktarına ulaşılmış olur [93].”

“Langmuir adsorpsiyon izotermi ampiriktir ve aşağıdaki şekilde ifade edilir:

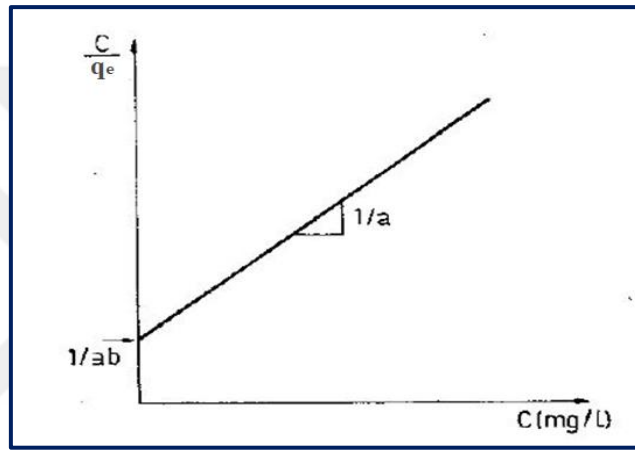
$$q_e = \frac{a \cdot b \cdot C}{(1 + bC)} \quad [4.10]$$

Burada; q_e = Birim adsorplayıcı ağırlığı başına adsorplanan madde miktarı (g/g), a = Birim adsorplayıcı ağırlığı başına tek sıralı filmde tutulan mol sayısı, b = Sabit, C = Adsorpsiyondan sonra çözeltide kalan maddenin derişimi (mg/L).

Langmuir izotermi lineerize edilmiş şekli ile;

$$\frac{C}{q_e} = \frac{1}{a \cdot b} + \frac{C}{a} \quad [4.11]$$

C 'ye karşı C/q_e değerleri grafiğe geçirilir ve bu grafik yardımı ile a ve b sabitleri hesaplanabilir. Grafiğin eksenini kesiştiği nokta $1/a \cdot b$ ve eğimi ise $1/a$ olur. Langmuir adsorbsiyon izoterminin diğer bir ifade şekli de Şekil 4.7'te görülmektedir" [94].



Şekil 4.7. Langmuir Adsorbsiyon İzoterminin Grafiksel İfadesi

“Lgmuir İzoterm sabitleri:

a - Adsorbanın maksimum adsorplama kapasitesini verecektir. (Özellikle tek tabakalı adsorpsiyonun meydana geldiği heterojen adsorpsiyon sistemlerinde Langmuir izotermi denge durumunu net olarak açıklayamaz).

b - Adsorban yüzeyinde bulunan aktif yerlerin birbirlerine yakınlıkları ile alakalı, sıcaklık ve adsorpsiyon entalpisine bağlı bir sabittir. L/mg veya L/mol cinsinden ifade edilir. Sıcaklık düştükçe ve adsorpsiyon kuvveti arttıkça b sabiti de artar. Ayrıca adsorban ile gaz fazındaki moleküllerin birbirlerine göre dengelerinden ve basınçtan da etkilenir. Basınç artırıldığında b sabiti de artacaktır” [93].

Adsorpsiyonun elverişliliğini bulmak için R sabiti hesaplanır ve bu sabitin 0 ile 1 arasında değerler alması adsorpsiyona elverişlilik durumunun sağlandığına işaret eder.

$$R_L = \frac{1}{1 + b \cdot C_o} \quad [4.12]$$

R_L - Degerleri izoterm Tipi:

$R_L > 1$ Elverisli Olmayan

$R_L = 1$ Lineer

$0 < R_L < 1$ Elverisli

$R_L = 0$ Tersinmez

Freundlich İzotermi

“Freundlich’e göre bir adsorbanın yüzeyi üzerinde bulunan adsorpsiyon alanları heterojendir yani farklı türdeki adsorpsiyon alanlarından teşkil edilmistir. Freundlich izotermimin matematiksel ifadesi;

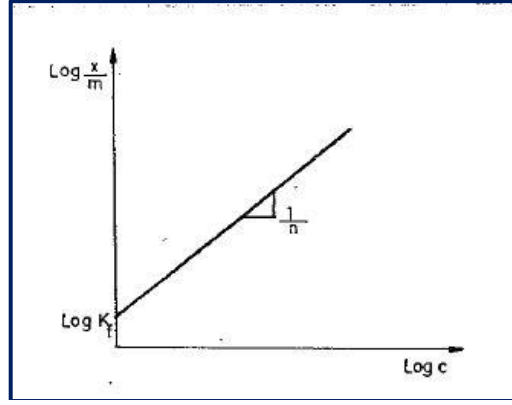
$$q_e = K_F \cdot C_e^{\frac{1}{n}} \quad [4.13]$$

C_e - Adsorpsiyon sonrası çözeltide adsorplanan madde konsantrasyonu (mg/L), q_e - Birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı (mg/g), K_F - Adsorpsiyonun kesin bir işaretidir. Adsorbat ile adsorban arasındaki ilişkinin gücünü gösterir [(mg/g) (L/mg)^{1/n}]. K_F ’nin yüksek değerleri adsorban ile adsorplanan maddenin birbirlerine yakınlığının oldukça yüksek olduğunun göstergesidir, n - Adsorpsiyon yoğunluğunun bir ifadesidir. Genellikle n değerlerinin 1-10 arasında olması iyi bir adsorpsiyon olduğunun bir göstergesidir. $1/n$ değeri, heterojenite faktörüdür ve 0-1 aralığında değerler alır. Yüzey ne kadar heterojense, $1/n$ değeri o kadar sıfıra yakın olur. Bu izotermi doğruluğu, heterojen adsorpsiyon sistemlerinde Langmuir izotermine göre daha iyidir.

Freundlich izoterm denkleminde esitliğin her iki yanının da logaritmasını alarak doğrusal hale getirirsek:

$$\log q_e = \log K_F + \left(\frac{1}{n}\right) \log C_e \quad [4.14]$$

$\log q_e$ ’nin $\log C_e$ ’ye karşı değişiminin grafiğe dökülmesiyle K_F ve n sabitleri bulunur. Grafikten elde edilen doğrunun y eksenini kesim noktası $\log K_F$ ’yi ve eğimi de $1/n$ ’i vermektedir. Bulunan bu degerler de Freundlich izoterm sabitleri olarak adsorpsiyonun doğasını daha iyi anlayabilme konusunda bize yardımcı olurlar (Şekil 4.8)” [93].



Şekil 4.8. Freundlich izoterminin lineerize şekli

4.3.5.2. Adsorpsiyon Termodinamiğinin Hesaplanması

“Belirli bir sıcaklıkta yapılan adsorpsiyon işleminin Gibbs serbest enerjisini bulmak için:

$$K_c = \frac{q_e}{C_e} \quad [4.15]$$

K_c - Adsorpsiyon denge sabiti

q_e - Adsorbanın birim kütleinde tutulan madde miktarı (mg/g)

C_e - Adsorpsiyon sonrası çözeltide kalan adsorplanan madde konsantrasyonu (mg/L)

Yukarıdaki denklem yardımı ile bulunan K_c aşağıdaki denkleme yerleştirilerek adsorpsiyonun standart Gibbs serbest enerjisi bulunur:

$$\Delta G^\circ = -R \cdot T \cdot \ln K_c \quad [4.16]$$

Asağıdaki son eşitlik kullanılarak, $\ln K_c$ değerinin $1/T$ değerine karşı grafiğe geçirilmesiyle (Van't Hoff) oluşan doğrunun eğimi ΔH° 'ı ve kesişim noktası da ΔS° 'i verecektir.

$$\ln K_c = \frac{[\Delta S^\circ - \Delta H]}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad [4.17]$$

ΔH° 'ın pozitif değerleri adsorpsiyonun endotermik, ΔG° 'nin negatif değerleri adsorpsiyonun kendiliğinden olduğunu göstermektedir. Diğer bir değişle adsorpsiyon işleminin uygulanabilirliği entalpi ve Gibbs serbest enerjisinin negatif olması ile anlaşılabilir. ΔS° 'nin pozitif değerleri ise katı/çözelti ara yüzeyindeki rastlantısallığın artışıını göstermektedir [93].”

4.3.5.3. Adsorpsiyon Kinetiği Hesaplamaları

Sonuçta görüldüğü gibi uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgı ile gideriminde giderim hızı hem uranyumun hem de alglerin konsantrasyonlarının değişimine bağlı olarak

değişmektedir. Demek uranyumun adsorpsiyon kinetiği, ikinci dereceden kinetik modeli kullanılarak hesaplanır:

Yalancı 2. dereceden reaksiyon hız esitliği, Ho esitliği [95]:

$$\frac{t}{q_t} = \left(\frac{1}{k_2 \cdot q_e^2} \right) + \left(\frac{1}{q_e} \right) \cdot t \quad [4.18]$$

k_2 - Ho yalancı 2. dereceden adsorpsiyon hız sabiti (g/mg.min), q_e - Birim adsorban üzerine adsorplanan madde miktarı (mg/g), q_t - t zamanda adsorplanan madde miktarı (mg/g), t/q_t 'nin t değerine karşı konulmalarıyla k_2 değerleri hesaplanır.

4.4. 'Cytochrome c3' ile Anaerobik Deneylerin Materyal ve Metotları

4.4.1. Kullanılan Kimyasallar Kaynağı

Ekmek mayası marketten satın alınmıştır. Diğer kimyasallar: NaCl, NaH₂SO₃ 'VWR Chemicals'ın kimyasallar kullanılmıştır. Buz, ultra safsuyun buzdolabının dondurucusunda 1 gün bekletilerek elde edildi.

4.4.2. 'Cytochrome C3' Proteininin Sentezi

'Cytochrome C' yüksek sıcaklığa ve çeşitli kimyasallara karşı dayanıklıdır. Özüt içinde bileşeni canlı hücrelerdekiyle aynı özelliklere sahiptir. Yani sentezlenen protein canlı hücredeki özelliklerini kaybetmemektedir. Ayrıca ekmek mayasından saf ve konsantre halde elde edilmektedir. Burada aşağıdaki yöntem kullanılarak 'Cytochrome C' sentezlendi [96]:

100g ekmek mayası 5g saf NaCl ile karıştırılarak plasmolize edildikten sonra mıgnatlı ısıtıcı üzerindeki 300mL ultra safsuya yavaş yavaş karıştırılarak eklendi. Sıcaklık 90°C olana dek 5dakika ısıtıcı üzerinde karıştırılarak bekletildi. Sonra üzerine 600g buz eklenerek aniden soğutuldu. Çökelti olana dek 4 saat bekletildi. Çözelti üzerinde oluşan yeşilimsi sıvı süzildükten sonra kalan koyu kısmı ise içinde iki kat filtre kağıdı ve kieselguhr bulunan Buchner huni filtre sistemine koyularak filtrelendi. Sıvı kısmı pompa yardımıyla çekildikten sonra kalan koyu kısmı behere alınarak üzerine 240g sodyum bisulfit içeren ultrasafsu koyuldu. Elde edilen çözelti iyici karıştırıldıktan sonra 24saat bekletildi. Sonra 5000rpm hızında 10 dakika santrifüjlenerek sıvı ve koyu kısmı ayrıldı. Elde edilen pembemsi rengindeki sıvı 'Cytochrome C' içerdiği için daha sonra sudaki uranyumun gideriminin anaerobik kesikli reaktör deneylerinde kullanıldı (Şekil 4.9) .



Şekil 4.9. 'Cytochrome C' Proteininin Sentezi

4.4.3. Analitik Yöntemler

4.4.3.1. U(VI) Konsantrasyonunun Ölçülmesi

Sudaki uranyumun 'Cytochrome C' proteini ile giderim anaerobik kesikli reaktör deneylerinde spektrofotometrede 650nm dalga boyunda U(VI) konsantrasyonu ölçülmüştür. Standart uranyum çözeltilerinin 650nm dalga boyunda ölçülen değerleri kullanılarak deneydeki uranyum konsantrasyonlarının değişimi mg/L cinsinde interpolasyon yöntemiyle hesaplandı.

4.4.3.2. İndirgenmiş ve Oksitlenmiş 'Cytochrome C' Konsantrasyonlarının Ölçülmesi

Deney sırasında indirgenmiş ve oksitlenmiş 'Cytochrome C' konsantrasyonlarının belirlenmesi için önce kesikli reaktörlerinden alınan örnekler spektrofotometre yardımıyla 400, 490 ve 550nm ışık boylarında ölçüldü.

4.4.4. Hesaplama Yöntemleri ve Denklemler

Aşağıdaki formüller kullanılarak indirgenmiş ve oksitlenmiş 'Cytochrome C' konsantrasyonları hesaplandı [97]:

$$C_{(\text{cytochromeC}_{\text{ oksitlenmiş}})} = k * (D_{400} - D_{490}) * V, \text{ mg/ mL},$$

$$k - \text{ekstinksyon_sabiti} = 0,115 \quad [4.19]$$

$$C_{(\text{cytochromeC}_{\text{ indirgenmiş}})} = \frac{D_{550} * 12300 * 0,1}{27700}, \text{ mg/ mL}, \quad [4.20]$$

12300 – CytochromeC_moleküler_kütlesi,
27700 – Ekstinksyon_molar_sabiti

5. KESİKLİ REAKTÖR DENEYLERİNİN YAPILMASI

5.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Mikroorganizmalarla Anaerobik Deneyler

Sudaki uranyumun kesikli reaktörlerde giderimi 3 farklı deney şeklinde yapılmıştır. Birinci set deneylerde, uranyumun giderimi pH 7’de ve düşük uranyum konsantrasyonlarıyla yapılmıştır (5mg/L, 25mg/L ve 50mg/L). İkinci set deneylerde ise yüksek uranyum konsantrasyonunda (100mg/L), farklı pH değerlerinde (pH 4, pH 7 ve pH 10) ve farklı Redoks Potansiyel (ORP) değerlerinde (-50mV, -100mV, 50mV ve 100mV) giderim gerçekleştirilmiştir. Üçüncü set deneylerde farklı uranyum konsantrasyonlarında ve ultra safsu ortamında giderimi denenmiştir.

5.1.1. Birinci Set: 5-50mg/L Uranyum İçeren Suların Standart Şartlarda Giderilmesi

Birinci setteki uranyum giderim çalışmalarında ‘Basal Mimeral Medium’ (BMM) kullanılmıştır. Hazırlanmış olan BMM 120°C’de 20 dakika otoklavlandıktan ve ‘Hungate Yöntemiyle’ azot gazı ile süpürüldükten sonra, oksijen indikatörü olarak ‘Metilen Blue’ eklendi (‘Metilen Blue’ oksijenli ortamda çözeltiye mavi renk, oksijensiz ortamda ise beyaz renk vermektedir). Geride kalan oksijeni gidermek için ortama Sodyum sulfit eklenmiştir (Şekil 5.1, a ve b). Böylece anaerobik koşullar sağlanan steril BMM çözeltisi 250ml’lik steril ve havasız vakum şişelere 200’er mL olacak şekilde steril şırınganın yardımıyla 9 adet kesikli reaktöre beslenmiştir (Şekil 5.1, c ve d).

Hazırlanan kesikli reaktörlerin üçüne canlı U.D.K.M., üçüne ısıyla öldürülmüş U.D.K.M. koyulmuş olup ve üç kontrol reaktife de U.D.K.M. koyulmadan çalıştırılmıştır. Daha önce çoğaltılmış olan U.D.K.M.’lerin konsantrasyonu 10mg/L olacak şekilde reaktörlere eklenmiştir (canlı). Bunun için yetiştirilmiş olan ‘Complex Media’ından 10mL’lik vakum tüplerinde santrifüjde 5000rpm’de 15 dakika santrifüjlenerek ayrılmıştır. Daha sonra Sodyum Hidrokarbonat tampon çözeltisiyle 2 kere yıkanıp, santrifüjlendikten sonra şırıngayla kesikli reaktöründeki BMM çözeltisi, vakum tüplere koyulup karıştırılarak verilmiştir. Isıyla öldürülmüş U.D.K.M.’lerle yapılan çalışmalarda da 10mg U.D.K.M./100mL konsantrasyonu sağlanmıştır. Ölü U.D.K.M.’lar 120°C sıcaklıkta 20 dakika otoklavlanarak hazırlanmıştır. Daha sonra aynı şekilde santrifüjlenip 2 kere yıkandıktan sonra şırınga ile reaktörlere aktarılmıştır. Mikroorganizmalar verildikten sonra canlı ve ölü U.D.K.M. ve kontrol reaktörlerin üçer reaktörlerinin her birine 5mg/L, 25mg/L ve 50mg/L konsantrasyonu eklenmiştir. Daha sonra tüm reaktörlere elektron verici olarak 5ml glüköz çözeltisi eklenmiştir (Şekil 5.2, a, b, c).



Şekil 5.1. Deney çözeltilerinin hazırlanması: a) ve b) oksijen indikatörü olarak Metilen Blue eklenen BMM çözeltisine Azot gazı ve Sodyum sülfid verilerek oksijensiz anaerobik çözelti elde edilmesi (a) oksijenli, b) oksijensiz), c) ve d) hazırlanan anaerobik çözeltileri serum şişelerinden Kesikli Reaktör olarak kullanılacak olan 250mL steril ve havasız vakum şişelerine şırınga ile aktarılması (c) serum şişelerindeki anaerobik BMM çözeltisi, d) Vakum şişesine BMM çözeltisinin aktarılması).

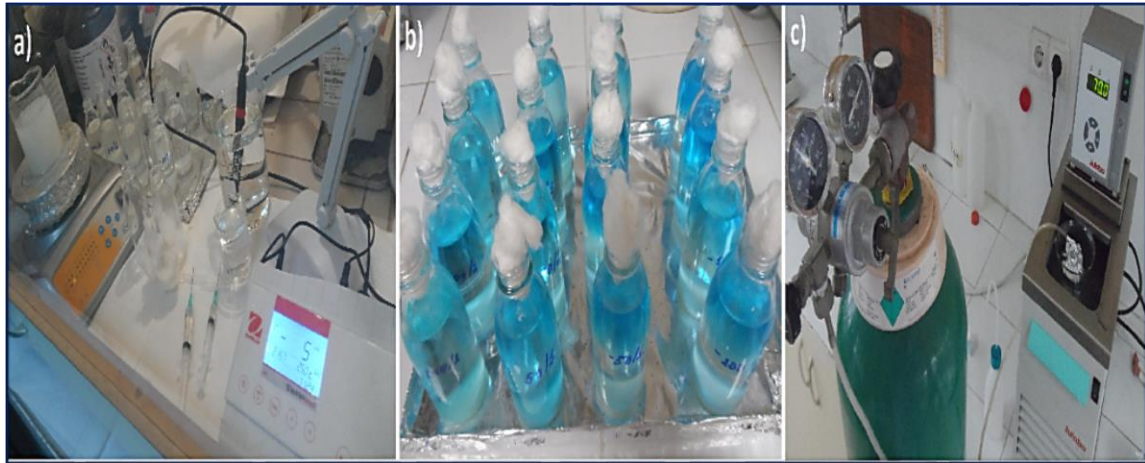


Şekil 5.2. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültür ile Sudaki Uranyumun Giderilmesinin Kesikli Reaktör Deneyi: a) BMM, elektron verici (E.V.) ve farklı konsantrasyonlarda (5mg/L, 25mg/L, 50mg/L) uranyum içeren çözeltiler, b) BMM+E.V.+U(5, 25, 50) + ısıyla öldürülmüş U.D.K.M. çözeltileri, c) BMM+E.V.+U(5, 25, 50) + canlı U.D.K.M. içeren çözeltiler, d) 120rpm hızında Labcon karıştırıcısında sürekli karıştırılarak deneyin yapılması, e) 'Arsenazo' yöntemiyle uranyum konsantrasyonunun spektrofotometrede ölçülmesi.

Kesikli reaktörler çalkalamalı karıştırıcıda (Labcon) deney süresi boyunca 120rpm hızında sürekli olarak karıştırılarak uranyumun giderimi araştırılmıştır. Her gün reaktörlerden steril 1ml'lik şırınganın yardımıyla örnek alınarak uranyum (VI) konsantrasyonu 'Analitik Yöntemler' bölümünde açıklandığı gibi 'Arsenazo' yöntemiyle Backman DU530 spektrofotometresi ile 651nm dalga boyunda ölçülmüştür (Şekil 5.2 d ve e).

5.1.2. İkinci Set: 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı pH ve ORP Şartlarında Giderilmesi

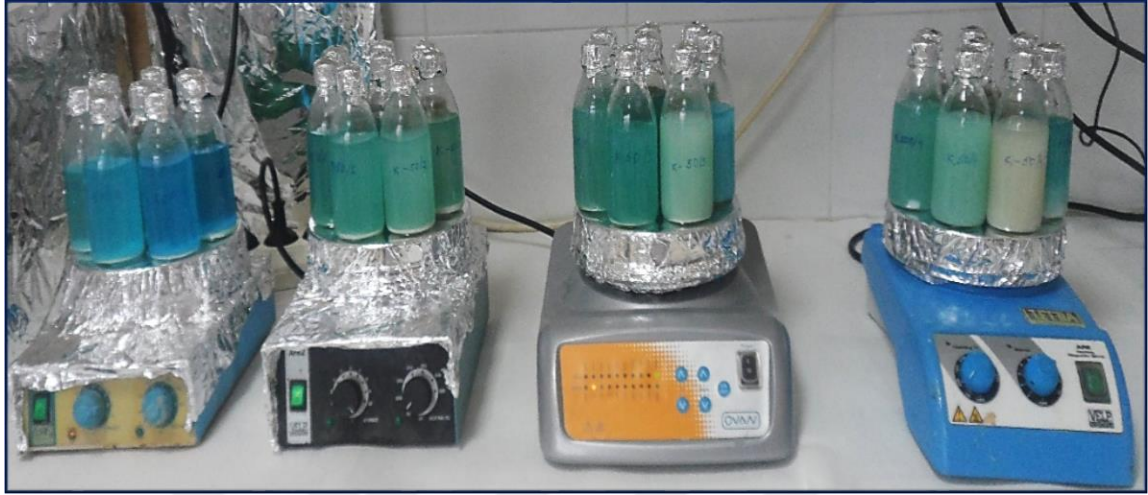
100mg/L uranyum içeren suların U.D.K.M. ile giderimi kesikli reaktör deneyleri ile farklı redoks potansiyel ve farklı pH değerlerinde gerçekleştirilmiştir. Bunun için önce 16 adet 250ml'lik şişeleri 100er ml 100mg/L konsantrasyonundaki uranyum içeren Basal Mineral Medium çözeltileri hazırlandı. pH/ORP metre yardımıyla 4 çözeltinin redoks potansiyeli 100mV (pH 3-4 arası), 50mV (pH 5-5.5 arası), diğerleri de -50mV (pH 7-7.5 arası) ve -100mV (pH 9-11 arası) (4 tekrar) olacak şekilde %50 NaOH ve Laktik asit yardımıyla ayarlandı (Şekil 5.3, a). Ardından da oksijen indikatörü olan *Metilen Blue* çözeltide oksijenin olup olmadığını belirlemek için eklendi. Çözeltilerin rengi resimdeki gibi maviye dönüşmüş olup O₂ varlığına isabet etmektedir (Şekil 5.3, b). Hazırlanan çözeltileri anaerobik koşula getirmek için çözelti şişeleri 70°C su banyosuna koyulup üzeri kapatıldıktan sonra şırınga yardımıyla azot gazı verilerek 20 dakika süreyle süpürüldü (Şekil 5.3, c).



Şekil 5.3. Farklı ORP (100mV, 50mV, -50mV, -100mV) ve pH (4, 7, 10) Değerinde Anaerobik Kesikli reaktör Deney Çözeltisi Hazırlaması: a) ORP ve pH ayarlaması, b) 'Metilen Blue' eklenmesi, c) Su banyosu içindeyken Azot gazı verilmesi

Hazırlanan anaerobik çözeltilere daha önce inkübatörde 'Complex Media'da yetiştirilmiş olan U.D.K.M.'lar, santrifüjde 5000rpm hızında 20 dakika santrüjlenip iki kere anaerobik Sodyum Hidrokarbonat tampon çözeltisiyle yıkandıktan sonra daha önce belirtilmiş

yöntemle şırınganın yardımıyla verilmiştir. 120 rpm hızında deney süresi boyunca sürekli karıştırılmak suretiyle uranyumun sudan U.D.K.M.'lar ile giderilmesi incelenmiştir (Şekil 5.4). Her gün reaktörlerden örnek alınarak uranyum konsantrasyonunun değişimi 'Arsenazo' yöntemiyle ölçülmüştür.



Şekil 5.4. 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı ORP (100mV, 50mV, -50mV, -100mV) ve pH (4, 7, 10) Değerlerinde Giderilmesinin Anarobik Kesikli reaktör Deneyinin Yapılması

5.1.3. Üçüncü Set: Uranyumun Ultrasafsu Ortamından U.D.K.M. ile Giderimi

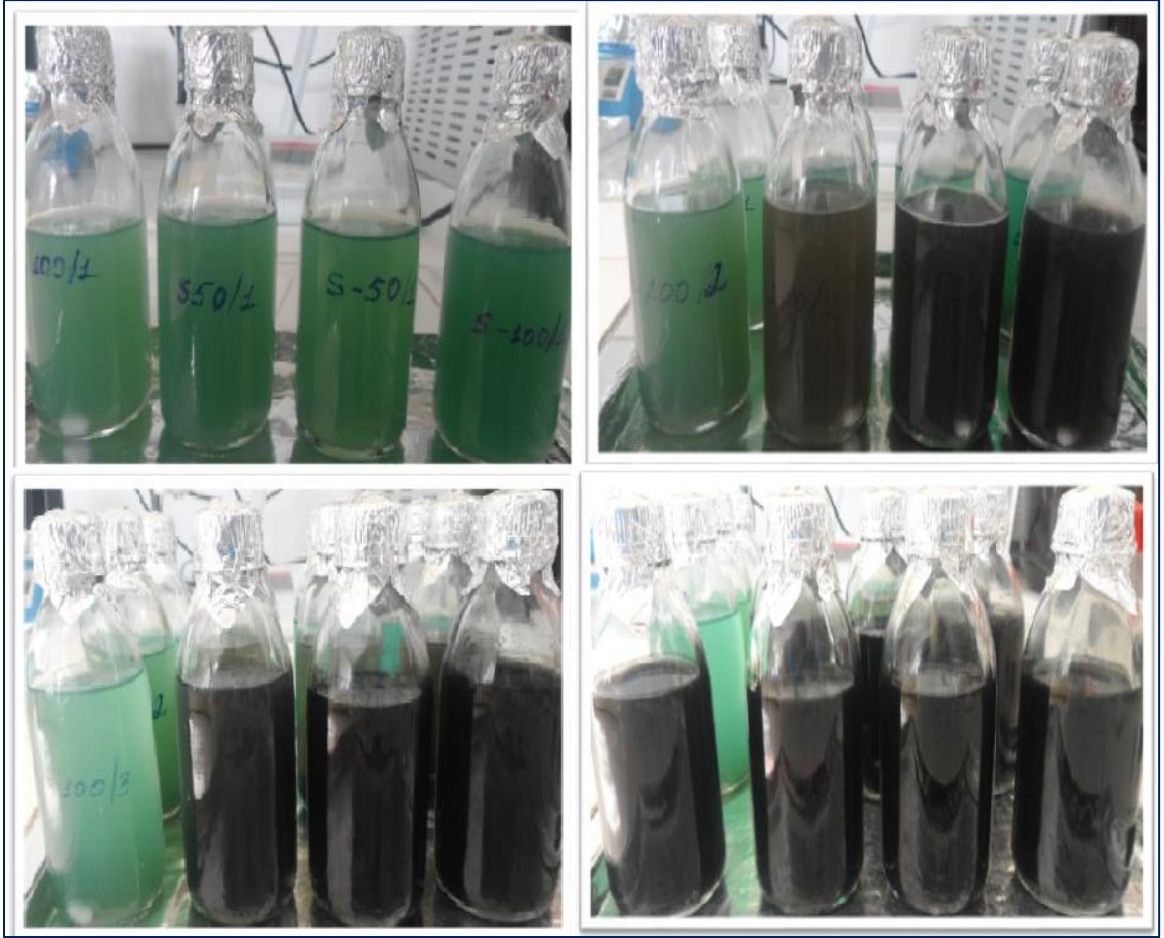
Ultra safsu ortamında uranyumun U.D.K.M. ile giderilmesi için ayrı ayrı olarak, bakterilerin ölü ve canlı şekilleri için anaerobik kesikli reaktör deneyleri yapılmıştır. Farklı uranyum konsantrasyonlarında büyüyen U.D.K.M.'ların her biri için uranyum içeren ultra safsu anaerobik kesikli reaktörlerinden 3'er tane hazırlanmıştır. Birinde ısıyla öldürülmüş U.D.K.M., ikincisinde canlı U.D.K.M. ve üçüncüsünde canlı U.D.K.M. ve elektron verici olmak üzere her bir konsantrasyonda büyüyen U.D.K.M. için üçer reaktör hazırlanmıştır. Bunun için daha önce farklı uranyum konsantrasyonları (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L, 1000mg/L) içeren 'Complex Media'da inkübatörde yetiştirilmiş U.D.K.M.'lar bir kısmı santrifüjlenip 2 kere tampon çözeltisiyle yıkandıktan sonra kesikli reaktörlere şırınga ile verildi. Bir kısmı da 120°C'de 20dakika otoklavlanarak öldürüldükten sonra santrifüjlenip, yıkandıktan sonra reaktörlere verildi. Burada elektron verici olarak glukoz kullanılmıştır. Deneyler pH 7'de, oda sıcaklığında birkaç gün 120rpm hızında sürekli karıştırma şeklinde gerçekleştirilmiştir.

Bu deneylerde daha önceden çoğaltılmış olan U.D.K.M. santrifüjlendikten (5000rpm, 20dakika) sonra steril anoxic NaHCO₃ tampon çözeltisiyle (2.5g/L) 2 kere yıkandı ve 4 grup anaerobik kesikli reaktörlerine her birine 5mg U.D.K.M. koyulmuştur. Sonra anaerobik

şartlar sağlanmıştır. Birinci grup 4 tane reaktöre hiç bakteri eklenmedi sadece U-238 eklendi; ikinci grup 4 reaktöre 121°C’de 20 dakika otoklavlamak suretiyle öldürülen U.D.K.M. koyuldu; üçüncü grup 4 reaktöre U-238 ve canlı U.D.K.M. koyuldu, dördüncü grup 4 reaktöre ise U-238, canlı U.D.K.M. ve elektron verici (glikoz) eklendi. Böylece anaerobik kesikli reaktör deneyi steril ultra safsu ortamında tekrarlanmıştır.

5.2. Sülfat İndirgeyen Bakteriler ile Anaerobik Deneyler

Sudaki uranyumun S.İ.B. ile giderim anaerobik kesikli reaktör deneyleri dört farklı redoks potansiyel/pH değerlerinde (100mV, 50mV, -50mV, -100mV/pH 3; 5, 7; 9) gerçekleştirilmiştir. Öncelikle her bir ORP değeri için (100mV, 50mV, -50mV, -100mV) 4’er tekrar hazırlanmıştır. Bunun için ‘Postgate’ besin ortamı farklı ORP ve pH değerlerine ayarlandıktan sonra azot gazıyla anaerobik şartlar sağlanmıştır. Oksijenin indikatörü olarak *Metilen Mavisi* kullanıldı. Sonra her birine 1’er mL çoğaltılmış olan S.İ.B. örneği verilmiş ve 120rpm hızında karıştırıcıda sürekli karıştırılarak bakterilerin büyümesi sağlanmıştır. Bakterilerin büyümesi spektrofotometre yardımıyla 600nm dalga boyunda ölçüldü. Bakteriler çoğaldıkça çözeltilerde S.İ.B.’ne özgü çözelti renginin siyahlaşması görüldü (Şekil 5.5). Sülfat indirgeyen bakteriler sülfattaki sülfürü S^{+6} sülfür S^{2-} ’ye indirgeyince, indirgenen sülfür demir ile birleşerek FeS siyah çökelti oluşturmaktadır. Çözeltideki bakteri konsantrasyonu spektrofotometrede 600nm dalga boyundayoğunluğunun değeri 2 olana kadar çoğaltıldı. Daha sonra reaktörlerin her birine 1000mL uranyum stok çözeltisinden, uranyum konsantrasyonu 100mg/L olacak şekilde steril şırınganın yardımıyla verildi. Spektrofotometrede 600nm dalga boyunda 2.0 ± 0.05 göstermesi ise hücre yoğunluğunun $21 \pm 2 \cdot 10^7$ hücre/mL eşit olduğunu ve protein konsantrasyonun da 120.8 ± 3.3 mg/L olduğunu göstermektedir [86]. Sürekli karıştırılarak bekletilen kesikli reaktörlerinden her gün şırınganın yardımıyla örnekler alınarak 5000rpm hızında 10dakika santrifüjlendikten sonra, sülfat ve uranyum konsantrasyonları spektrofotometrenin yardımıyla ölçüldü.



Şekil 5.5. Sudaki Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Anaerobik Kesikli reaktör Reaktörlerinde S.İ.B. Çoğaldıkça Çözeltinin Kararması

5.3. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Aerobik Deneyler

Farklı fiziksel ve kimyasal şartlar altında gerçekleştirilen deneylerde alglerin 41.54mg/L ve 115.94mg/L konsantrasyonları kullanılmıştır. Deneyin yapılması için canlı *Scenedesmus sp.* mikroalgleri içeren safsu çözeltisi farklı kesikli reaktörlere 100'er mL koyularak farklı pH (3, 5, 7 ve 9) değerlerine ayarlanmıştır. Her pH değeri için 3'er reaktör hazırlanıp her birine farklı konsantrasyonlarda (5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L) uranyum eklenmiştir. Böylece, hazırlanan kesikli reaktörler 5°C sıcaklığına daha önceden ayarlanmış iklim dolabında 120rpm hızında karıştırılarak uranyum giderim deneyi 2 saatlik süre boyunca gerçekleştirilmiştir. Deney sırasında her 30 dakikada bir reaktörlerden 1'er mL örnek alınarak uranyum konsantrasyonu Arsenazo yöntemiyle ölçülmüştür (Şekil 5.6).



Şekil 5.6. *Scenedesmus sp. sp.* ile Farklı Koşullarda Sudaki Uranyumun Gideriminin Aerobik Kesikli Reaktör Deneyleri

Yukarıdaki deney 25°C ve 45°C sıcaklıkları için de yapılmıştır. Sonrasında, aynı deneyler 120°C sıcaklığında otoklavda öldürülmüş *Scenedesmus sp.* mikroalgi ile 5°C, 25°C ve 45°C sıcaklığında yapılmıştır. Deneyler sonucu elde edilen uranyum konsantrasyonlarındaki değişimler Design Expert 10 programı yardımıyla grafikleri çıkartılarak karşılaştırılmıştır. *Scenedesmus sp.* mikroalglerinin ölü yada canlı olması, sıcaklıkların, pH değerlerinin ve uranyum konsantrasyonlarının farklı olması durumlarında uranyumun giderimine etkileri analiz edilmiştir.

5.4. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle ile Aerobik Deneyler

Deneylerde *Chlorella sp.* mikroalginin 71.61mg/L ve 282.42mg/L konsantrasyonları kullanılmıştır. Deneyin yapılması için canlı *Chlorella sp.* mikroalgi içeren safsu çözeltisi farklı kesikli reaktörlere 100'er mL koyularak farklı pH (3, 5, 7 ve 9) değerlerine ayarlanmıştır. Her 4 pH değerleri için 3'er reaktör hazırlanmış ve her birine farklı konsantrasyonlarda (5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L) uranyum eklenmiştir. Böylece hazırlanan kesikli reaktörler 5°C sıcaklığına daha önceden ayarlanmış iklim dolabında 120rpm hızında karıştırılarak uranyum giderim deneyi 2 saatlik süre boyunca gerçekleştirilmiştir. Deney

sırasında her 30 dakikada bir reaktörlerden 1'er mL örnek alınarak uranyum konsantrasyonu Arsenazo yöntemiyle ölçülmüştür. Bu deney 25°C ve 45°C sıcaklıkları için de yapılmıştır. Deneyler sonucu elde edilen uranyum konsantrasyonlarındaki değişimler Design Expert 10. programı kullanılarak grafikleri çıkartılarak karşılaştırılmıştır ve *Chlorella sp.* alglerinin ölü yada diri olması, sıcaklıkların, pH değerlerinin ve uranyum konsantrasyonlarının farklı olması durumlarında bu faktörlerin uranyumun giderimine etkileri analiz edilmiştir.

5.5. Sudaki Uranyumun 'Cytochrome C' Proteini ile Gideriminin Anaerobik Deneylerinin Yapılması

'Cytochrome C' proteini ile sudaki uranyumun giderim deneyi iki kere yapıldı. Birinci deneyde elde edilen 'Cytochrome C' içeren çözelti otoklavlanmamışken, ikincisinde ise 120°C'de 20 dakika otoklavlanmıştır. Otoklavlanmamış ve otoklavlanmış 'Cytochrome C' çözeltileri 250ml'lik steril havasız vakum şişelerine 100'er mL steril şırınganın yardımıyla verilmiştir. Daha sonra 'Hungate' yöntemiyle azot gazı verilerek anaerobik şart sağlandıktan sonra şırınganın yardımıyla uranyum çözeltisi verilmiştir. Hazırlanan kesikli reaktörler 120rpm hızında sürekli karıştırılarak 10 gün bekletilmiştir. Deney sırasında her gün steril şırınganın yardımıyla reaktörlerden örnek alınarak vakum tüplerde santrifüjlendikten sonra spektrofotometrede U(VI), 'Cytochrome C' indirgenmiş ve oksitlenmiş konsantrasyonları gerekli dalga boylarında ölçülerek hesaplanmıştır (Şekil 5.8).



Şekil 5.7. Sudaki Uranyumun 'Cytochrome C' Proteini ile Gideriminin Anaerobik Kesikli Reaktör Deneyi

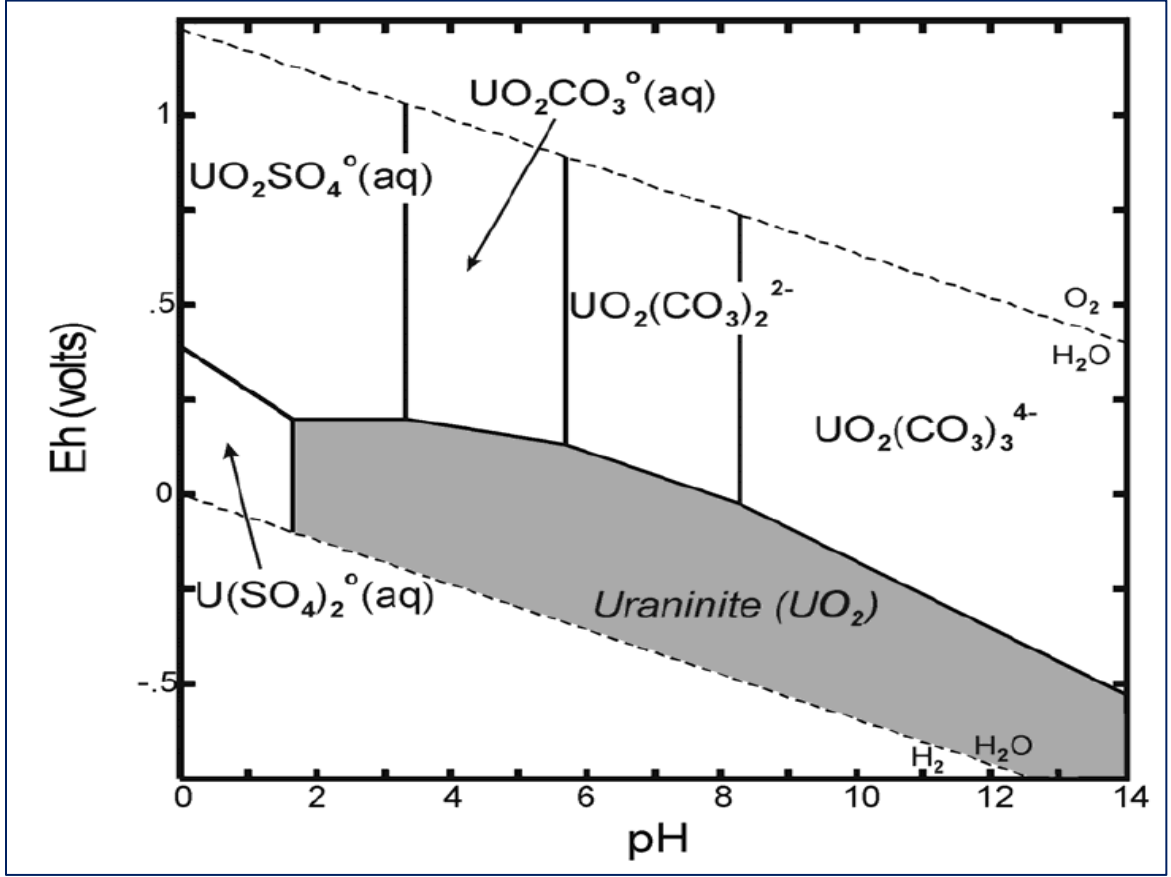
6. SONUÇ VE TARTIŞMALAR

6.1. U.D.K.M. ile Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları

Laboratuvarında geliştirilen U.D.K.M. ile yapılan bu çalışma, anaerobik granül çamurun sudaki uranyumun biyoremediasyonu için inokulant kaynağı olarak değerlendirilmesi üzerinde durulmuştur. Bunun için anaerobik kesikli reaktör deneyleri 1 sene süreyle uranyumun yüksek konsantrasyonlarına (1000mg/L) adaptasyonu sağlanmış olan anaerobik çamurun karışık mikroorganizmalarıyla gerçekleştirilmiştir. Elektron donörü olarak glukoz kullanılmıştır. Ayrıca sudaki uranyumun U.D.K.M. ile arıtımında mikroorganizmalarla giderimin indirgenme yoluyla gerçekleşip gerçekleşmediğini kontrol etmek için farklı ORP (pozitif ve negatif) değerlerinde deneyler yapılmıştır. Burada uranyumun arıtım deneyleri için farklı pH (4, 7 ve 10) ve ORP (50mV, 100mV, -50mV, -100mV) kullanılmıştır. Isı ile öldürülen inokulant ve inokulant içermeyen abiyotik kontrol deneyler de giderimin mikroorganizmalarla biyolojik olduğunu doğrulamak amacıyla yapılmıştır.

Altı valanslı uranyum (U (VI)) ve dört valanslı uranyum (U (IV)), uranyumun doğadaki en yaygın değerlik durumlarıdır [98]. Doğal sularda U (VI) ağırlıklı olarak uranil iyon (UO_2^{2+}) şeklinde bulunmaktadır [99], suda yüksek çözünürlüğü nedeniyle de reaktif ve hareketlidir ve sularda doğal olarak mevcut ligandlar ile karbonatlar gibi kompleksler oluşturma eğilimi vardır [100]. Farklı pH'larda uranyum +6 oksitlenmiş halde Şekil 6.1'de görüldüğü gibi kompleks bileşikler halindedir. Burada görüldüğü gibi, uranyum düşük pH'da (1.5-5) U(VI)-sulfat kompleksleri oluştururken, nötr ve yüksek pH'da (6-14) genellikle U(VI)-karbonat ve Ca-U(VI)-karbonat kompleksleri halindedir [101]. U(IV) olan uranyum hayli istikrarlı ve çözünmez şekli olup genellikle uraninite ($\text{UO}_2(\text{s})$) minerali oluşturmaktadır [102]. U (VI) karbonat kompleksleri oluşturdukları için farklı mikroorganizmalar (bakteri, fungus, mikroalgler v.s.) ve abiyotik faktörler tarafından adsorpsiyonu engellenmektedir [103]. Sularda çözünmüş inorganik karbonun (DIC) varlığı negatif yüklü ve sterik olarak engellenmiş büyük uranil karbonat komplekslerinin oluşumuna yol açarak U (VI) 'nın minerallerin yüzeylerine adsorpsiyonunu azaltır [104], mikroorganizmalar tarafından biyolojik olarak alınmasına engel olur [105], [106], [107] ve abiyotik olarak U (VI)'nın indirgemelerini durdurur [108], [109]. Dolayısıyla sudaki uranyumun arıtılmasının alternatif yöntemleri olarak araştırılan gelinen biosorpsiyon, bioakümülyasyon ve biyomineralizasyon [110] doğal suların arıtımında pek elverişli olmuyor. Bundan dolayı, sulu ortamdan uranyumun kalıcı olarak giderilmesinde en çok kabul edilen biyolojik mekanizma:

uranyumun indirgenerek çöktürülmesidir, bu da biyolojik katalize yoluyla çözünür UO_2^{2+} 'nin çözünmez $\text{UO}_2(\text{s})$ 'ye dönüştürülmesiyle mümkündür.



Şekil 6.1. Doğal Sularda Farklı ORP ve pH'da U(VI)'nin Farklı Kompleks Bileşenleri [101].

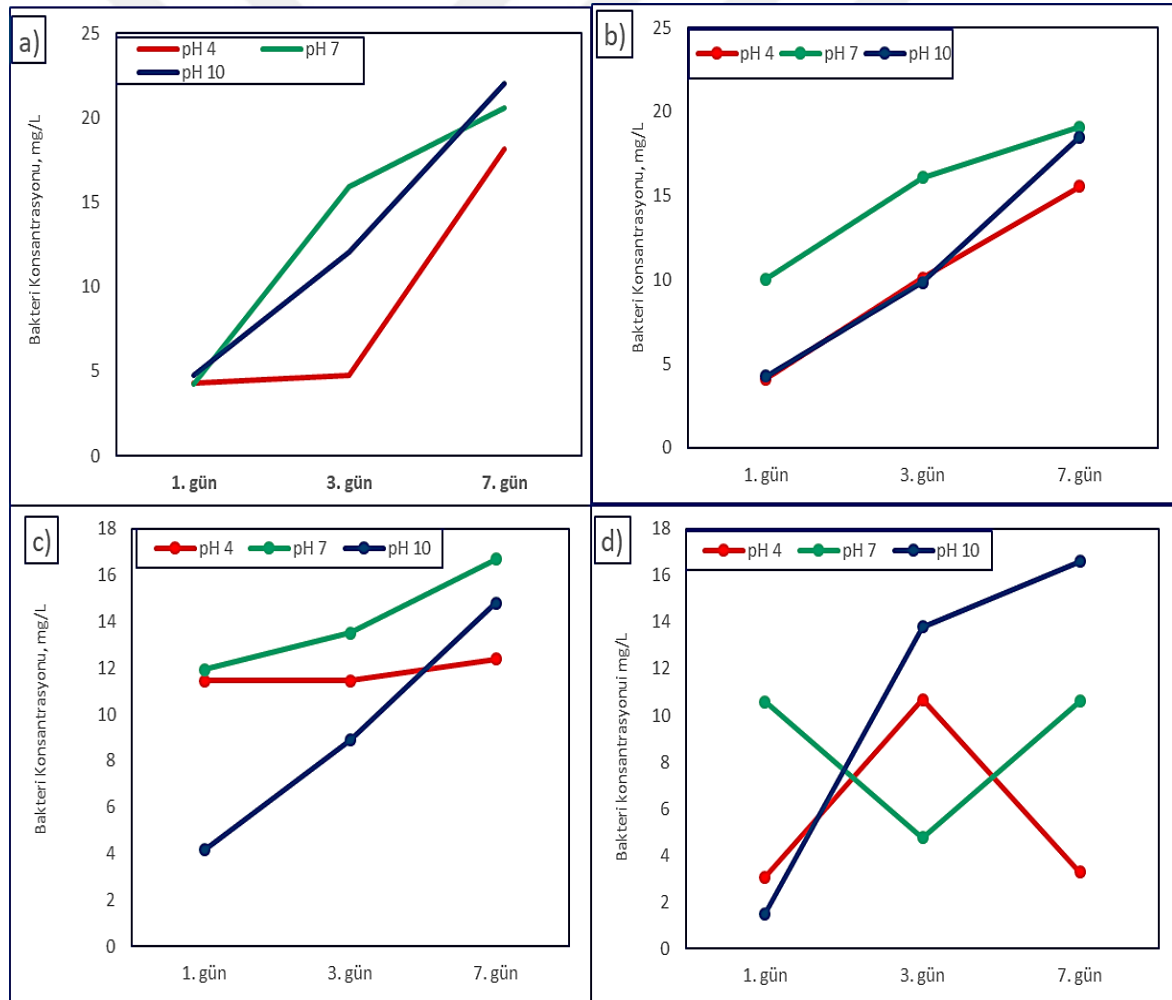
Yıllarca, abiyotik proseslerin (pH, Fe(II) gibi abiyotik indirgeyiciler) doğal şartlarda sudaki uranyumun redoksunu (U(IV) indirgenmiş veya U(VI) yükseltgenmiş halde oluşunu) kontrol eden faktör olduğu düşünülmüştür. Ama son yılların çalışmaları aksini kanıtlamaktadır. Yani doğada redoks reaksiyonlarının olması için mikroorganizmaların mevcudiyeti önemlidir. Doğada bulunan abiyotik indirgeyici bileşenlerin çoğu mikroorganizmaların metabolizmaları sonucu ortaya çıkmaktadırlar [101].

Anaerobik mikroorganizmaların bir elektron donörü varlığında U (VI) 'yı indirgeyebildiği [111] ilk keşfedilmesinden beri değişik mikroorganizmaların U (VI) indirgeyici çöktürmesini gerçekleştirdiği belirlenmiştir [110], [112], [113]. Ancak bu mikroorganizmaların çoğunluğu U (VI)'nin indirgenmesi enerji kazanımlı değildir [113], [114], [115], [63], [116], [71], [117]. Bu çalışmada ise U.D.K.M.'ların U (VI)'nin indirgenmesinin enerji kazanımlı olup olmadığını belirlemek için termodinamik hesaplamaları yapılarak Serbest Gibbs enerjisi, entalpi ve entropileri belirlenmiştir.

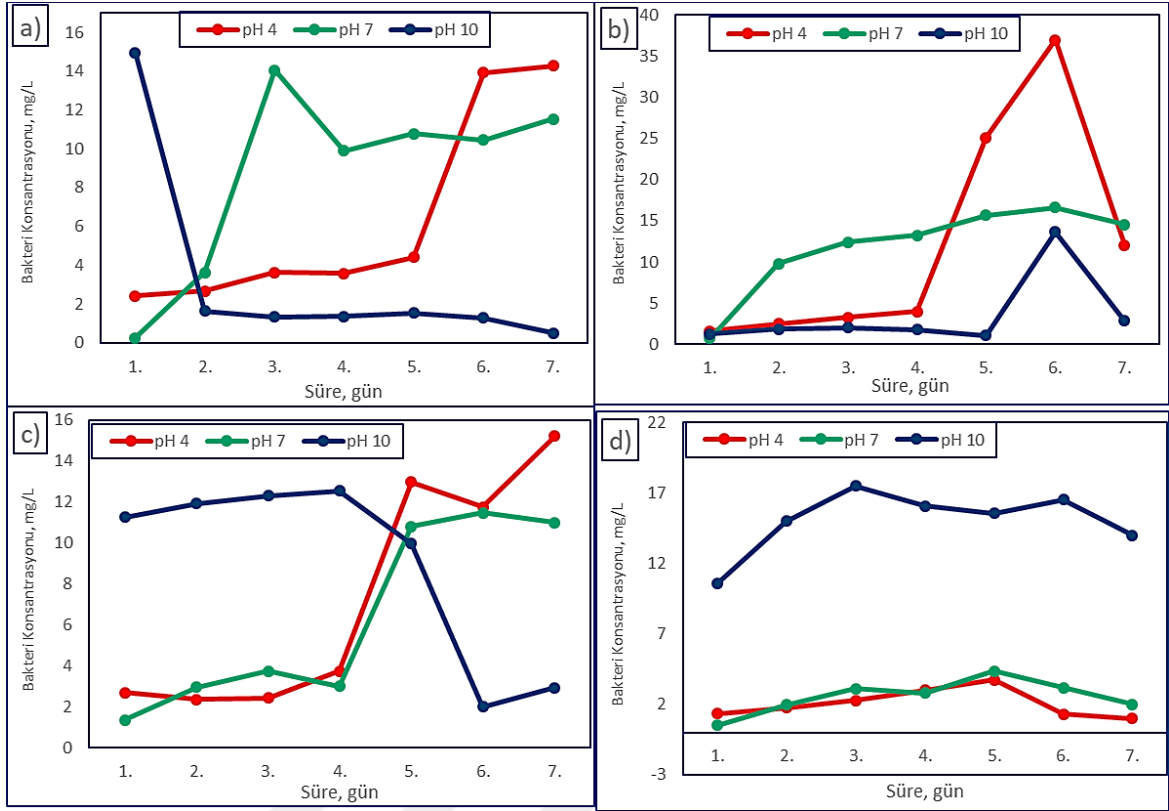
Bugüne kadar sudaki uranyumun biyoteknolojik yöntemlerle arıtılması ile ilgili yapılan araştırmalarda mikroorganizmaların saf türleri kullanılmıştır. Gerçek hayatta ise mikroorganizmalarla arıtırken saf tür çeşidini tutmak imkansızdır. Bu yüzden gerçek sonuçlar ile laboratuvarde elde edilen sonuçlar arasında uyumsuzluklar ortaya çıkabilir. Bundan dolayı burada anaerobik mikroorganizmaların karışık türleri kullanılmıştır.

6.1.1. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin (U.D.K.M.) Elde Edilmesi

Uranyuma dayanıklı karışık kültürleri (U.D.K.M.) elde etmek için farklı uranyum konsantrasyonlarını (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L and 1000mg/L) içeren farklı pH değerlerindeki (pH 4, 7 ve 10) besin ortamında vakum tüplerinde yetiştirilen anaerobik mikroorganizmaların birinci, ikinci ve sonraki aktarmalarındaki büyüme hızları Şekil 6.1 ve 6.2’de gösterilmiştir (Şekil 6.1 ve 6.2).



Şekil 6.2. Birinci İnkübasyon Sırasında Farklı Uranyum Konsantrasyonları (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L, 1000mg/L) ve Farklı pH Değerlerinde Büyüyen Mikroorganizmaların Kütlesinin Değişimi, mg: a) 50mgU/L, b) 100mgU/L, c) 500mgU/L ve 1000mgU/L için.



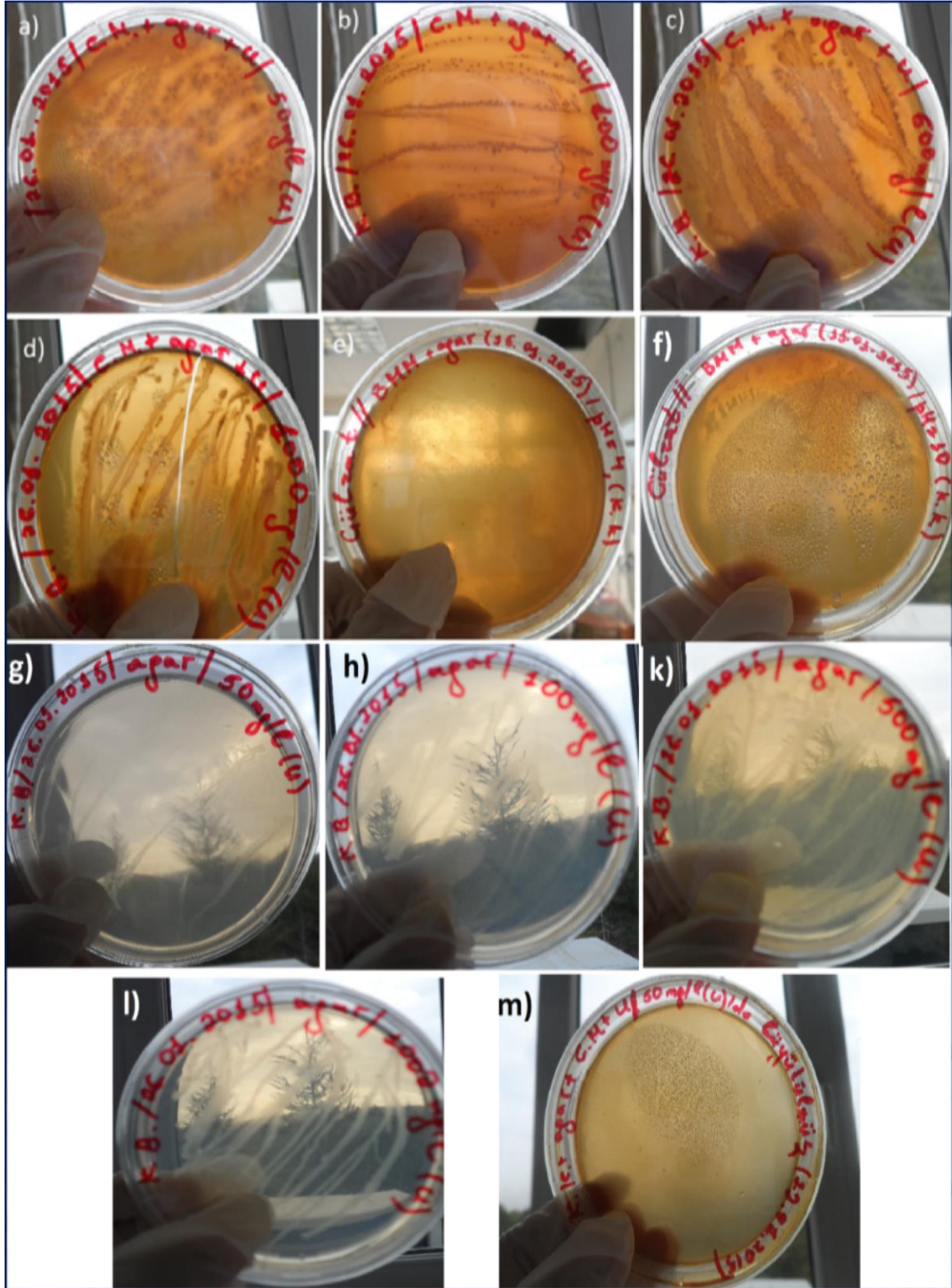
Şekil 6.3. İkinci İnkübasyon Sırasında Farklı Uranyum Konsantrasyonları (50mg/L, 100mg/L, 500mg/L ve 1000mg/L) ve farklı pH Değerlerinde Çoğalan Mikroorganizmaların Kütlesinin Değişimi, mg: a) 50mgU/L, b) 100mgU/L, c) 500mgU/L ve 1000mgU/L için.

Şekil 6.1 ve 6.2’den görüldüğü gibi düşük uranyum konsantrasyonlarında (50mg/L, 100mg/L) mikroorganizmalar pH 7’de daha aktif büyümektedir. Daha yüksek uranyum konsantrasyonları olduğu örneklerde ise (500mg/L, 1000mg/L) mikroorganizmalar pH10’da daha yoğun biçimde çoğalmaktadır. Herhangi bir metalin mikroorganizmalara karşı toksik etkisi, metalin çözünürlüğüne, konsantrasyonuna, kimyasal özelliklerine ve çevrenin geokimyasal faktörlerine bağlıdır. Buradan yüksek toksik etkiye sahip olan uranyumun pH 10’da mikroorganizmalara olan toksik etkisinin daha düşük olduğu tespit edilmiştir. Bilindiği gibi pH 10’da çözeltinin redoks potansiyeli negatif olmaktadır [118]. Mikroorganizmalarda yükseltgenme ve indirgenme reaksiyonları enzimler aracılığıyla gerçekleştiği için uranyumun indirgenmesi için mikroorganizmalar gerekli enzimleri salgıladığı sonucuna varılabilir. Böylece pH 10’da mikroorganizmalar, toksik metalin salgıladıkları enzim ile indirgeyip çökmesine yol açarak kendilerini savunmuş olmaktadır. Yüksek uranyum konsantrasyonlarında mikroorganizmalar sadece indirgeme şartlarında (pH 10, redoks potansiyel eksi) büyüebilmesi, bu mikroorganizmaların indirgeyen enzimler salgıladığını göstermektedir.

İnkübasyonların hepsinde mikroorganizmaların maksimum büyümesi 3-7 gün içerisinde gerçekleştiği görülmüştür.

9 ay içerisinde sürekli aktarma işlemlerinden sonra mikroorganizmalar yüksek uranyum konsantrasyonlarında daha yoğun çoğalmaya ve uranyum bulunmayan besin ortamında ise daha yavaş oranda çoğalmaya başlamıştır. Uranyum konsantrasyonlarının daha yüksek olduğu ortamda (500mg/L ve 1000mg/L uranyum içeren) daha düşük konsantrasyonlarına (50mg/L ve 100mg/L uranyum içeren) nazaran daha fazla çoğaldığı gözlemlenmiştir. Ayrıca uranyum içermeyen 'Kompleks Media' ve agar, yada sadece agar içeren petrilere ise hemen hemen hiç büyüme olmadığı da görülmüştür (Şekil 6.3).

Daha önce 50mg/L uranyum konsantrasyonlarında çoğaltılmış U.D.K.M.'ların 500mg/L uranyum içeren ortamda büyüme göstermedikleri gözlenmiştir (Şekil 6.3, m). Bunun yanı sıra pH 4 ve pH 10'da mikroorganizmalar pH 7'deki gibi çoğalma göstermemiştir (Şekil 6.3, e, f). Örneklerin redoks potansiyeli pH'ye bağlı olarak değişmektedir. Buradan da aşağıdaki sonuca varılabilir: eğer mikroorganizmaların büyümesi pH bağlı ise redoks potansiyelin değişimine de bağlıdır. Büyümenin redoks potansiyele bağlı olması ise mikroorganizmaların çoğalmasında elektron vericilerin oksitlenmesi ve elektron alıcıların indirgenmesi süreçlerinin önemli yeri vardır. Kesikli reaktör deneylerde mikroorganizmaların çoğalması uranyum konsantrasyonunun yükseltgenmesi ile arttığı için uranyumun elektron alıcısı olmasından kaynaklandığı söylenebilir. Bunun yanı sıra mikroorganizmaların büyümesinin pH 7'de diğer pH olan pH 4 ve pH 10'a nazaran daha yüksek olduğunu belirtilmişti. pH 7'de redoks potansiyeli -50mV olarak ölçülmüştü. Bu da mikroorganizmaların elektron vericiden elektronu -50mV potansiyelinde daha aktif olabildiğini göstermektedir. Literatür taramasından bilindiği gibi bakterilerde farklı ORP (redoks potansiyel) değerlerinde farklı *Cytochrome* enzim türleri elektron transferinde katılmaktadır. *Cytochrome C3* enzimi de -50mV redoks potansiyelinde aktif olduğu da bilinmektedir [119]. Buradan da uranyumun indirgenmesinde işlev gördüğünü söylenmektedir.

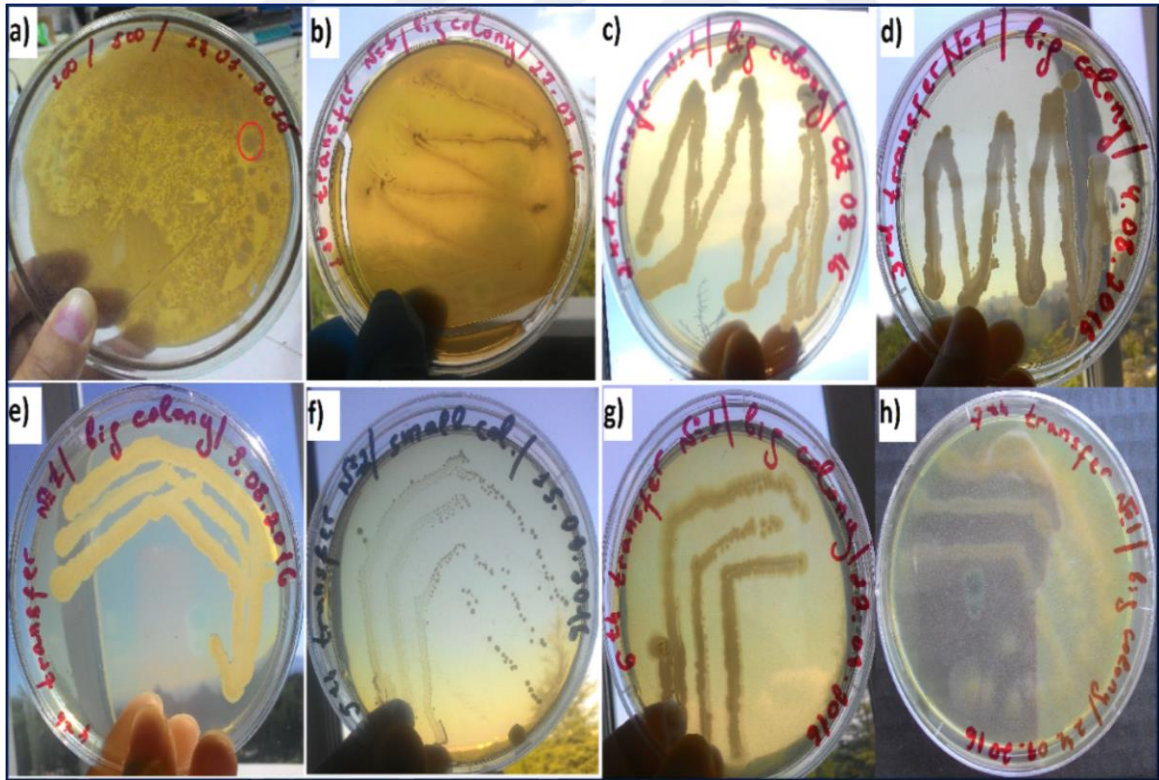


Şekil 6.4. ‘Kompleks Media’, Agar ve Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Petrilerde Daha Önce İzole Edilmiş U.D.K.M.’ların çoğalması: a) 50mg/L, b) 100mg/L, c) 500mg/L, d) 1000mg/L uranyum konsantrasyonunda, e) pH 4’te, f) pH 10’da, g) daha önce 50mg/L uranyum ortamında çoğaltılmış U.D.K.M.’lar sade agar ortamında, h) 100mgU/L’da çoğaltılmış sade agar ortamında, k) 500mg/L’da çoğaltılmış sade agar ortamında, l) 1000mgU/L’da çoğaltılmış U.D.K.M.’lar sade agar ortamında, m) 50mgU/L’da çoğaltılmış U.D.K.M.’ların 500mg/L U + ‘Kompleks media’ + agar ortamında çoğalması.

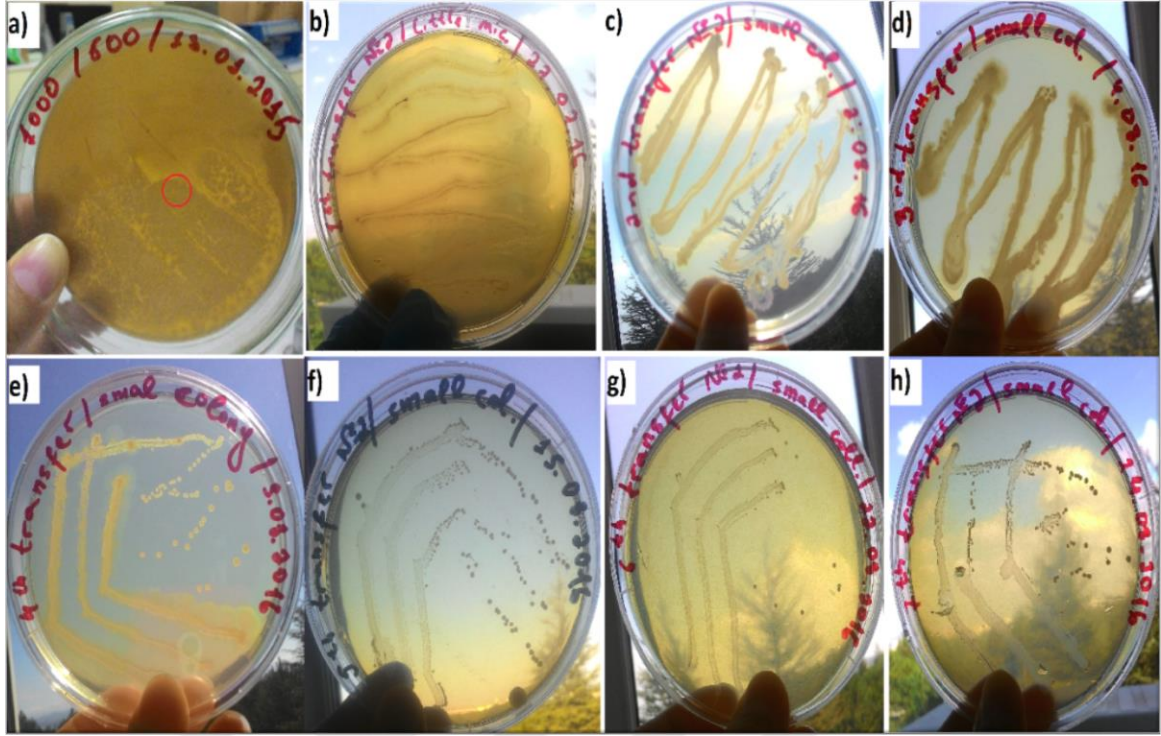
Uranyuma en fazla dayanıklı olan mikroorganizmaların, kesikli reaktör deneylerinde kullanılmak üzere 500mL'lik serum şişelerinde anaerobik şartlarda 'Complex Media'da büyümesi Şekil 6.1'de gösterilmiştir (Şekil 6.1). Bu mikroorganizmaların arasında uranyuma karşı tolere derecesinin belirlenmesi oldukça zordur. Ancak kullanılan karışık kültürler çok yüksek konsantrasyonlarda bile uranyuma tolere etmişlerdir. Bundan dolayı elde edilen karışık kültür türleri uranyumun çok yüksek olduğu sularda bile radyoaktif atıkların drenaj suları arıtma için kullanılabilir.

6.1.2. Uranyuma Dayanıklı Karışık Kültürlerin (U.D.K.M.) Türlerinin Belirlenmesi

Elde edilen uranyuma dayanıklı karışık kültürlerin (U.D.K.M.) türlerinin belirlenmesi için mikroorganizmaların saflaştırma işlemi yapıldı. Daha önce kesikli reaktör deneyleri için kullanılmak üzere seçilen büyük ve küçük koloniler petrilerde 7 kez aktarma yapılmak suretiyle saflaştırılmıştır. Büyük koloniden alınan örnek yeni petriye aktarılarak büyüdüktan sonra, örnek alınarak yeni petriye aktarılmıştır. Bu aktarma işi yedi kere daha tekrarlanmıştır. Küçük koloni için de aynı işlem tekrarlanmıştır (Şekil 6.4 ve 6.5).



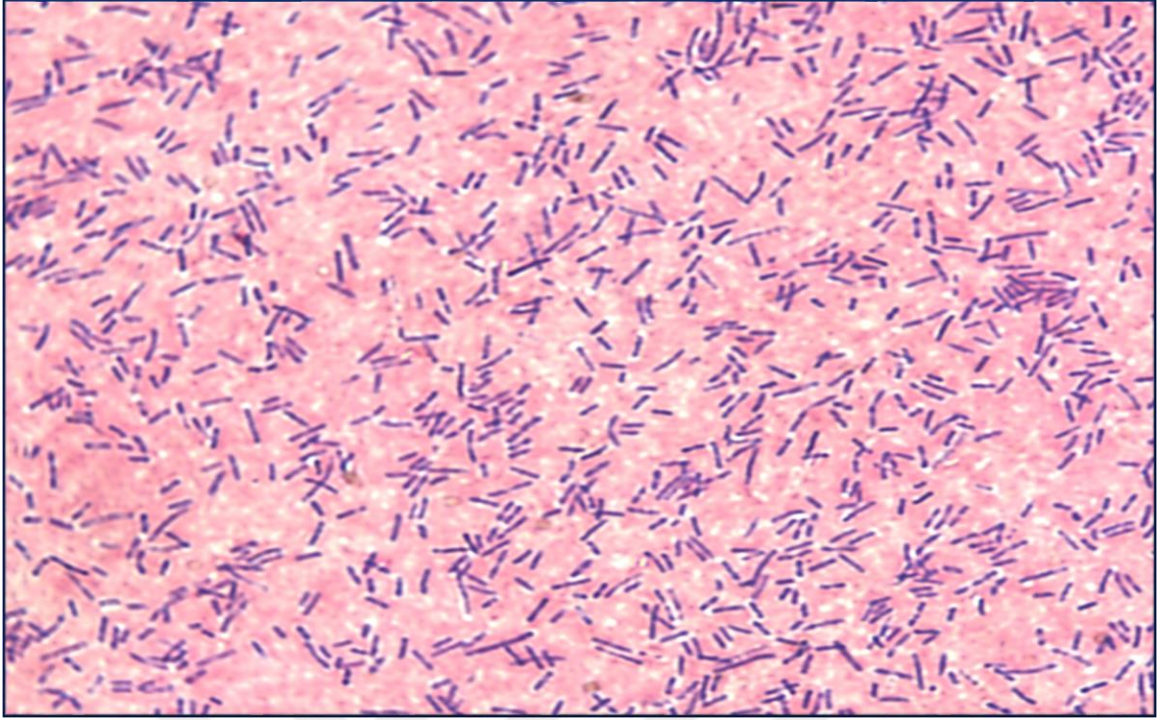
Şekil 6.5. Kesikli Reaktör Deney İçin Seçilmiş Olan Büyük Koloninin Saflaştırılması: a) seçilen büyük koloni, b) büyük koloninin birinci aktarması, c) ikinci aktarmadan sonra, d) üçüncü aktarmadan sonra, e) dördüncü aktarmadan sonra, f) beşinci aktarmadan sonra, g) altıncı aktarmadan sonra, h) yedinci aktarmadan sonra.



Şekil 6.6. Deney için Seçilmiş **Küçük Koloninin Saflaştırılması:** a) seçilen küçük koloni, b) küçük koloninin birinci aktarması, c) ikinci aktarmadan sonra, d) üçüncü aktarmadan sonra, e) dördüncü aktarmadan sonra, f) beşinci aktarmadan sonra, g) altıncı aktarmadan sonra, h) yedinci aktarmadan sonra.

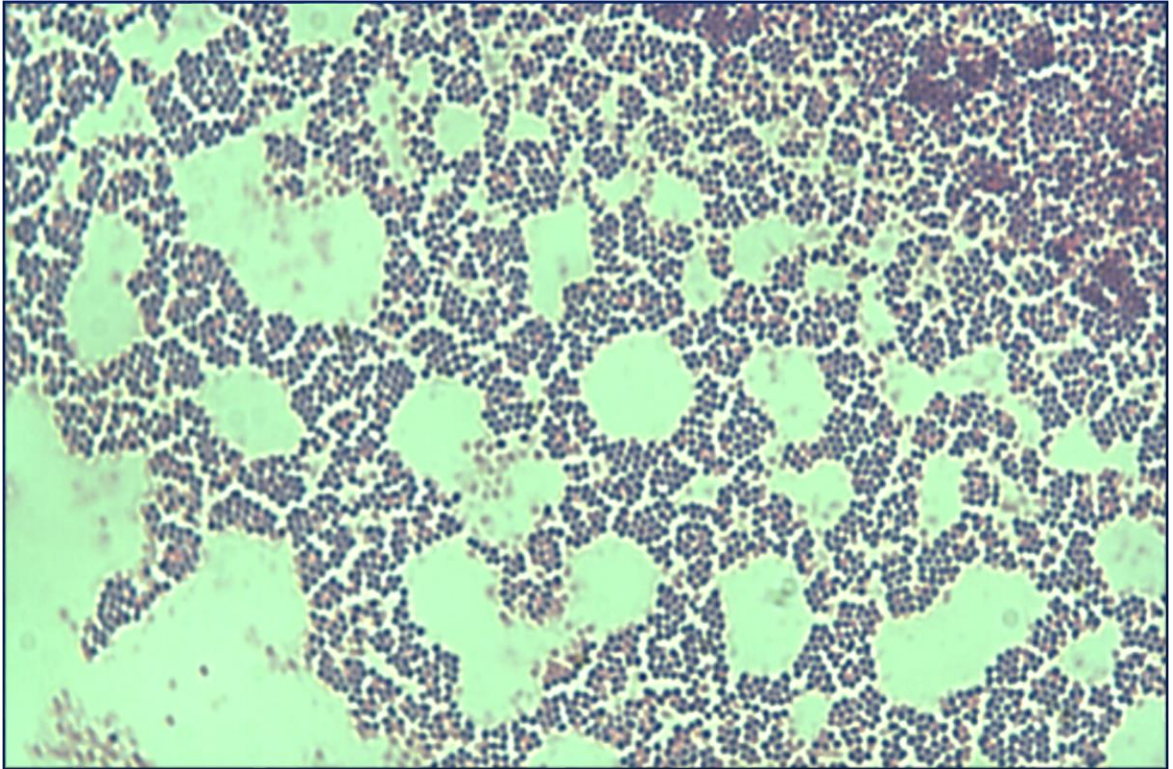
Yedinci aktarmadan sonra büyüyen koloniler gram boyama yapıldıktan sonra mikroskop altında elde edilen görüntülerin fotoğrafı çekilerek analiz edilmiştir.

Uranyuma karşı dayanıklı mikroorganizma türleri geliştirilmiş ve bu mikroorganizmalar içinden seçilmiş olan kolonilerin tür analizi için saflaştırılması, sonra da gram boyaması yapıldıktan sonra mikroskop altında fotoğrafları çekilmiştir (Şekil 6.6 ve 6.7).



Şekil 6.7. Büyük Koloninin Gram Boyama Sonucu Mikroskop Altındaki Görüntüsü

Sonuçta görüldüğü gibi büyük kolonideki kültürlerin gram pozitif basil türlerinden olduğu belirlenmiştir. Küçük kolonidekilerin ise gram pozitif koklar olduğu görülmektedir.



Şekil 6.8. Küçük Koloninin Gram Boyama Sonucu Mikroskopta Görüntüsü

6.1.3. Sudaki Uranyumun U.D.K.M. ile Giderim Deneylerinin Sonuçları

6.1.3.1. Birinci Set: 5-50mg/L Uranyum İçeren Suların Standart Şartlarda Giderilmesi

Düşük konsantrasyonlarda uranyum içeren suların (50mg/L, 25mg/L, 5mg/L), uranyuma dayanıklı karışık mikroorganizmalar ile gideriminin kesikli reaktör deneylerinde uranyum konsantrasyonunun değişiminin spektrofotometrede 651nm dalga boyunda ‘Arsenazo’ yöntemiyle ölçüldüğünde Çizelge 6.1’de verilen sonuçlar elde edilmiştir (Çizelge 6.1). Buradan görüldüğü gibi U.D.K.M. olmayan örneklerde uranyum konsantrasyonunda hemen hemen hiç değişim olmamıştır. Isıyla öldürülmüş U.D.K.M. olan örneklerde ise giderim gözlenmekle birlikte canlı U.D.K.M. olan örneklerle nazaran daha düşük olmuştur. Bundan dolayı sudaki uranyumun gideriminde sadece mikroorganizmaların adsorpsiyonu değil, canlı mikroorganizmaların bünyesindeki biyolojik süreçlerin de önemli katkısı olduğu söylenebilir.

Benzer sonuçlar uranyumun anaerobik bakterilerle giderim çalışmalarında da elde edilmiştir. Örneğin, Jin-xian ve arkadaşları, *Shewanella oneidensis* MR-1 anaerik bakteri türüyle standart şartlarda (pH 7, oda sıcaklığı) sudaki uranyumun %99’nu 96 saatte gidermişler ve uranyumun başlangıç konsantrasyonu olarak 20mg/l, 50mg/L, 80mg/L kullanmışlardır [120]. Senko arkadaşlarıyla, 24mg/L uranyumun %60’dan fazlasını standart şartlarda *Shewanella putrefaciens* CN32 anaerobik bakteri türleriyle 3-18 gün içerisinde gidermişlerdir [121]. Standart şartlarda %16 U(VI) *Bacillus* anaerobik bakteri türleriyle 1.5 günde giderilmiştir [122]. Bunun gibi tek tür anaerobik bakterilerle standart şartlarda sudaki uranyumun giderilmesi ile ilgili birçok çalışmalar mevcuttur [108], [123], [102], [70], [124], [125].

Çizelge 6.1. U.D.K.M. ile Birinci Set Deneylerde Uranyumun Değişimi, mg/L, %

Canlı/ölü bakteri/bakterisiz BMM – Uranyum	C ₀ (mg/L)	C _e (mg/L)	Giderim Yüzdesi, (%)
BMM-50	50,00	32,30	35,40
BMM-25	25,00	20,10	19,60
BMM-5	5,00	4,30	14,00
Öldürülmüş-50	50,00	10,74	78,47
Öldürülmüş-25	25,00	10,77	56,92
Öldürülmüş-5	5,00	3,80	24,00
Canlı-50	12,86	10,77	78,53
Canlı-25	12,07	10,71	57,17

Canlı-5	12,55	10,80	40,00
---------	-------	-------	-------

6.1.3.2. İkinci Set: 100mg/L Uranyum İçeren Suların Farklı pH ve ORP Şartlarında Giderilmesi

Sudaki uranyumun farklı redoks potansiyeli (50mV, 100mV, -50mV and -100mV) ve pH (3; 5; 7; 10) şartlarında uranyuma dayanıklı mikroorganizmalar (U.D.K.M.) ile anaerobik kesikli reaktör deneylerinde giderim oranının zamanla değişimi Box-Behenken programının yardımıyla üç boyutlu grafiklerde gösterilmiştir (Şekil 6.8).

Sudaki uranyumun konsantrasyonunun değişiminin mg/L değerinde elde edilmesi için ‘Arsenazo’ yöntemiyle 651nm dalga boyunda ölçülen değerlerin, standart çözeltilerin 651nm verdiği ışık boyu değerleriyle kıyaslanarak interpolasyon yöntemiyle hesaplanmış ve giderim yüzdeleri bulunmuştur (Çizelge 6.2).

Sudaki yüksek konsantrasyon uranyumun (100mg/L’nin üzeri) tek tür anaerobik bakterilerle yapılan farklı çalışmalarda da %80 üzeri giderim 3 – 16 gün içinde elde edilmiştir [106], [102], [126], [127], [128]. *Pantoea*, *Pseudomonas* ve *Entorobacter* saf anaerobik bakteri türleriyle U(VI) başlangıç 400mg/L’nin %88’i pH 5-6’da 24 saatte giderilmiştir [129]. Martins ve arkadaşları uranyumun giderimi için asidik (pH 4) ve nötr (pH 7) pH değerlerini denediklerinde pH 7’de daha yüksek giderim elde etmişlerdir [80].

Çizelge 6.2. U.D.K.M. ile İkinci Set: Uranyumun Değişimi, mg/L, % (Deneyler dörder kere tekrarlandığı için sonuçların ortalama değerleri ve standart sapmaları verilmiştir)

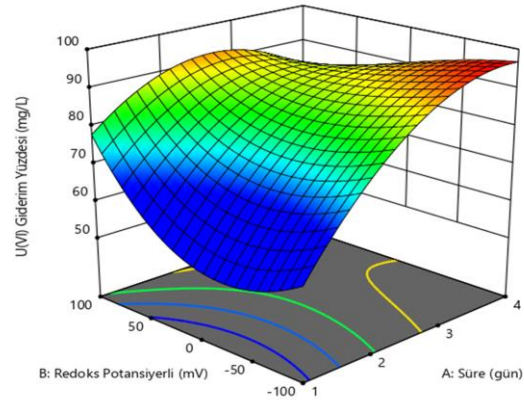
ORP/pH	C ₀ (mg/L)	C _e (mg/L)	Giderim Yüzdesi (%)
100mV/ pH 3	100 ± 0	10,01 ± 5,02	84,42 ± 5,28
50mV /pH 5	100 ± 0	12,15 ± 7,41	86,94 ± 7,97
-50mV/pH 7	100 ± 0	7,22 ± 3,13	92,24 ± 3,37
-100mV/ pH 10	100 ± 0	10,84 ± 3,37	88,35 ± 7,59

Design-Expert® Software
Factor Coding: Actual

U(VI) Giderim Yüzdesi (mg/L)
67,2 96,5988

X1 = A: Süre
X2 = B: Redoks Potansiyerli

Actual Factor
C: Örnek = 1. Örnek

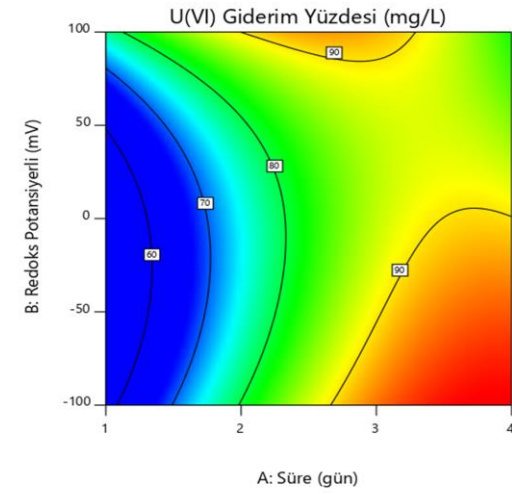


Design-Expert® Software
Factor Coding: Actual

U(VI) Giderim Yüzdesi (mg/L)
67,2 96,5988

X1 = A: Süre
X2 = B: Redoks Potansiyerli

Actual Factor
C: Örnek = 1. Örnek

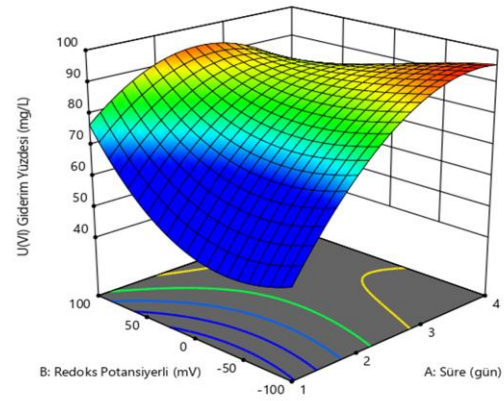


Design-Expert® Software
Factor Coding: Actual

U(VI) Giderim Yüzdesi (mg/L)
67,2 96,5988

X1 = A: Süre
X2 = B: Redoks Potansiyerli

Actual Factor
C: Örnek = 2. Örnek

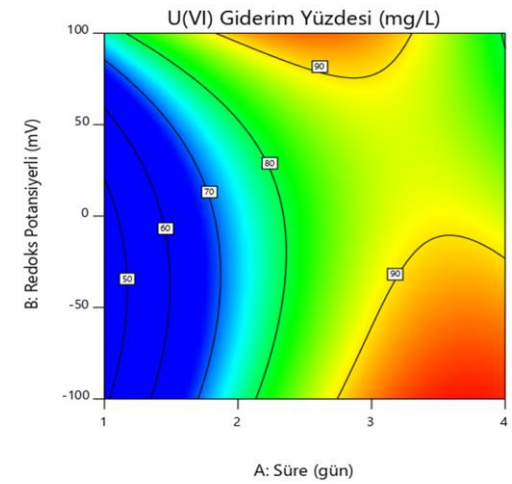


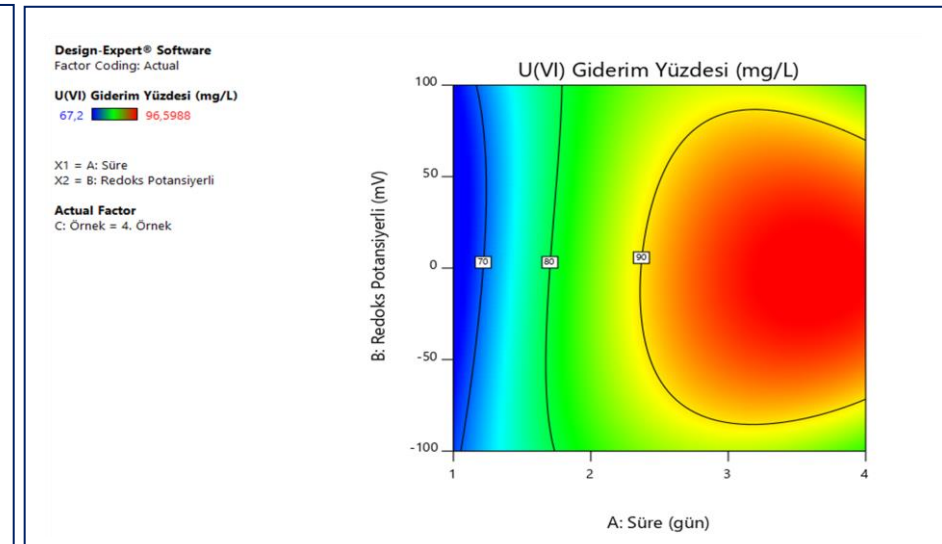
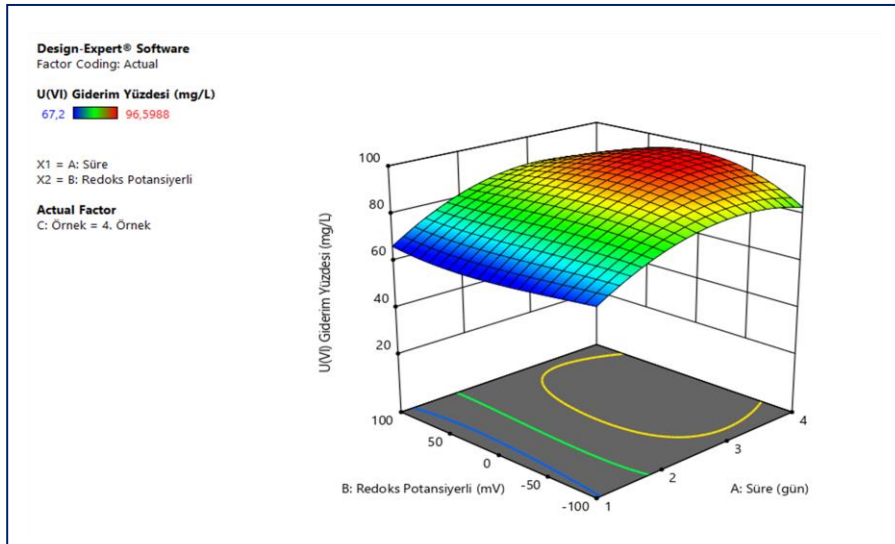
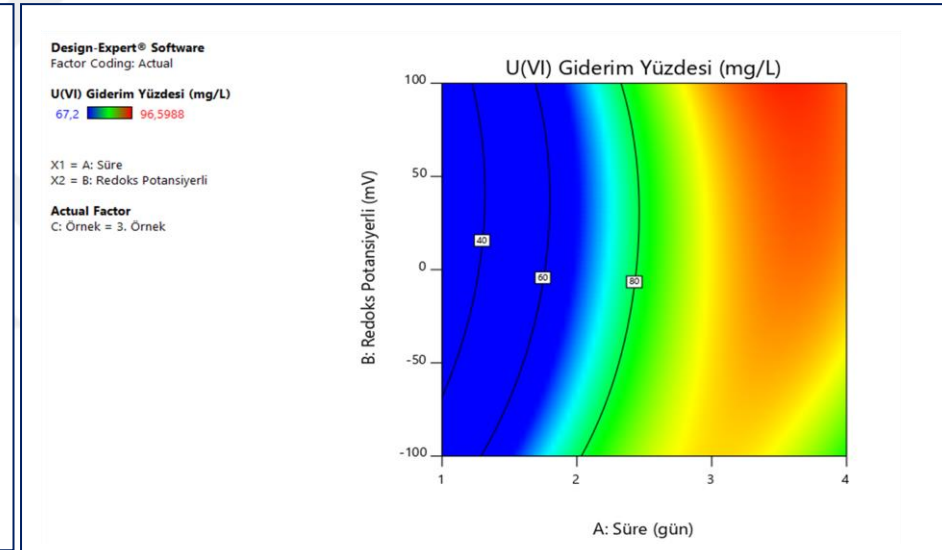
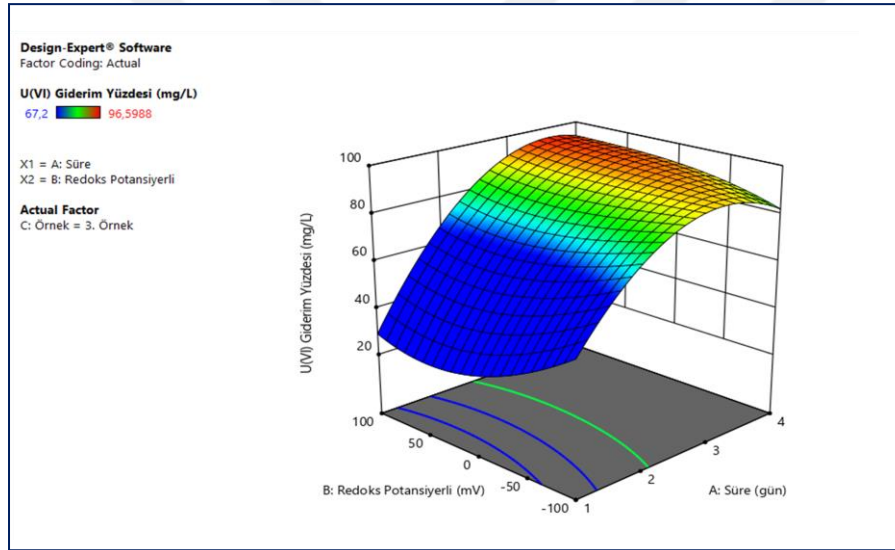
Design-Expert® Software
Factor Coding: Actual

U(VI) Giderim Yüzdesi (mg/L)
67,2 96,5988

X1 = A: Süre
X2 = B: Redoks Potansiyerli

Actual Factor
C: Örnek = 2. Örnek





Şekil 6.9. U.D.K.M. ile Uranyum Giderim Kesikli reaktör Deneylerinde U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi ve Giderim Yüzdesi, %

6.1.3.3. Redoks Potansiyelin Etkisi

Sudaki uranyumun U.D.K.M. ile gideriminde Redoks Potansiyelin etkisinin önemini görebilmek için Box-Behenken programıyla hesaplanan ANOVA sonuçlarına bakılabilir. Modelin **F-value** değeri 8,41 olması bu modelin önemliliğini göstermektedir. **P-değerlerinin** 0,0500'den daha küçük olması parametrenin (süre, ORP) etkisinin önemini göstermektedir. Burada aşağıdaki parametreler önemlidir: A, AB, AC, A², ABC, AB², B²C. Yani, Redoks potansiyel süre ile beraber önemlidir (Çizelge 6.3).

Çizelge 6.3. ANOVA Statistik Analiz Sonuçları (Uranyum Giderim Yüzdesi)

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	2413,02	26	92,81	8,41	< 0.0001	significant
A-Süre	711,63	1	711,63	64,49	< 0.0001	
B-Redoks Potansiyerli	2,39	1	2,39	0,2165	0,6465	
C-Örnek	80,13	3	26,71	2,42	0,0946	
A ²	460,60	1	460,60	41,74	< 0.0001	
ABC	512,04	3	170,68	15,47	< 0.0001	
Residual	231,73	21	11,03			
Cor Total	2644,76	47				

En yüksek uranyumun giderimi negatif redoks potansiyelinde olan örneklerde gerçekleşti: -50mV ve -100mV ORP değerlerinde uranyum konsantrasyonu 100mg/L'den 3,799mg/L ve 3,657mg/L konsantrasyonlarına kadar azalmıştır. Böylece uranyum gideriminde negatif ORP değerlerinde (-50mV ve -100mV) pozitif ORP değerlerine (50mV ve 100mV) nazaran daha iyi sonuç vermiştir. Pozitif redoks potansiyeldeki örneklerde uranyum giderimi %78 – %95,6 arasında iken negatif redoks potansiyeldeki örneklerde %81 ile %96,3 arasında sonuç elde edilmiştir (Çizelge 6.2). Şekil 6.9'da görüldüğü gibi zamana karşı uranyumun yüzde gideriminde -100Mv ORP değerinde en yüksek ve 100mV ORP değerinde en düşük giderim elde edilmiştir (Şekil 6.9). Uranyumun gideriminin redoks potansiyele bağlı olması mikroorganizmalar ile uranyumun arasında elektron alışverişi olduğunun kanıtıdır. Buradan, giderilen uranyumun bir kısmının suda iyi çözünen uranyum (VI)'nın suda çözünmeyen uranyum (IV) haline indirgenerek çöktürüldüğü sonucuna varılabilir.

Buna benzer sonuçlar başka çalışmalarda da elde edilmiştir. Örneğin, Abdelouas arkadaşları sudaki uranyumu -100mV ve -300mV ORP değerlerinde gidermeyi denemişlerdir. Sonuçta -100mV ORP değerinde %73 giderim elde edilmişken, ORP -300mV'a düşürüldüğünde giderim %100 olmuştur [130]. Gargarello ve arkadaşlarının *Acidithiobacillus thiooxidans*

anaerobik bakterileriyle yaptıkları uranyum giderim çalışmalarında ise, uranyumun giderilmesiyle beraber ORP değerini sürekli düşmüştür [131]. Yani U(VI)'nın indirgenmesinde redoks reaksiyonları gerçekleşmiştir.

6.1.4. Üçüncü Set: Ultra Safsu Ortamında Uranyumun U.D.K.M. ile Giderilmesi

U.D.K.M. ile üçüncü set deneylerde uranyumun konsantrasyonunun ve giderim yüzdesinin değişimi Çizelge 6.4'de gösterildiği gibidir. Giderim 7 gün içinde gerçekleşmiştir.

Çizelge 6.4. Ultra Safsu Ortamında Uranyumun U.D.K.M. ile Gideriminde Uranyum Konsantrasyonunun Değişimi, mg/L

Canlı/Ölü U.D.K.M. – Ultra Safsu Ortamında Uranyum	C ₀ (mg/L)	C _e (mg/L)	Giderim %
Bakterisiz ultra safsu	114,14	111,66	2,18
Öldürülmüş U.D.K.M.- 50mgU/L	70,96	53,95	23,97
Öldürülmüş U.D.K.M.- 100mgU/L	52,61	40,96	22,15
Öldürülmüş U.D.K.M.-500mgU/L	71,34	41,64	33,68
Öldürülmüş U.D.K.M.-1000mgU/L	50,89	73,63	30,00
Canlı U.D.K.M. -50mgU/L	59,87	42,29	29,36
Canlı U.D.K.M. -100mgU/L	56,24	40,38	28,20
Canlı U.D.K.M. -500mgU/L	55,10	44,01	20,12
Canlı U.D.K.M. -1000mgU/L	42,87	44,39	53,00
Canlı U.D.K.M.+E. V. -50mgU/L	57,20	47,64	16,70
Canlı U.D.K.M.+E. V. -100mgU/L	73,44	42,87	41,63
Canlı U.D.K.M.+E. V.-500mgU/L	58,15	57,96	0,33
Canlı U.D.K.M.+E.V.-1000mgU/L	50,51	50,32	0,38

Ultra safsuda uranyumun giderim yüzdelerine bakıldığında, ısıyla öldürülmüş U.D.K.M.'lar ile yapılan deneylerde canlı U.D.K.M ile yapılanlara nazaran daha düşük uranyum giderimi olduğunu görebiliriz. Canlı mikroorganizmalar, öldürülmüş olanlara nazaran adsorpsiyonun yanı sıra bioakümülyasyon ve biyoindirgemeye de uranyumu giderdiği için daha fazla uranyum giderilmesine sağlamıştır. Isıyla öldürülmüş mikroorganizmalar uranyumu ancak

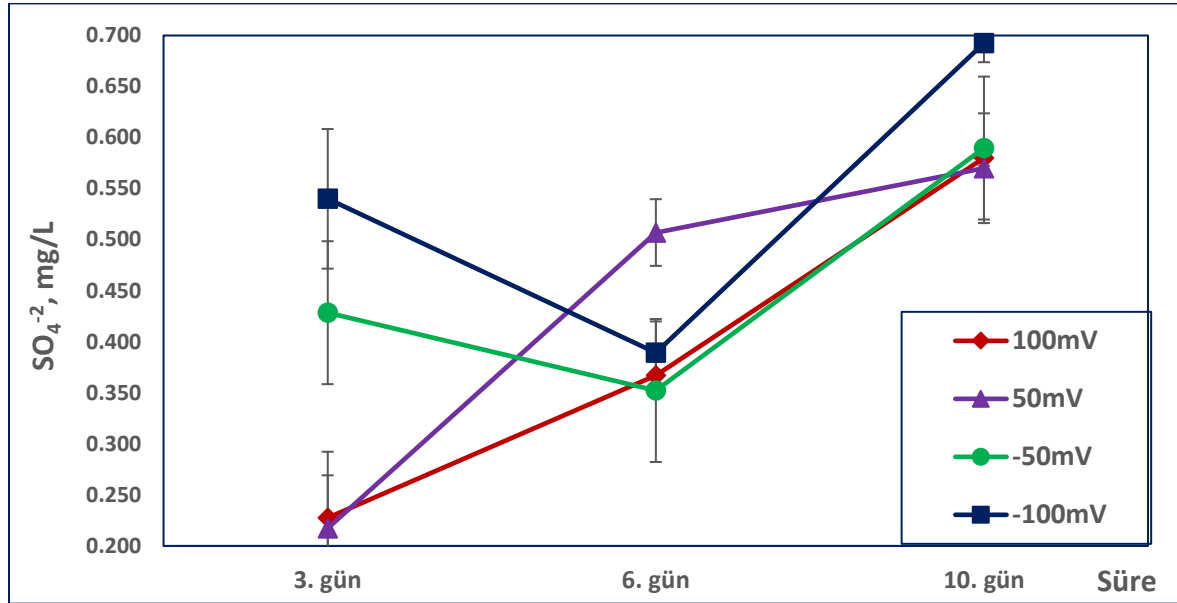
adsorpsiyonla alabildikleri için, burada ölü U.D.K.M. ile elde edilen sonuçlara bakarak sudaki uranyumun yaklaşık % 22 - 33 adsorpsiyon ile giderildiği sonucuna varılabilir. Elektron verici olmayan canlı U.D.K.M. ile yapılan ve ısıyla öldürülmüş U.D.K.M. ile yapılan deneylerin sonuçlarının farklarına bakılarak biyoakümülyasyonla ne kadar uranyum giderildiği yaklaşık olarak tahmin edilebilir. Ortamda elektron verici olmadığı için canlı U.D.K.M. uranyumu indirgeyememektedir, dolayısıyla uranyum biyosorpsiyonla veya biyoakümülyasyonla bünyesine alabilir. Böylece yaklaşık olarak elektron verici olmayan canlı U.D.K.M. ile ısıyla öldürülmüş U.D.K.M.'dan elde edilen sonuçların ararak akümülyasyon ile giderimi farkı %5.394 (canlı U.D.K.M. giderim yüzdesi – ölü U.D.K.M.) elde edilir. Yani sudaki uranyumun yaklaşık %5'inin biyoakümülyasyonla giderildiği sonucuna varılabilir. Canlı U.D.K.M. + E.V. olan örneklerde düşük giderim gözlenmesi uranyumun biyoindirgeme ile giderilmesi için mikroorganizmaların temel besin ortamına ihtiyaç duyulmasından kaynaklandığı söylenebilir.

Ray ve arkadaşlarının benzer çalışmasında elektron verici (laktat) bulunan ve olmayan canlı anaerobik bakterilerle yapılan deneylerde hemen hemen benzer giderimler elde edilmiştir. Toplam %60 kadar uranyum giderimi elde edilmiştir [132].

Ultra safsu ortamında uranyumun U.D.K.M. ile giderimi en fazla % 35-40 civarında olması, uranyumun giderimi için mikroorganizmaların biyokimyasal reaksiyonların gerçekleşmesinin çok önemli olduğunu göstermektedir. Zira mikroorganizmaların aktif biyokimyasal reaksiyonlarının gerçekleştiği BMM ortamında uranyum gideriminde daha yüksek sonuçlar elde edilmiştir.

6.1.5. Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi

Kesikli reaktör deneylerde sülfat konsantrasyonunun değişim Şekil 6.10'da gösterildiği gibidir.



Şekil 6.10. U.D.K.M. ile Sudaki Uranyumun Farklı ORP Değerlerinde Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi (Deneyler Dörder Kere Tekrarlandığı İçin Ortalama Değerlerine Göre Standart Sapmaları Verilmiştir)

Şekilde de görüldüğü gibi deney sırasında örneklerde sülfat konsantrasyonu zamanla artmıştır. U.D.K.M. içinde sülfatı indirgeyerek tüketen Sülfat İndirgeyen Bakterilerin (S.İ.B.) bulunmadığını söyleyebiliriz. Negatif ORP değerlerinde (-100mV ve -50mV) sülfat konsantrasyonlarının daha çok arttığı da görülmektedir. Negatif ORP değerlerinde uranyum gideriminin de daha yüksek olduğu belirlenmiştir.

6.1.6. Uranyum (VI)'nın U.D.K.M. ile İndirgenme Hızının Hesaplanması

Uranyum (VI)'nın U.D.K.M. ile indirgenme hızı hesaplanmış ve sonuçları Çizelge 6.5'te gösterilmiştir.

Reaksiyon hızının sabitinin yanısıra burada, bu sabitin U(VI) konsantrasyonunun değişiminin logaritmasına karşı ve reaksiyonunu sabit enerjisinin değişimine karşı değişimi de hesaplanmıştır. U(VI) indirgenme hızının sabiti (k , saat⁻¹) ile uranyumun konsantrasyonunun değişiminin logaritması için elde edilen doğrusal regresyon eğrileri, uranyum indirgemesinin doğrusal olduğunu göstermiştir. Bu nedenle uranyumun indirgenmesinin hızının hesaplanmasında birinci dereceden kinetik denklemler kullanılabileceği görülmüştür (Şekil 6.11). Bu da uranyumun indirgeme reaksiyonunun sadece bir parametreye bağlı olduğunun

göstergesidir. Bunun da uranyum konsantrasyonu olduğu, bakteri konsantrasyonuna bağlı olmadığı belirlenmiştir.

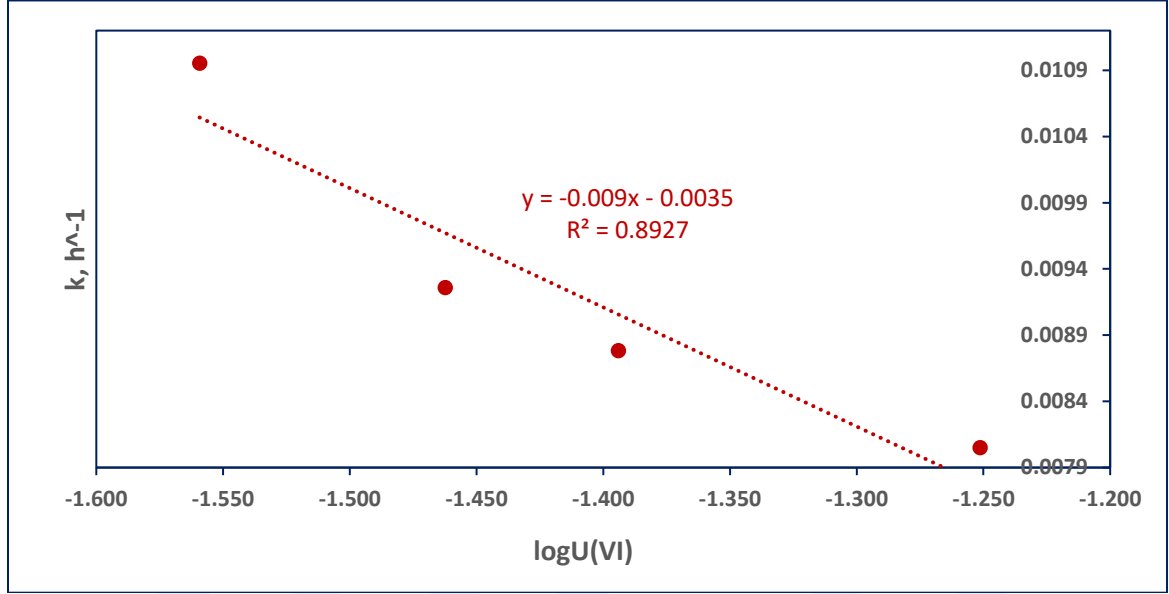
U(VI)'un indirgenmesinin hız sabitinin U(VI) konsantrasyonuna göre değişmesi, uranyum konsantrasyonunun U(VI)'nın U.D.K.M. ile indirgenmesinin reaksiyon kinetiğini kontrol ettiğini göstermektedir. Şekil 6.12b'den de görüldüğü gibi, uranyumun indirgenme hızı genellikle U(VI) konsantrasyonunun artmasıyla artmaktadır (Şekil 6.12, b). Benzer sonuç Roden ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada da elde edilmiştir [133].

Buradan gördüğümüz gibi -100mV ORP olan reaktörlerde uranyumun indirgenme hızının sabiti tüm ORP değerlerinde (100mV, 50mV, -50mV ve -100mV) uranyumun indirgenme hız uranyum konsantrasyonu arttıkça sürekli artmaktadır. Giderim hızı hız sabitiyle doğru orantılı olduğu için hızı da uranyum konsantrasyonu arttıkça artıyor demektir. Negatif ORP değerinde (-100mV) giderim hız sabiti daha çok artmaktadır. Çünkü negatif redoks potansiyellerde mikroorganizmalar elektron transferi için özel enzimler salgıladıkları için uranyumun indirgenmesi için daha elverişli koşullar olup, uranyum çoğunlukla suda çözünen U(VI) halinden suda çözünmeyen U(IV) haline indirgenerek çökerek uzaklaştırılmaktadır. Uranyum burada çoğunlukla indirgenerek çöktüğü için daha fazla uranyum giderilmektedir. Sonuçta negatif redoks potansiyellerde uranyum çoğunlukla çözünmeyen hale (U(IV) indirgenerek giderilmektedir.

Kinetik ve termodinamik hesaplama sonuçları Çizelgede 6.5'te verilmiştir. Çizelgeden görüldüğü gibi, uranyumun U.D.K.M. ile indirgenmesi enerji açısından elverişlidir. En elverişli koşullar -50mV ORP ve pH 7 değerleri bulunmuştur. Yani Gibbs enerjisi negatiftir. Çizelgeden görüldüğü gibi -50mV'da uranyumun indirgenme hız sabiti $k = 0.011 \text{ saat}^{-1}$ 'tir. Bu değer benzer çalışmalardan elde edilen sonuçlarla kıyaslandığında; *Shewanella* için $k = 0,02 \text{ saat}^{-1}$ [134], *Geobacter sulfureducens* için $k = 0,16 \text{ saat}^{-1}$ [135], demir indirgeyen bakteriler için $k = 0,15 \text{ saat}^{-1}$ [136] olduğunu hesaplamışlardır. Bundan en düşük uranyum giderim hız sabitinin *Desulfitobacterium sp.* Viet1 [137] ve *G.lovleyii* [138] anaerobik bakteri türleri için de hesaplandığı görülmüştür. Mullen ve arkadaşları birinci dereceden uranyum giderim hız sabitinin kullanılan bakteri konsantrasyonu azaldıkça azaldığını göstermişlerdir [134]. Bu yüzden bu çalışmada düşük U.D.K.M. konsantrasyonu kullanıldığı için düşük uranyum giderim hız sabiti elde edilmiştir. Ancak Senko ve arkadaşları, U(VI)'nın çok yavaş giderilmesi, yani giderim hız sabitinin çok düşük olmasının daha fazla UO_2 çöktürmelerinin oluşmasına yol açtığını ve dolayısıyla indirgenen uranyumun çevrenin

oksitleyici faktörlerine karşı daha çok dirençli olduğunu kendi çalışmalarında göstermişlerdir [121].

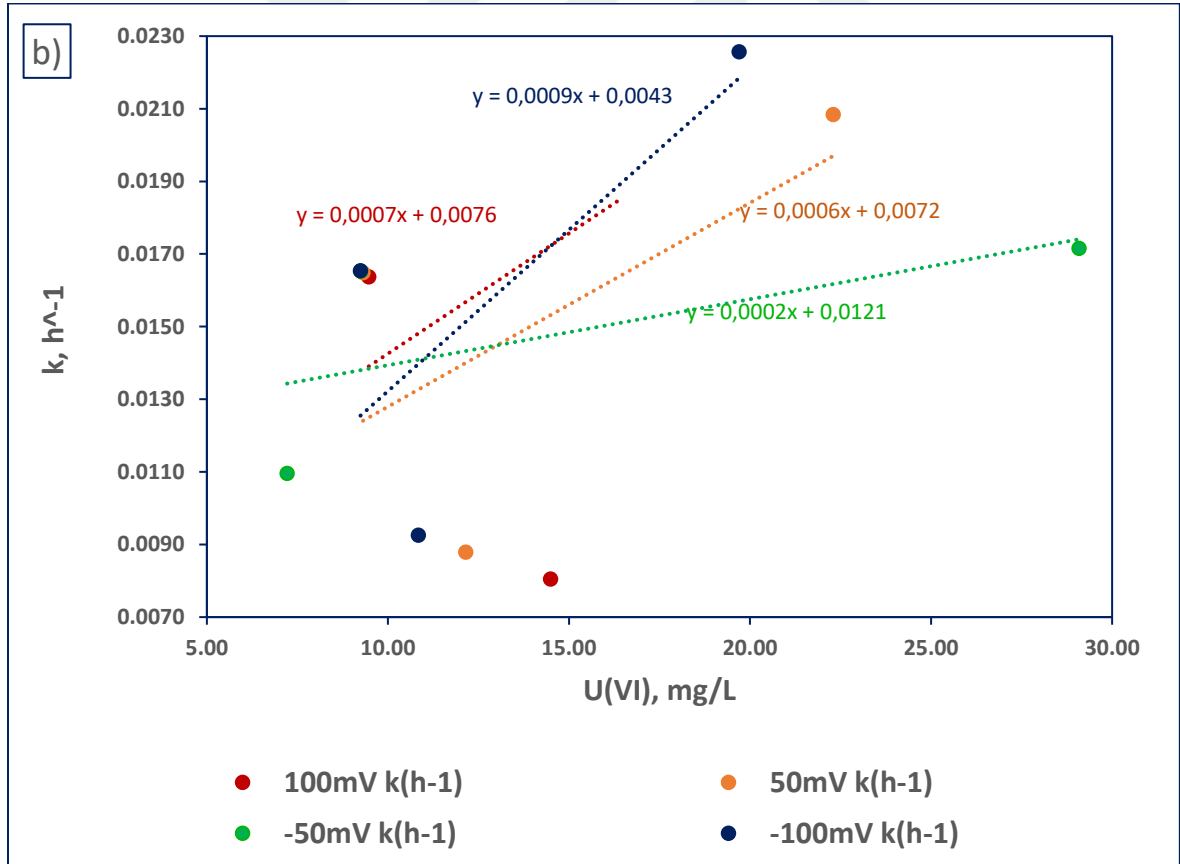
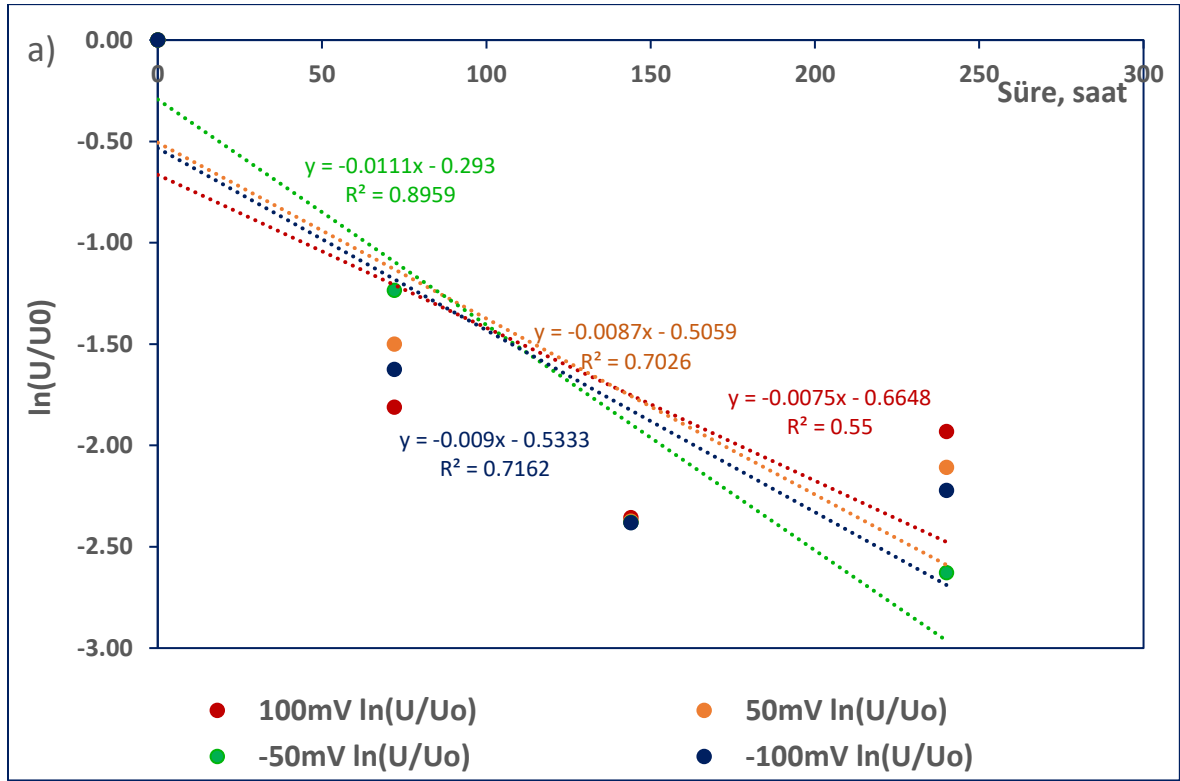
Uranyumun giderim hızına pH'ın etkisine bakılırsa Dargent ve arkadaşları düşük pH (asidik) değerleri kullandıkları çalışmalarında pH arttıkça uranyumun giderim hız sabitinin de arttığını belirtmektedirler [139]. Burada da U.D.K.M. ile asidik ortamdan nötr pH'a kadar uranyumun giderim hız sabitinin sürekli arttığı görülmüştür.



Şekil 6.11. Farklı ORP Değerlerinde Uranyum Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin k, U(VI) Konsantrasyonunun Logaritmasına Karşı Değişimi.

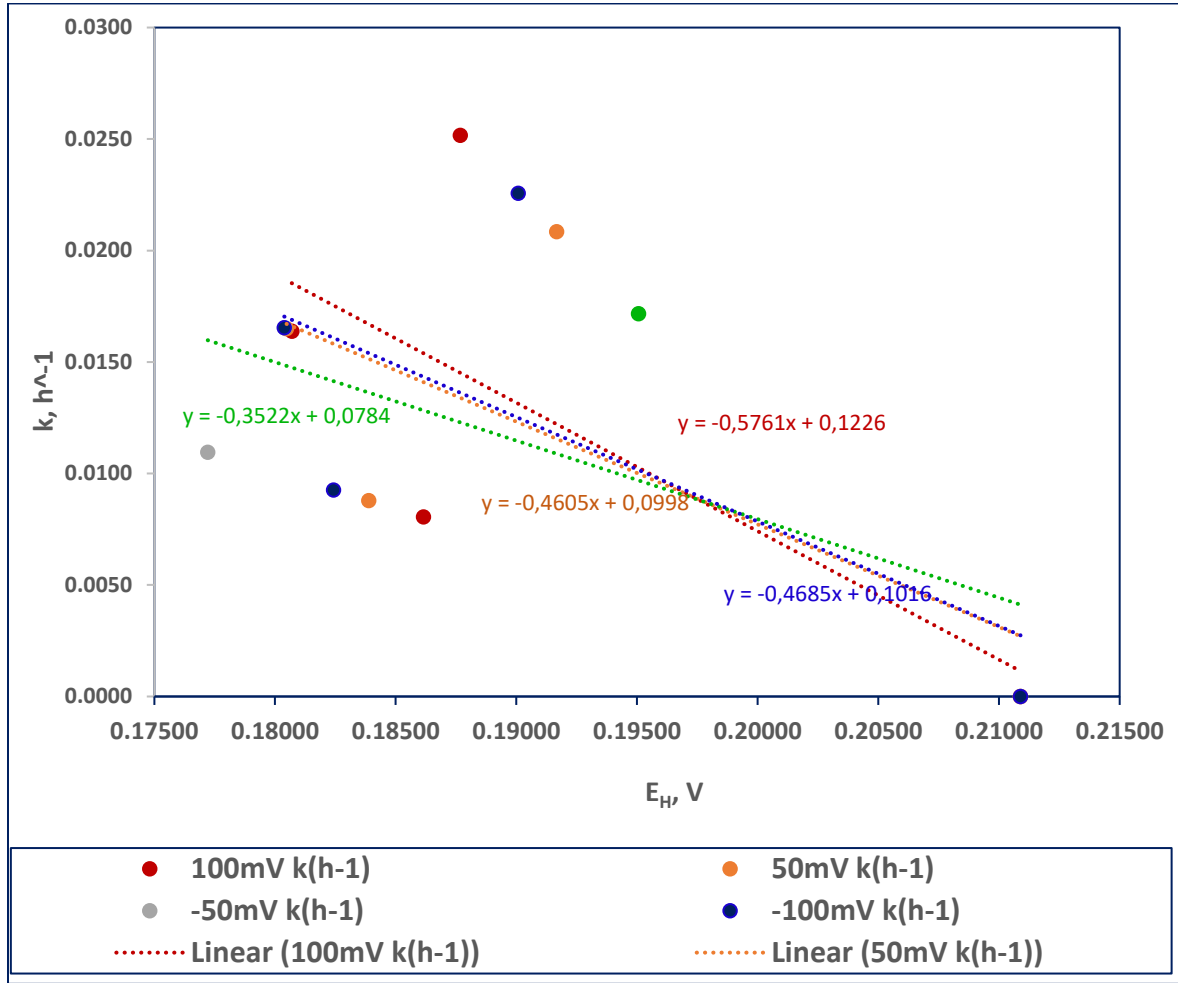
Çizelge 6.5. Uranyumun U.D.K.M. ile İndirgenmesinin Kinetik ve Termodinamik Hesaplama Sonuçları

ORP, mV/pH	100mV/pH3	50mV/pH5	-50mV/pH7	-100mV/pH9
C ₀ , mg/L	100 ± 0	100 ± 0	100 ± 0	100 ± 0
C _e , mg/L	10.01 ± 5.02	12.15 ± 7.41	7.22 ± 3.13	10.84 ± 3.37
k _(hesaplanan) , saat ⁻¹	0.0081 ± 0.0018	0.0088 ± 0.0029	0.01095 ± 0.0018	0.0093 ± 0.0033
k _(deneysel) , saat ⁻¹	0.0075	0.0087	0.0111	0.009
Q, kJ	0.03876	0.01129	0.00029	0.00508
ΔG, kJ/mol	-8761.796733	-11815.97472	-20846.38592	-13795.55071
E _H , V	0.1861 ± 0.0057	0.1839 ± 0.00917	0.1772 ± 0.0056	0.1824 ± 0.0100

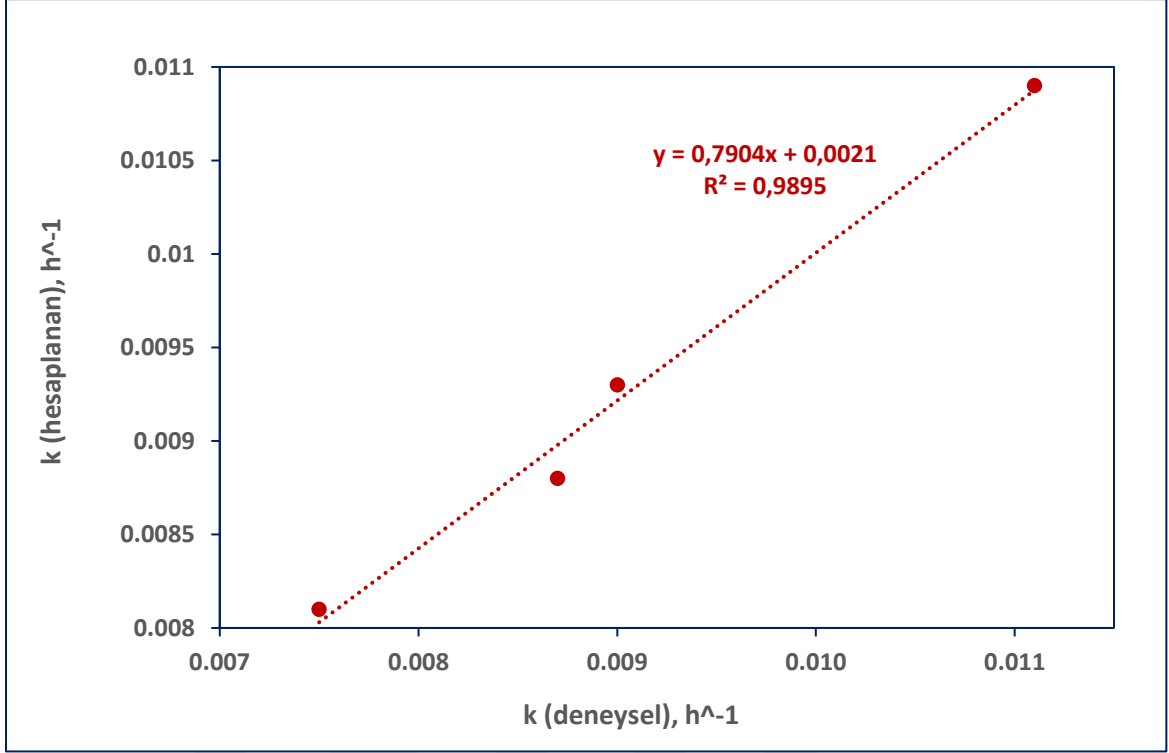


Şekil 6.12. Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun U.D.K.M. ile Giderim Kesikli Reaktörlerinde: a) deneysel hız sabitinin bulunması için $\ln(U/U_0)$ ' nin zamana karşı grafiği, b) Uranyumun İndirgeme Hız Sabitinin k , $U(VI)$ Konsantrasyonuna Karşı Değişimi.

Uranyumun indirgenme yarı reaksiyonunun hız sabitleri, hesaplanan potansiyeliyle lineer korelasyon göstermektedir (Şekil 6.13). Şekilden görüldüğü gibi, U (VI) indirgenme oranı redoks potansiyelinin artması ile azalmaktadır. Bu da, uranyum indirgeme oranının redoks potansiyeline bağlı olduğunu gösterir ve indirgeme koşullarında iken negatif (düşük) redoks potansiyelinde uranyum giderimi arttıkça ORP azalması ile giderilir. Bu sonuçlar deneylerde elde edilen laboratuvar sonuçlarıyla eşleşmektedir.



Şekil 6.13. Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun U.D.K.M. ile Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin Effektif Redoks Potansiyele Göre Değişimi



Şekil 6.14. Uranyumun U.D.K.M. ile İndirgenme Hız Sabitinin Hesaplanan ve Deneysel Değerleri Arasındaki Bağlantı

Uranyumun U.D.K.M. ile indirgenme hız sabitinin hesaplanan ve deneysel değerlerinin birbirine yüksek uyum sağladıkları Şekil 6.13’de görülmektedir ($R^2=0.9895$).

6.1.7. Termodinamik Hesaplamalar

Uranyumun indirgenmesi için eletron verici olarak glüköz kullanıldığı için termodinamik hesaplamada aşağıdaki gibi reaksiyon eşitliği kullanılmıştır:



Şekil 6.15a’da görüldüğü gibi uranyumun glüköz ile indirgeme reaksiyonunun Gibbs Serbest Enerjileri 100mg/L uranyum konsantrasyonu için başlangıçta pozitifdir. Yani uranyum U(VI)’nın glüköz ile indirgenmesi normal şartlarda enerji açıdan elverişli değildir. Dolayısıyla bu reaksiyon dış etken olmadan kendi kendine gerçekleşemez. Böylece uranyumun glüköz ile indirgenmesi için mikroorganizmaların enzimlerine gerek duyulmaktadır. Reaksiyonun Serbest Enerjisinin hesaplama sonuçları Çizelge 6.5’de gösterilmektedir (Çizelge 6.6, Şekil 6.15).

Denklem [6.1]’de görüldüğü gibi, reaksiyona katılan ve reaksiyon sonucu oluşan bileşiklerin mol değerleri aşağıdaki gibidir:

$$\eta\{\text{UO}_2^{2+}\} = \eta\{\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6(\text{s})\} = \frac{1}{2}\eta\{\text{HCO}_3^-\} = \eta\{(\text{CH}_3)(\text{CH}_2)_2\text{COO}^-\} = \frac{1}{5}\eta\{\text{H}^+\} \quad [6.2]$$

Dolayısıyla kimyasal reaksiyon sabiti aşağıdaki eşitlikle bulunur:

$$Q_1 = \frac{\{CH_3CH_2COO^-\}\{HCO_3^-\}^2\{H^+\}^5}{\{UO_2^{2+}\}} = \frac{\eta \cdot (\eta \cdot 2)^2 \cdot (\eta \cdot 5)^5}{\eta} = 12500 \cdot \eta^7 \quad [6.3]$$

Kimyasal bileşiklerin Serbest Gibbs enerjileri de aşağıdaki gibidir [140], [141]:

$$\Delta G_r^\circ(C_6H_{12}O_6(s)) = -917,22 \text{ kJ/mol},$$

$$\Delta G_r^\circ(UO_2^{2+}) = -952,551 \text{ kJ/mol},$$

$$\Delta G_r^\circ((CH_3)(CH_2)_2COO^-) = -376,69 \text{ kJ/mol},$$

$$\Delta G_r^\circ(HCO_3^-) = -586,85 \text{ kJ/mol},$$

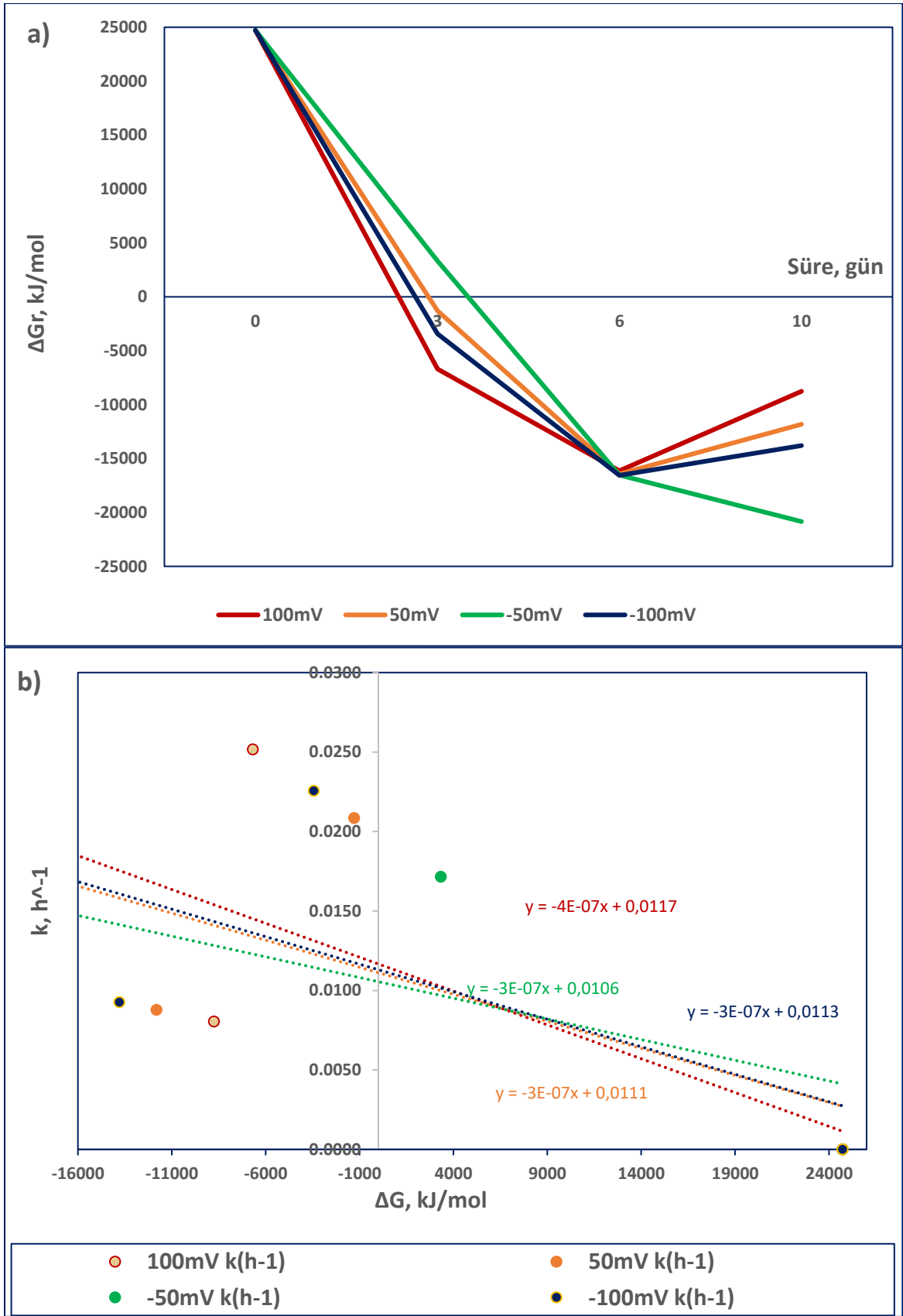
$$\Delta G_r^\circ(UO_2(s)) = -1031,833 \text{ kJ/mol},$$

$$\Delta G_r^\circ(H_{2g}) = 0$$

$$\Delta G_r^\circ(H^+) = 0$$

Reaksiyonun toplam serbest enerjisi ise aşağıdaki gibi hesaplandı: $\Delta G_r = \Delta G_r^\circ + RT \ln Q$

$$\begin{aligned} \Delta G_r^\circ &= ((-369,42 \text{ kJ/mol}) + (-586,85 \text{ kJ/mol}) + (-1031,833 \text{ kJ/mol})) - \\ &- ((-952,551 \text{ kJ/mol}) + (-517,81 \text{ kJ/mol})) = \\ &= (-1988,103 \text{ kJ/mol}) - (-1470,361 \text{ kJ/mol}) = -517,742 \text{ kJ/mol} \end{aligned}$$



Şekil 6.15. a) Serbest Enerjinin Değişmesi, b)Uranyumun U.D.K.M. ile İndirgenme Reaksiyon Hız Sabitinin Serbest Enerjiye Göre Değişimi

6.1.8. VisualMINTEQ Programı ile Hesaplamalar

Uranyuma dayanıklı karışık mikroorganizmalar (U.D.K.M.) olmadan suda sadece ‘Basal mineral media (BMM)’ besin ortamının kimyasalları ve 100mg/L uranyum (VI) var iken bu kimyasalların yada çözeltinin pH değerlerinin değişiminin etkisiyle çözeltideki uranyum VI’nın uranyum IV’e indirgenip indirgenmediğini belirlemek için VisualMINTEQ bilgisayar programı kullanılabilir. Burada pH değerini ve sıcaklığını ayarladıktan sonra BMM besi ortamının kimyasallarının konsantrasyonları girilmektedir ve uranyum VI konsantrasyonu da 100mg/L olarak girilmektedir. Daha sonra program çalıştırınca girilen kimyasallar verilerine göre program hesaplamalar yaparak çözeltideki olası bileşikler listesini vermektedir. Sonuçta uranyumun bu çözeltide aşağıdaki gibi bileşenleri olduğu sonucu elde edilmiştir: $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{+2}$, $(\text{UO}_2)_2\text{OH}^{+3}$, $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_4^{+2}$, $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})^{5+}$, $(\text{UO})_3(\text{OH})^{7-}$, $(\text{UO}_2)_4(\text{OH})^{7+}$, $\text{UO}_2(\text{OH})_2(\text{aq})$, $\text{UO}_2(\text{OH})^{3-}$, $\text{UO}_2(\text{OH})_4^{-2}$, UO_2Br^+ , UO_2Cl^+ , $\text{UO}_2\text{Cl}_2(\text{aq})$, $\text{UO}_2\text{H}_2\text{PO}_4^{+2}$, UO_2OH^+ , $\text{UO}_2\text{PO}_4^{+}$, $\text{UO}_2\text{SO}_4(\text{aq})$, $\text{Zn}(\text{NH}_3)_3^{+2}$, Çözeltide mevcut olan kimyasalların varlığında ve farklı pH değerlerinde (pH 4, 7 ve 10) çözeltideki uranyum bileşikleri suda çözünmüş uranyum VI bileşikleri şeklindedir. Yani çözünmeyen uranyum IV veya çökelti halindeki uranyum bileşikleri mevcut değildir. Bu da suda U.D.K.M. olmasa ve sadece BMM besi ortamıyla uranyum bulunsun ve pH değerleri değiştirilse, uranyumun çökeltilerek giderilmediğini göstermiştir. Bu yüzden uranyumun sudan arıtılması için ortamda mutlaka U.D.K.M. olması gerekmektedir.

6.2. S.İ.B. ile Anaerobik Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları

S.İ.B., uranyumun biyoteknolojik olarak arıtılması ile ilgili yapılan araştırmada en yoğun ilgiye sahip olan mikroorganizmalardır. Son yıllarda, sülfat indirgeyen bakterilerin (S.İ.B.), suda iyi çözünür U(VI)'yı enzimatik olarak inört ve yüksek derecede çözünmeyen uraninite (U (IV)) dönüştürebildiğinin keşfedilmesiyle uranyum ile kontamine olmuş yeraltı sularının in-situ olarak biyoremediasyonuna olan ilgiyi de arttırmıştır [142], [143], [144]. Suda iyi çözünen heksavalen uranyum (U (VI)), çözünmeyen tetravalen uranyuma (U (IV))’a nazaran çevrede hızlı yayılmasının yanı sıra toksisitesi de daha yüksektir [145]. Demir indirgeyen anaerobik bakteriler de U (VI)'yı enzimatik olarak indirgenmesinde sık kullanılmaktadır. Ancak, demir hidroksitler bir elektron alıcı olarak uranil ile rekabette üstünlük gösterdiği için uranyumun biyolojik olarak indirgenmesini inhibe etmektedir [146]. S.İ.B.’lerde ise tersine uranyumun indirgenmesi sülfatın (SO_4^{2-}) indirgenmesine nazaran 4 kat daha fazla enerji sağladığı için, elektron alıcı olarak sulfata göre daha üstündür. Bundan dolayı sülfatın 4000mg/L kadar yüksek konsantrasyonları bile uranyumun S.İ.B.’lerle indirgenmesine

olumsuz etki etmemektedir [147]. Bir taraftan da sulfatın S.İ.B.'lerle indirgenmesi sonucu oluşan hidrojen sulfid gazı (H_2S) da U (VI)'yı U (IV)'e abiotik olarak indirgemektedir, dolayısıyla demir indirgeyen bakterilere nazaran daha fazla uranyumun indirgenmesine yol açmaktadır [109], [148], [149].

S.İ.B.'ler ile yapılan önceki çalışmalar genellikle U (VI)'yı indirgeyen mikroorganizmaların belirlenmesi ve uranyumun indirgenme prosesinin mekanizmaları üzerine odaklanmışlardır [150], [151], [152], [153], [154]. Uranyumun biyolojik indirgenmesine pH ve ORP gibi çevresel etkenlerin etkisine dayalı araştırmalar sınırlı sayıdadır ve ayrıca bunlarda sadece asidik ve nötr pH değerleri kullanılmıştır [155], [156], [157]. Ayrıca böyle araştırmalarda bakterilerin saf kültürleri [158], [159], [160] ve uranyumun düşük başlangıç konsantrasyonları kullanılmıştır: 1mg/L [161], 20µg/L (4.76mg/L) [162], 20mg/L [155] v.s. Aksine, suların in-situ biyoremedasyonu için karışık bakteri kültürleri saf kültürlerle göre avantajlıdır, zira büyük hacimlerde suların biyolojik arıtımında, çevrede mikroorganizmaların çokluğu nedeniyle kültürün saflığını korumak zordur [154]. Karışık S.İ.B. ise kirlenmiş çevre koşullarına kolayca uyarlanabilir olmaları, mutasyona uğramaya ve başka mikroorganizmalarla kontamine olmaya daha nadir maruz kaldıkları ve indirgeyici koşullar oluşturmak için karbon kaynaklarını tamamen oksitledikleri çeşitli çalışmalarda gösterilmiştir [163], [164], [165], [166]. Uranyumun cevherinden çıkartılması için genellikle çok güçlü asitler, bazen de güçlü bazlar kullanıldığı için, uranyumla kontamine olmuş sular kimyasal olarak agresif asidik/bazik şartlarda olurlar. Ancak uranyumu arıtmak için kullanılan mikroorganizmaların böyle kimyasal agresif şartlardaki davranışları ile ilgili araştırmalar daha başlangıç aşamadadır [147].

Bu çalışmada yüksek uranyum konsantrasyonunun (100mg/L) giderilmesi için anaerobik çamurdan laboratuvarında elde edilen S.İ.B.'lerin karışık türleri farklı pH (4, 7 ve 10) ve ORP (50mV, 100mV, -50mV, -100mV) değerlerinde denenmiştir. Nükleer Santraller ve radyoaktif atıkların bulunduğu ülkelerde yeraltı suyundaki uranyumun konsantrasyonunun 200-500µg/L'ye [167], bazı durumlarda da 700µg/L'ye [23], [25] ulaştığına dair araştırma sonuçları mevcuttur. Bunun dışında katı RA'ların nehirlerle yıkanması yada Nükleer Santrallerin patlaması sonucu suların radyoaktif kirlenmesi gibi olaylarda sudaki uranyumun konsantrasyonları çok yüksek değerlere ulaşmaktadır.

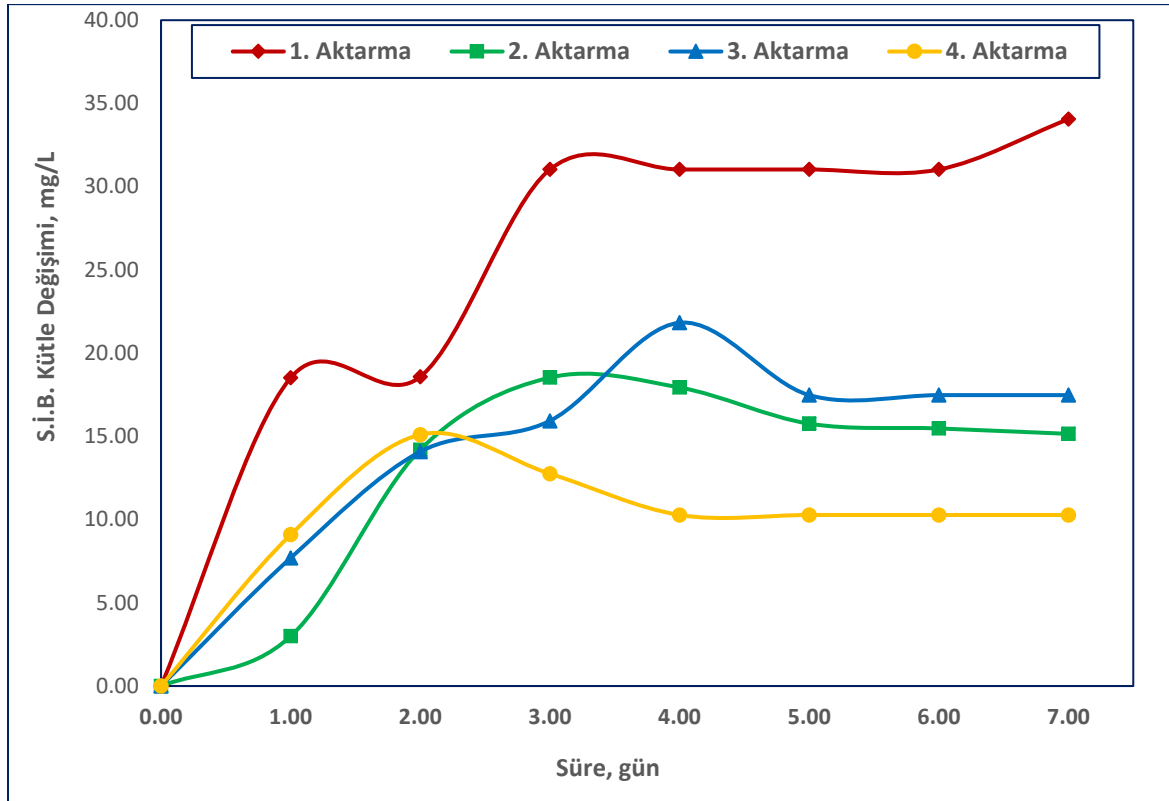
Burada S.İ.B. ile anaerobik deneylerin yapılması için öncelikle S.İ.B.'in izolasyonu gerçekleştirilmiştir. Bunun için Ankara Tatlar Atıksu Arıtma tesisinden alınan anaerobik çamur örneğinde bulunan S.İ.B, Postgate besi ortamında yetiştirilerek ve birkaç kez yeni

besi ortamına aktararak izole edilmiştir. S.İ.B.'lerin çoğalmasını belirlemek için sülfat (SO_4^{2-}) ve hidrojen sülfür (H_2S) gazlarının konsantrasyonlarının değişmesi izlenmiştir. Sudaki uranyumun S.İ.B. ile farklı redoks potansiyel (50mV, 100mV, -50mV and -100mV) ve pH (4; 7; 10) şartlarında giderim deneyleri anaerobik kesikli çalışmalarla yapılmıştır.

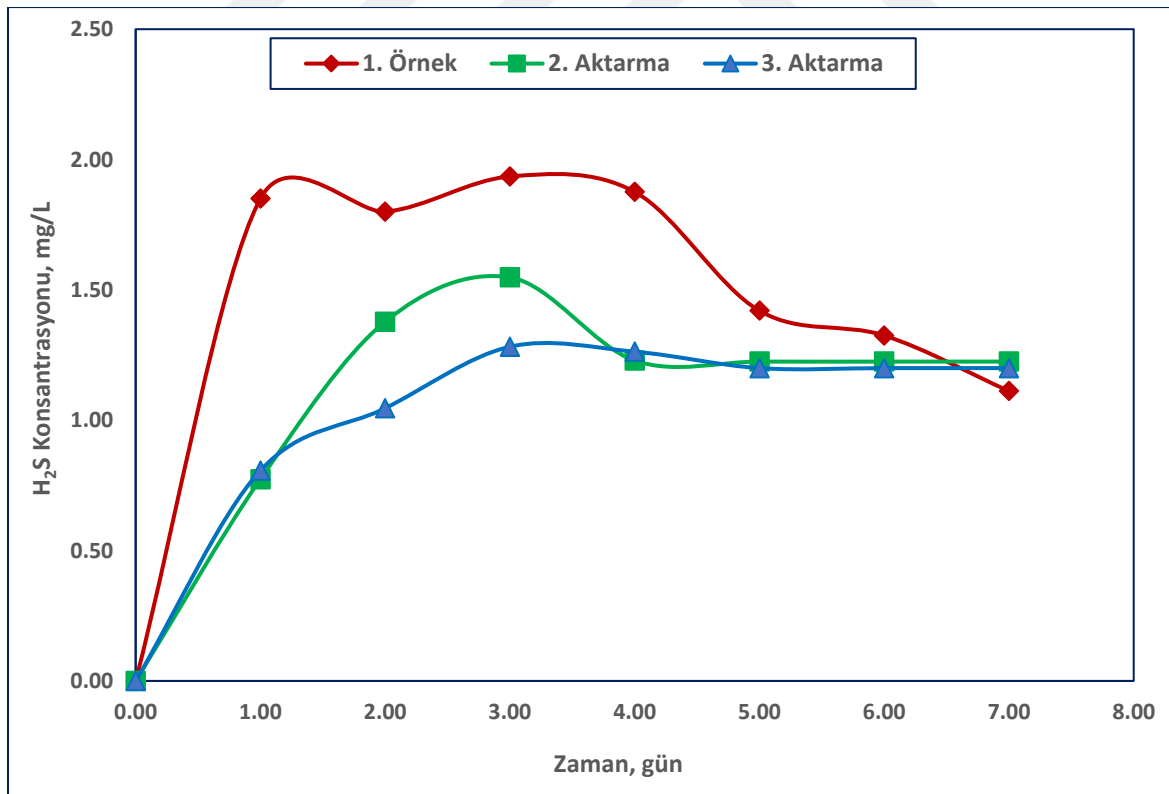
6.2.1. Sülfat İndirgeyen Bakterilerin İzolasyonu

Sülfat İndirgeyen Bakterilerin (S.İ.B.) Postgate besin ortamında pH 7'de ve oda sıcaklığında büyümesi Şekil 6.16'da gösterilmiştir. Buradan görüldüğü gibi bakterilerin büyümesi 3-4 günde pike ulaştı. S.İ.B. bakterilerinin varlığı çözeltideki sülfatın sülfürünü bu bakteriler tarafından indirgeyerek hidrojen sülfür (H_2S) gazı oluşturmaları sonucu bu gaza özgün keskin kokuyla ve oluşan bu gazın demir ile siyah FeS çökeltisi oluşturmalarıyla da belirlenmiştir. Bunun yanı sıra H_2S gazı spektrofotometre yardımıyla analitik kısımda anlatıldığı gibi, S.İ.B. çoğalmasının göstergesi olarak ölçülmüştür (Şekil 6.15).

Şekil 6.16 ve 6.17'de görüldüğü gibi H_2S gazının konsantrasyonu S.İ.B.'lerin çoğalmasıyla artmaktadır. Buradan da büyüyen bakterilerin Sülfat İndirgeyen Bakteriler olduğunu işaret etmektedir. Bu çalışmalar pH 7'de ve -50mV redoks potansiyelinde yapılmıştır. S.İ.B.'ler redoks reaksiyonlar için *Cytochrome C₃* enzimini kullanmaktadırlar. Bu enzim ise en çok -50mV redoks potansiyelinde aktiftir [168].



Şekil 6.16. Sulfat İndirgeyen Bakterilerin 'Postgate' Ortamında Büyümesi, mg/L



Şekil 6.17. Sulfat İndirgeyen Bakterilerin 'Postgate' Ortamında Büyümesi Sırasında Hidrojen Sülfür (H₂S) Gazının Oluşması, mg/L

6.2.2. Sudaki Uranyumun S.İ.B. ile Giderimi Anaerobik Deneylerinin Sonuçları

Sudaki uranyumun farklı redoks potansiyeli (50mV, 100mV, -50mV and -100mV) ve pH (4; 7; 10) koşullarında Sülfat İndirgeyen Bakteriler (S.İ.B.) ile gideriminin anaerobik kesikli reaktörde çalışmalarda, uranyumun konsantrasyonunun zamanla değişimi ve giderim yüzdeleri Çizelge 6.6.'da verilmiştir. Sudaki uranyumun S.İ.B. gideriminin yüzdelерinin zamana, Redoks Potansiyellerine göre değişimlerinin üç boyutlu yüzeysel grafikleri Box-Behnken programının yardımıyla çizilmiştir (Şekil 6.17).

Çizelge 6.6. Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi (mg/L ve %)

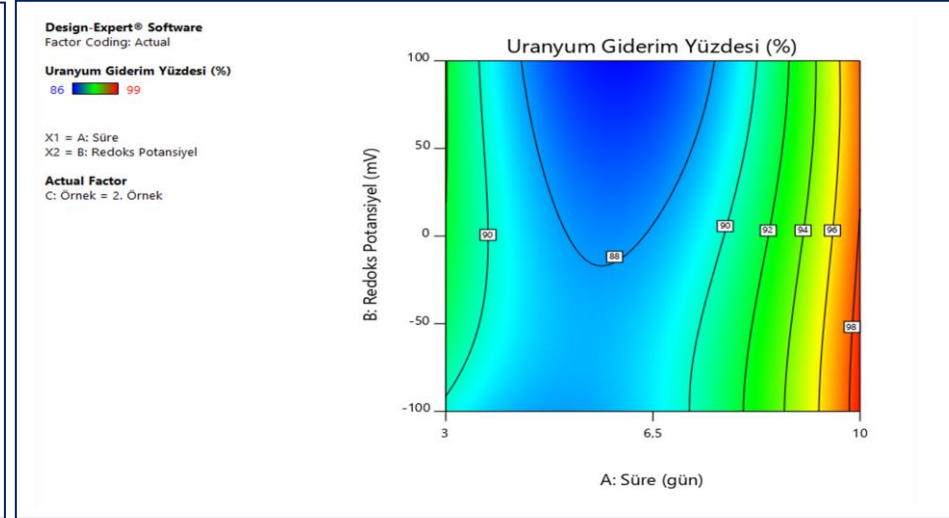
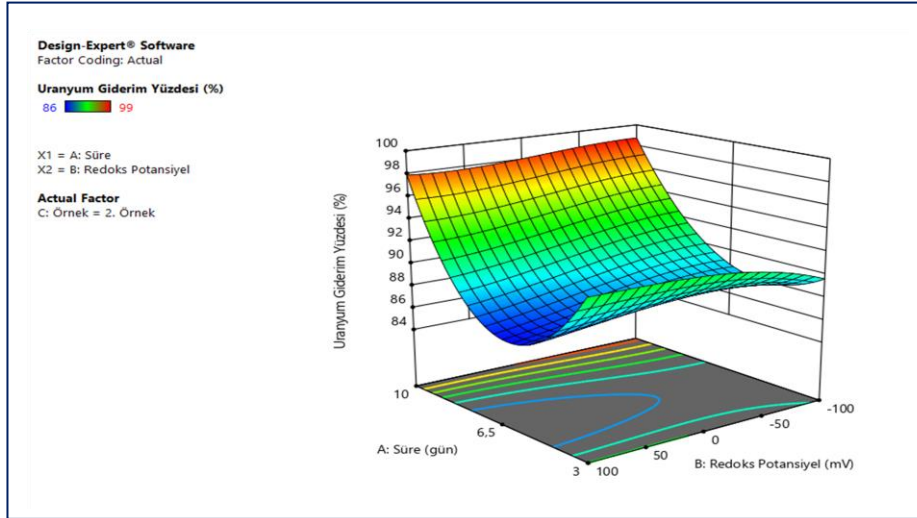
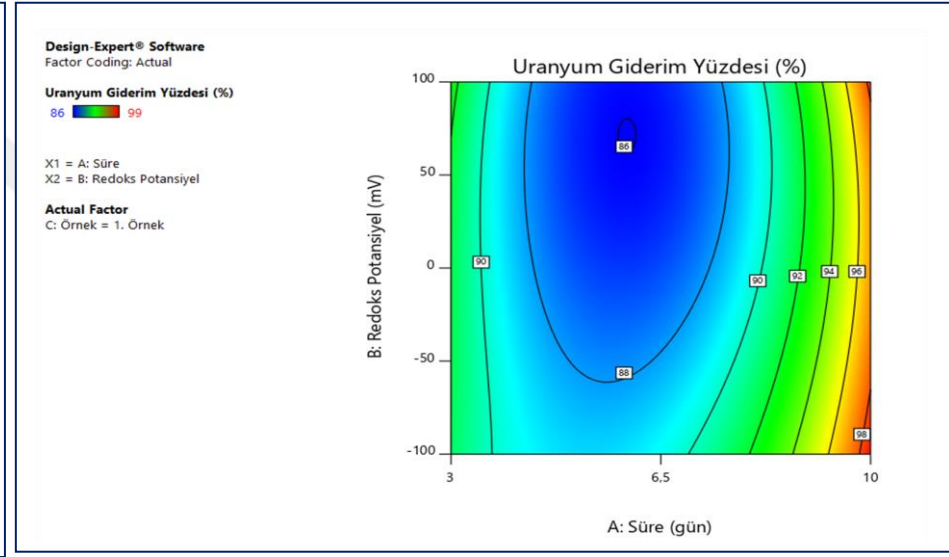
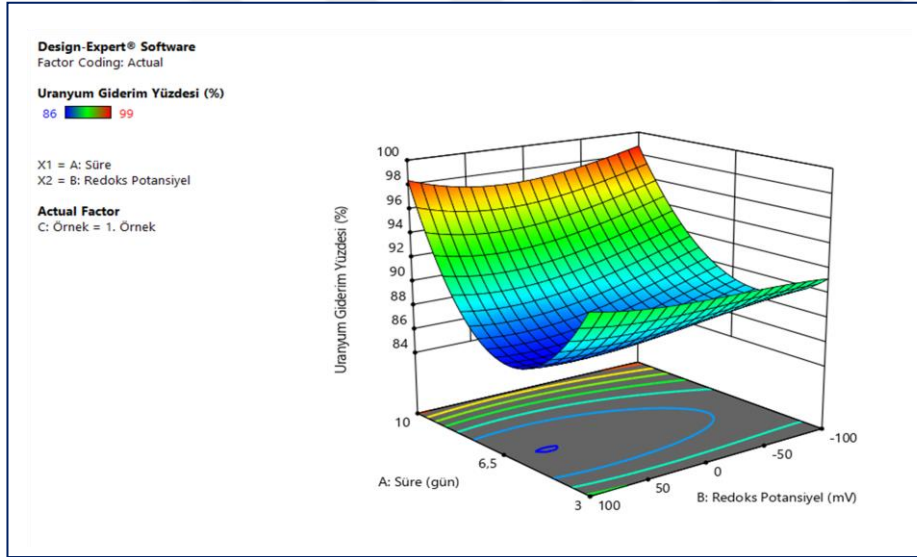
ORP/pH	C ₀ (mg/L)	C _e (mg/L)	Giderim Yüzdesi (%)
100mV/ pH 3	100 ± 0	1.06 ± 0.56	98.94 ± 0.57
50mV /pH 5	100 ± 0	1.94 ± 1.17	98.06 ± 1.17
-50mV/pH 7	100 ± 0	1.62 ± 1.11	98.38 ± 1.12
-100mV/ pH 10	100 ± 0	1.46 ± 1.85	98.54 ± 1.84

Tüm reaktörlerde uranyumun büyük ölçüde giderimi 9-10 gün içerisinde gerçekleşmiştir. S.İ.B. ile uranyumun giderilmesi için yapılan kesikli çalışmalarda yüksek uranyum başlangıç konsantrasyonlarında giderimin çeşitli koşullara (pH, ORP, inhibe edici faktörlerin olup olmayışı) bağlı olarak 3 ila 10 gün arasında gerçekleşmiştir [147]. Ancak, 1mg/L'nin altında başlangıç uranyum konsantrasyonları ile yapılan çalışmalarda giderim 24saat içinde elde edilmiştir [158], [157]. Yüksek uranyum giderim yüzdesi hem pozitif hem de negatif redoks potansiyellerinde elde edilmiştir. Giderim yüzdesi %95.36 ila %99.9 arasında değişmiştir. En yüksek giderim yine de negatif (-50mV ve -100mV) redoks potansiyellerinde gerçekleşmiş olup uranyum 100mg/L başlangıç konsantrasyonundan 0.777mg/L (-50mV için) ve 0.115mg/L'a (-100mV için) düşmüştür. Böylece uranyumun en yüksek giderimi beklendiği gibi -50 ve -100mV ORP değerlerinde gerçekleşmiştir (Şekil 6.18). Daha önce yapılan araştırmada da benzer sonuçlar elde edilmiştir [147], [169]. Bu çalışmalarda S.İ.B.'lerin indirgeyici koşullarda (ORP≤-100) çok aktif oldukları belirtilmektedir. S.İ.B.'ler *Cytochrome C₃* enzimleri -50mV ila -100mV redoks potansiyelleri arasında en yüksek aktiviteye sahiptir. Negatif ORP değerlerinde en yüksek giderimin elde edilmesi böylece U(VI)'nın U(IV)'e *Cytochrome C₃* enziminin yardımıyla indirgenerek çökeltmesi ile olduğunun göstergesidir. Bunun dışında sülfatın S.İ.B. ile indirgenmesi sonucu ortaya çıkan

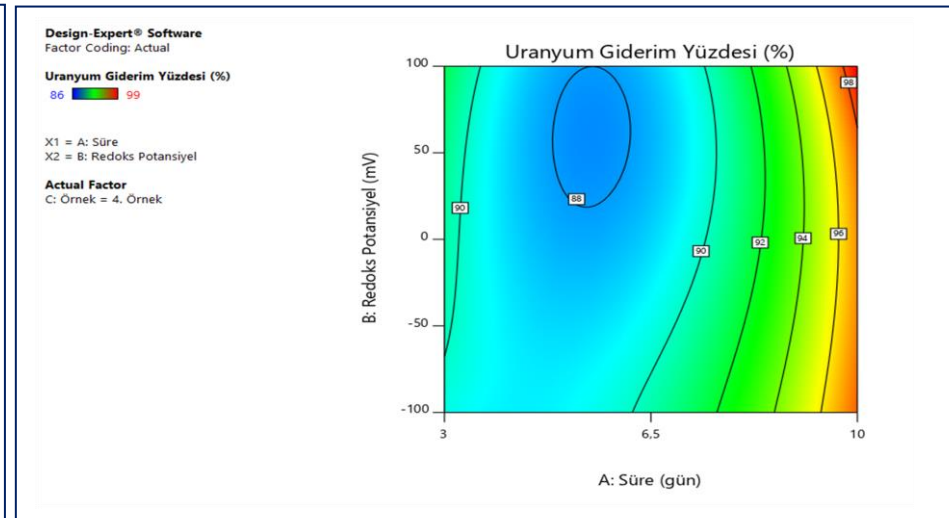
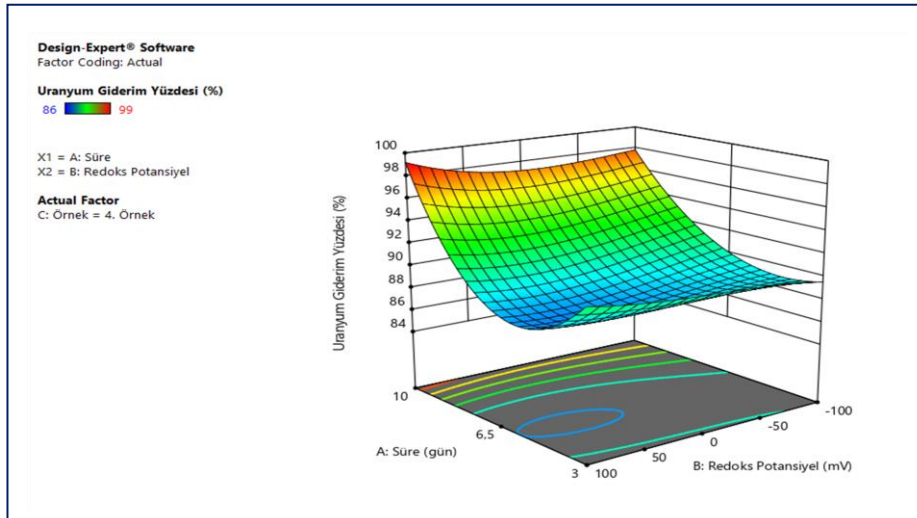
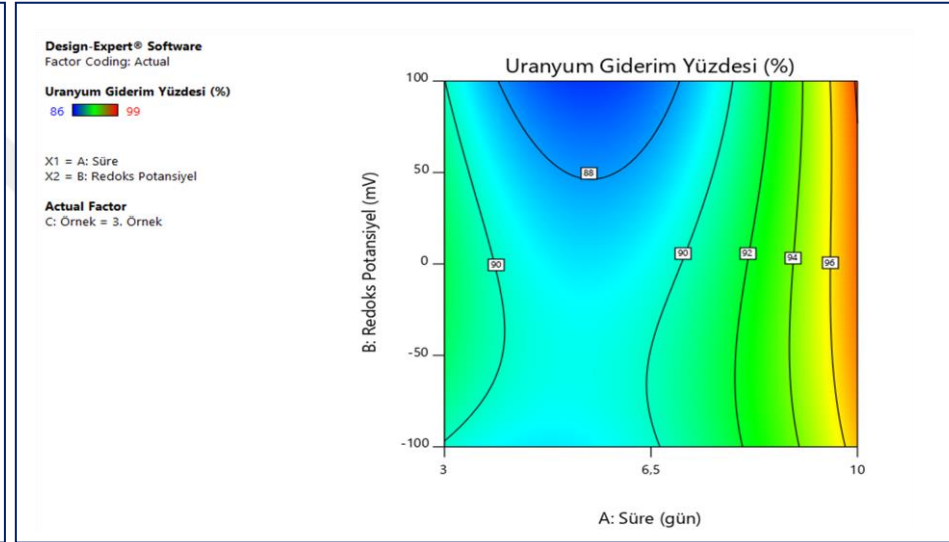
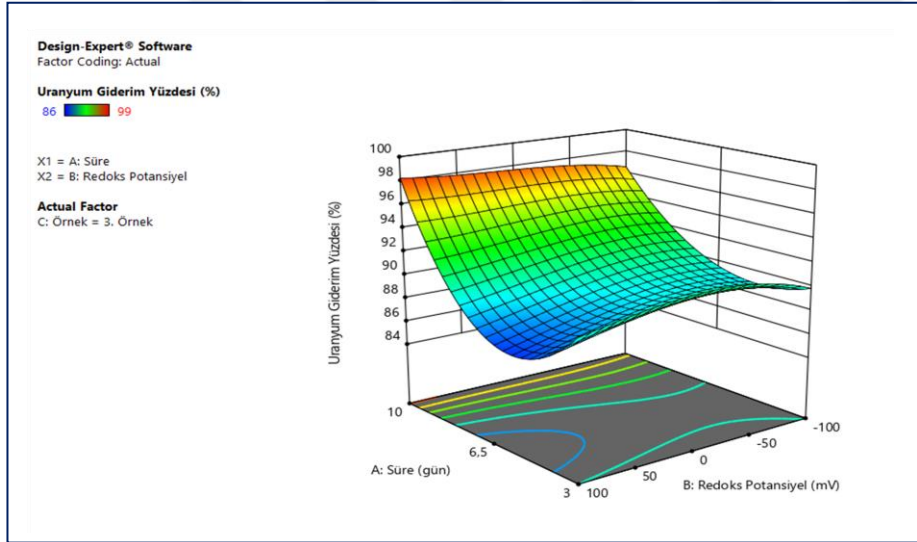
hidrojen sülfür (H_2S) gazı da $U(VI)$ 'yı $U(IV)$ 'e indirgemektedir. Pozitif redoks potansiyellerde de yüksek giderimin olması böylece açıklanabilir. Uygulanan tüm ORP değerlerinin her biri için (10mV, 50mV, -50mV, -100mV) deneyler 4'er kere tekrarlanmıştır.

S.İ.B. %90 uranyum giderimi düşük başlangıç uranyum konsantrasyonu ile yapılan çalışmalarda da elde edilmiştir. Örneğin, Moon ve arkadaşlarının çalışmalarında uranyum başlangıç konsantrasyonu $20\mu M$ (4.76mg/L)'den $2\mu M$ (0,476mg/L)'ye düşmüştür [162].





Şekil 6.18. Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde U(VI) Giderim Yüzdelерinin Değişimi

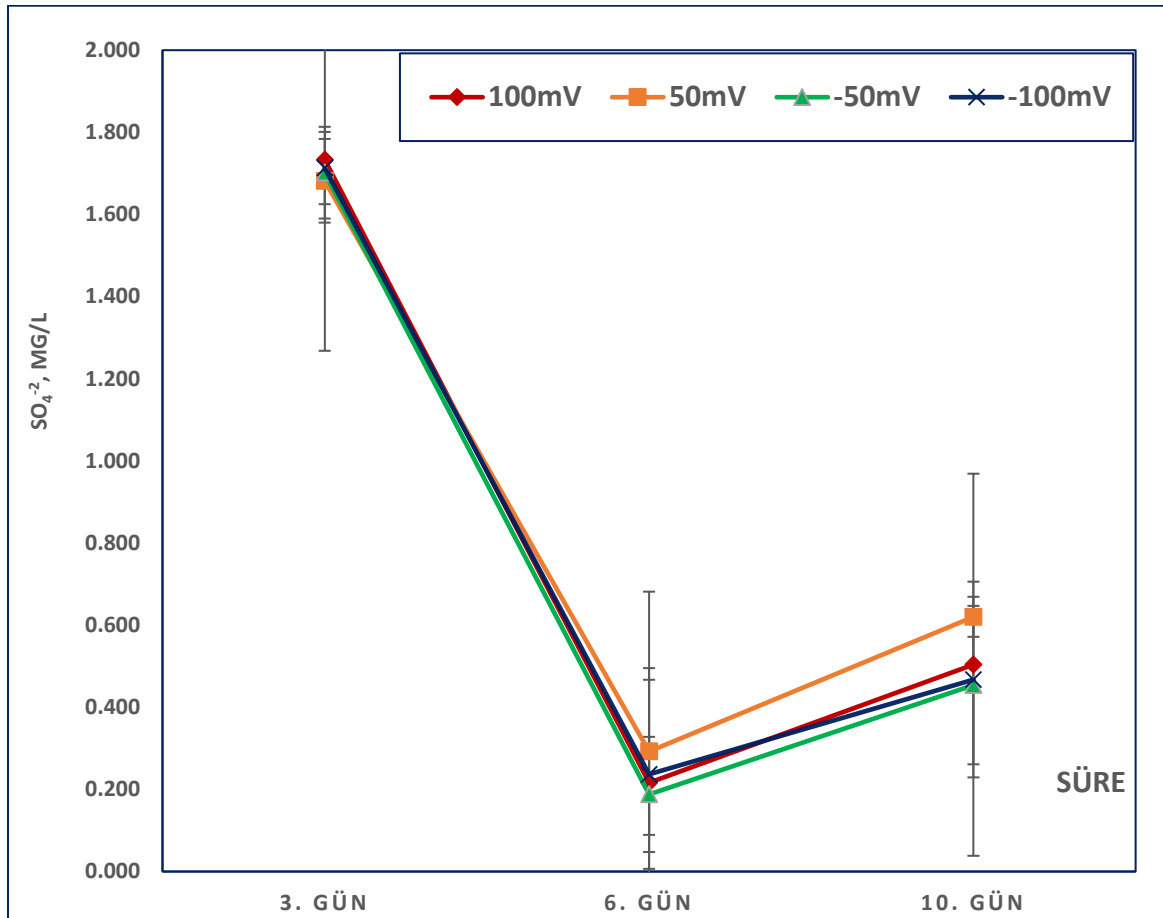


Şekil 6.19. Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde U(VI) Giderim Yüzdelерinin Değişimi

6.2.3. Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi

Sudaki uranyumun S.İ.B. ile anaerobik kesikli çalışmalarda gideriminde ölçülen sülfat konsantrasyonunun değişimi Şekil 6.20’de gösterilmiştir. Şekilde görüldüğü gibi sülfat konsantrasyonu zamanla azalmıştır. Buda S.İ.B.’lerin deney sırasında sülfatı (S^{+6}) sürekli sülfüre (S^{-2}) indirgediğini göstermektedir. Yani reaktörlerde S.İ.B.’ler olduğunu göstermektedir (Şekil 6.19).

Buna benzer sonuçlar Zhang ve arkadaşların yaptıkları çalışmada elde edilmiştir. Burada karışık S.İ.B. ile uranyumun giderimi sonucu SO_4^{2-} konsantrasyonu yaklaşık 15-20 gün içinde 1mM’dan 0mM’a kadar düşmüştür [170], [171].



Şekil 6.20. Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Deneylerinde Sülfat Konsantrasyonunun Değişimi, mg/L

6.2.4. Uranyum (VI)’nın S.İ.B. ile İndirgenme Hızının Hesaplanması

Uranyum (VI)’nın S.İ.B. ile indirgenme hızının sabitinin, Serbes Gibbs enerjisinin ve potansiyelinin değişiminin hesaplama sonuçları Çizelge 6.7’de gösterilmiştir.

Çizelge 6.7. U(VI)'nın S.İ.B. ile İndirgenmesinin Kinetik ve Termodinamik Hesaplama Sonuçları

ORP, mV/pH	100mV/pH 3	50mV/pH 5	-50mV/pH 7	-100mV/pH 9
C ₀ , mg/L	100 ± 0	100 ± 0	100 ± 0	100 ± 0
C _e , mg/L	1.06 ± 0.56	1.94 ± 1.17	1.62 ± 1.11	1.46 ± 1.85
k _(hesaplanan) , saat ⁻¹	0.0168 ± 0.0019	0.0144 ± 0.0025	0.0154 ± 0.0024	0.0159 ± 0.0055
k _(deneysel) , saat ⁻¹	0.01896	0.01643	0.01718	0.01762
Q, kJ	5.36·10 ⁻⁶	1.12·10 ⁻⁴	4.54·10 ⁻⁵	2.70·10 ⁻⁵
ΔG, kJ/mol	-305.70	-230.39	-252.81	-265.66
E _H , V	0.1526 ± 0.0059	0.1604 ± 0.0077	0.1581 ± 0.0074	0.1567 ± 0.0169

U(VI)'nın indirgenme hızının sabiti olan k ile U(VI) konsantrasyonunun değişiminin logaritması için elde edilen doğrusal regresyon eğrileri, uranyumun indirgenmesinin doğrusal olduğunu göstermiştir. Bu nedenle uranyumun indirgenme hızının hesaplanmasında birinci dereceden kinetik denklemler kullanılabilir (Şekil 6.21a). Bu da uranyumun indirgenme reaksiyonunun sadece bir parametreye bağlı olduğunun göstergesidir. Burada uranyumun konsantrasyonu değişken parametredir. Bakteri konsantrasyonu ise sabit olduğu için (bakterilerin çoğalma hızı azalma hızına eşit olduğu varsayımı ile hesaba katılmamaktadır. Böylece, uranyumun indirgenme hız sabitinin hesaplanmasında sadece uranyumun konsantrasyonunun değişimi dikkate alınır ve bakterilerin konsantrasyonları ise hesaplamada gerekmemektedir.

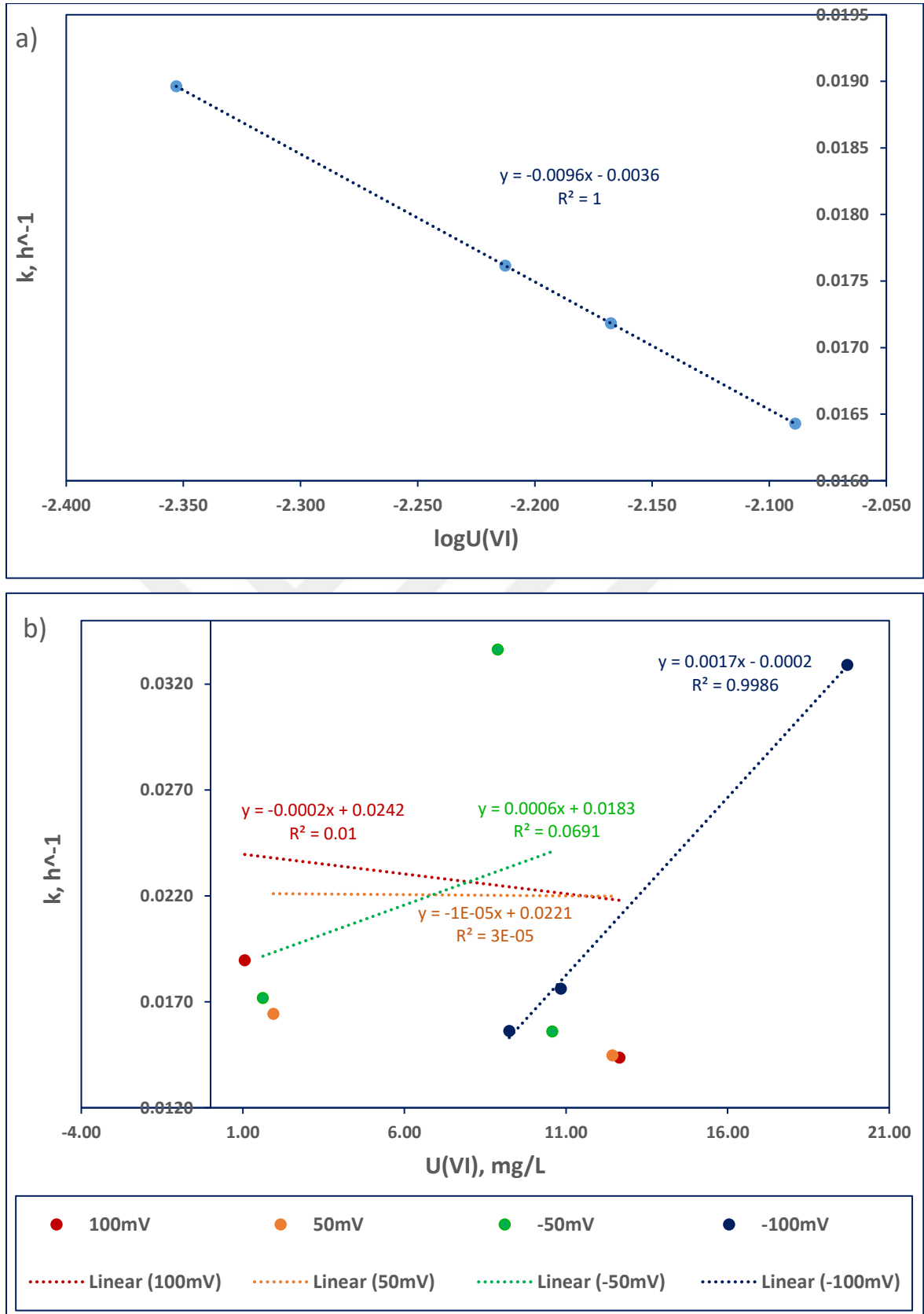
Uranyumun farklı ORP/pH değerlerinde gideriminin hız sabitleri Çizelge 6.7'de görüldüğü gibi $k = 0.0144 - 0.0168 \text{ mg}_{\text{U(VI)}} / 100 \text{ mg}_{\text{S.İ.B.}} \cdot \text{saat}$ veya $k = 1,44 - 1,68 \text{ mg}_{\text{U(VI)}} / 1 \text{ mg}_{\text{S.İ.B.}} \cdot \text{saat}$ civarında olup pH arttıkça artmaktadır. Uranyumun S.İ.B. ile giderim çalışmalarında, karışık S.İ.B. için $k = 0,099 \text{ mg}_{\text{U(VI)}} / 1 \text{ mg}_{\text{S.İ.B.}} \cdot \text{saat}$ [172], *Desulfovibrio desulfuricans* saf bakteri türü için $k = 4,28 \text{ mg}_{\text{U(VI)}} / 1 \text{ mg}_{\text{S.İ.B.}} \cdot \text{saat}$ [173] olarak hesaplanmıştır. Görüldüğü gibi S.İ.B.'lerin karışık yada saf tür olmalarına yada in-situ veya laboratuvar şartlarına kullanılmasına bağlı olarak giderim hız sabiti değişmektedir. Karışık türler için hız sabiti daha düşük olmaktadır.

U(VI)'un indirgenmesinin hız sabitinin U(VI) konsantrasyonuna göre değişmesi, uranyum konsantrasyonunun (U(VI)'nın), S.İ.B. ile indirgenmesinin kinetiğini kontrol ettiğini göstermektedir. Şekil 6.21b'da da görüldüğü gibi, uranyumun indirgenme hızı negatif redoks potansiyellerde (-100mV ve -50mV), U(VI) konsantrasyonun artmasıyla sürekli

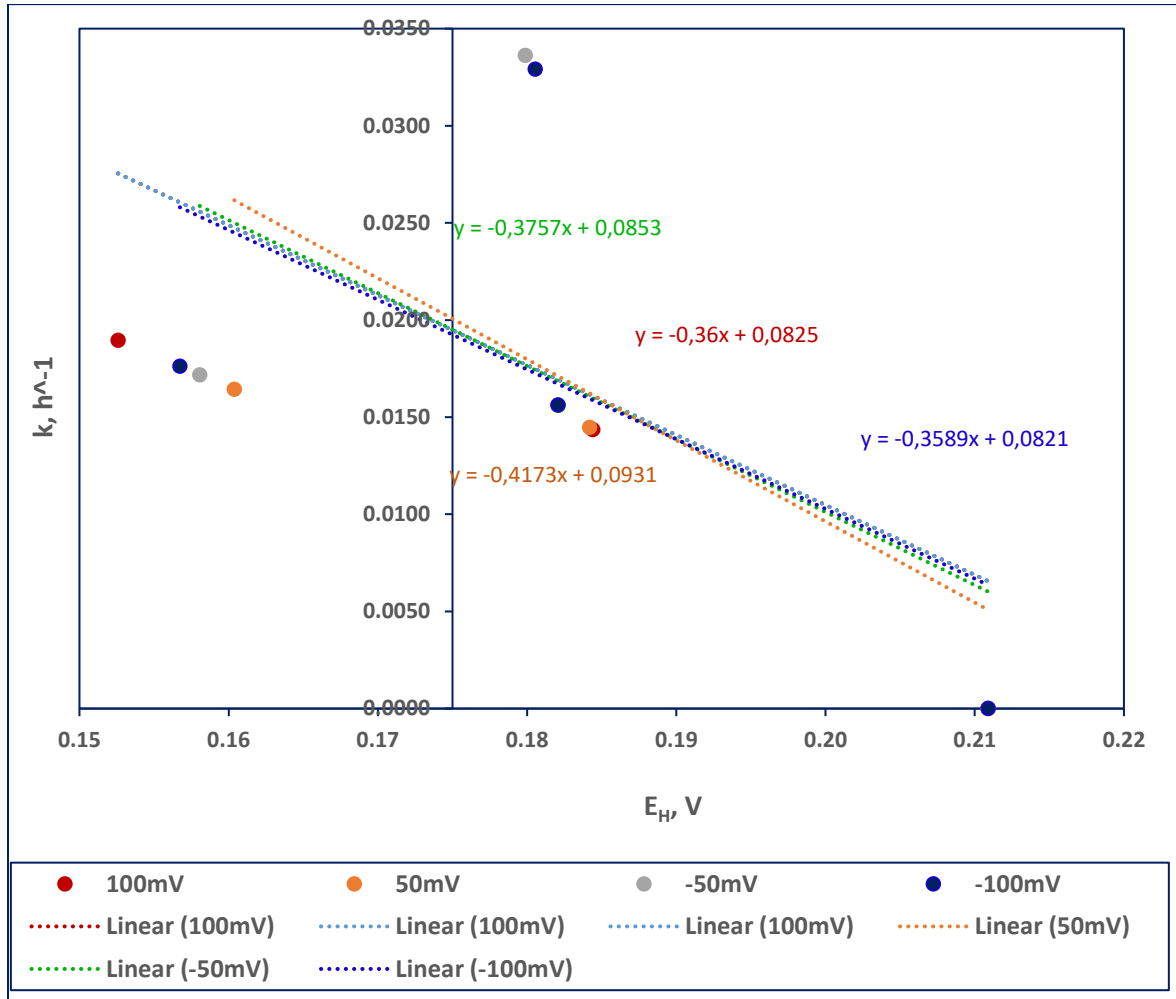
artmaktadır ve -100mV'da en çok artış gözlenmektedir. 50mV'da herhangi bir deęişiklik gözlenmemekle birlikte 100mV'da uranyum konsantrasyonu arttıkça hız sabitinin, giderim hızının da azaldığını görebiliriz (Şekil 6.21b). Bu durum aşağıdaki şekilde açıklanabilir; negatif Redoks Potansiyel deęerlerinde S.İ.B. uranyumu salgıladıkları enzimlerle sürekli indirgeyerek çökelmesine neden oldukları düşünülmektedir. Dolayısıyla uranyum konsantrasyonu arttıkça giderim de artmaktadır. Pozitif Redoks Potansiyellerde ise indirgeme şartı sağlanmadığı için uranyumun indirgenerek giderilmesi gerçekleşmemiştir. Biyosorpsiyon/biyoakümülyasyonla gerçekleşmesi durumunda ise bakteri konsantrasyonu sabit olduğu için adsorpsiyonu sağlayan aktif kısımların dolması ile uranyumun artması giderim hızının azalmasına yol açmaktadır.

pH sadece biyosorpsiyon hızını deęil, aynı zamanda çökelme yapısını da etkilemektedir. Hücre ve uranyumun arasında gerçekleşen etkileşimde fosfat ve amonyum iyonları salınarak çökelme gerçekleşmektedir. Asidik koşullarda uranyumun biyosorpsiyonu zayıf olurken, H_3O^+ ile uranil iyonları arasında sorpsiyon siteleri için yarış gerçekleşir.

Uranyum iyonları genelde asidik yada yüksek alkali ortamda bulunmaktadır.

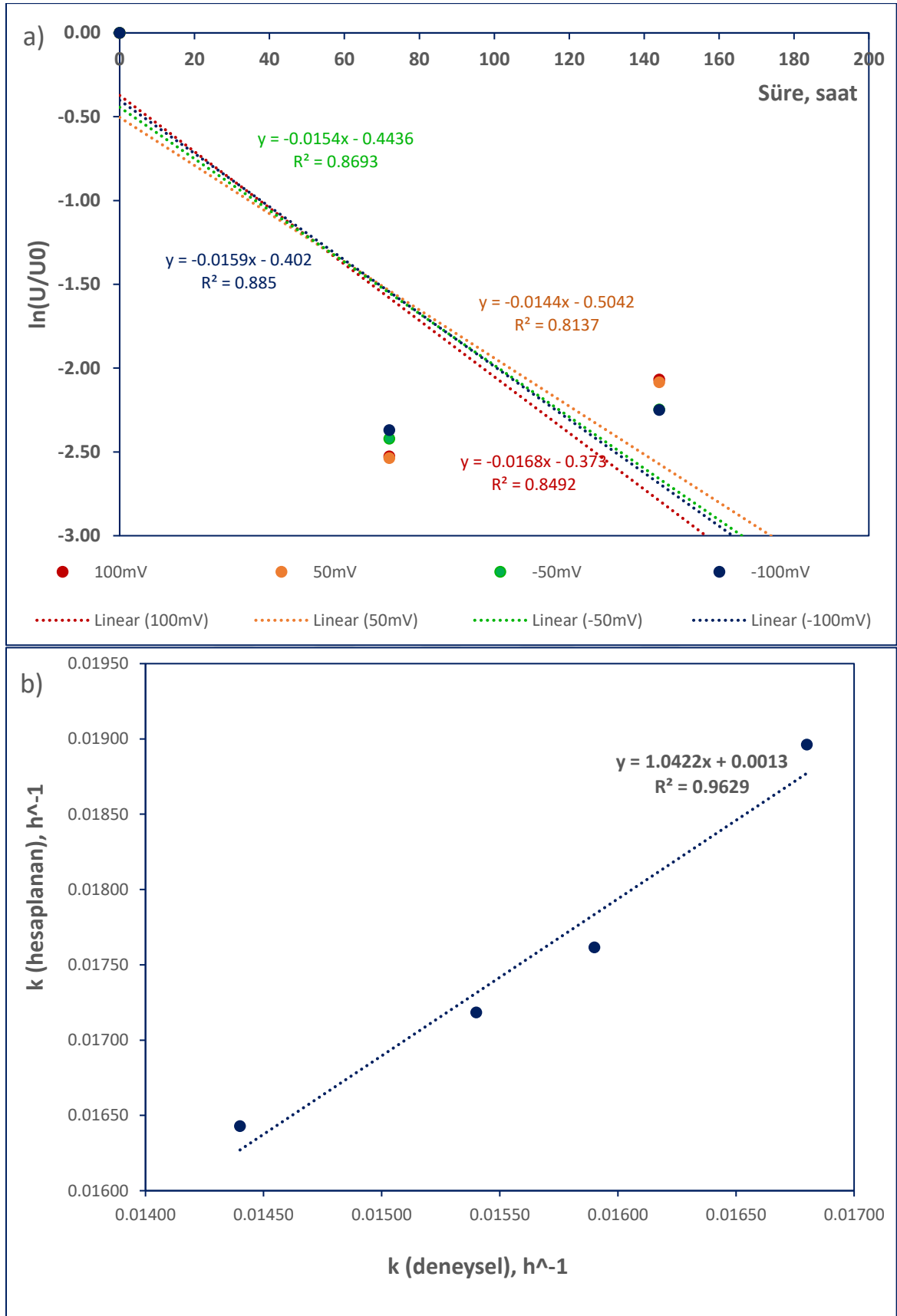


Şekil 6.21. Uranyumun S.İ.B. ile İndirgenme Anaerobik Kesikli Reaktör Deneylerinde Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun İndirgenme Hız Sabitinin: a) Uranyumun Konsantrasyonunun Logaritmasına, b) Uranyum Konsantrasyonuna Göre Değişimi



Şekil 6.22. Uranyumun S.İ.B. ile İndirgenmesinin Potansiyele Karşı Değişimi

Şekil 6.22'den görüldüğü gibi, U (VI) indirgenme oranı redoks potansiyelinin artması ile azalmaktadır. Bu, uranyumun indirgenme oranının redoks potansiyeline bağlı olduğunu göstermektedir. Redoks potansiyeli arttıkça uranyumun giderim hızı azalmaktadır. İndirgenme koşullarında iken negatif (düşük) redoks potansiyelinde uranyumun giderim oranının en yüksek olduğu görülmektedir. Bu sonuçlar daha önceki deneylerde elde edilen sonuçlar ile benzerdir (Şekil 6.20).



Şekil 6.23. Farklı ORP Değerlerinde Uranyumun S.İ.B. ile Giderim Kesikli Reaktörlerinde U(VI) İndirgeme Hız Sabitinin k: a) Deneysel Değerinin Bulunması

6.2.5. Termodinamik Hesaplamalar

S.İ.B. ile Anaerobik uranyum giderim çalışmalarında laktatın elektron vericisi olarak kullanılması durumunda yapılan termpdinamik hesaplamalarda aşağıdaki gibi reaksiyon eşitliği kullanılmıştır:



Şekil 6.23a'dan görüldüğü gibi uranyumun laktat ile indirgeme reaksiyonunun Gibbs Serbest Enerjileri, 100mg/L uranyum konsantrasyonu için, yani başlangıçta pozitifdir. Yani uranyum U(VI)'nın laktat ile indirgenmesi normal şartlarda enerji açıdan elverişli değildir. Dolayısıyla bu reaksiyon dış etken olmadan kendi kendine gerçekleşemez. Böylece uranyumun laktat ile indirgenebilmesi için mikroorganizmaların enzimlerine gerek duyulmaktadır (Şekil 6.24, a).

Reaksiyona katılan ve reaksiyon sonucu oluşan bileşiklerin mol değerlerine göre eşitlik aşağıdaki gibi yazılır:

$$\eta\{\text{UO}_2^{2+}\} = \eta\{\text{CH}_3\text{COO}^-\} = \eta\{\text{HCO}_3^-\} = \eta\{\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COO}^-\} = \eta\{\text{H}^+\} = 5 \cdot \eta\{\text{UO}_2^{2+}\} [6.5]$$

Dolayısıyla kimyasal reaksiyon sabiti aşağıdaki eşitlikle bulunur:

$$Q_1 = \frac{\{\text{CH}_3\text{COO}^-\}\{\text{HCO}_3^-\}\{\text{H}^+\}^5}{\{\text{UO}_2^{2+}\}\{\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COO}^-\}} = \frac{\eta \cdot \eta \cdot (\eta \cdot 5)^5}{\eta \cdot \eta} = (\eta \cdot 5)^5 \quad [6.6]$$

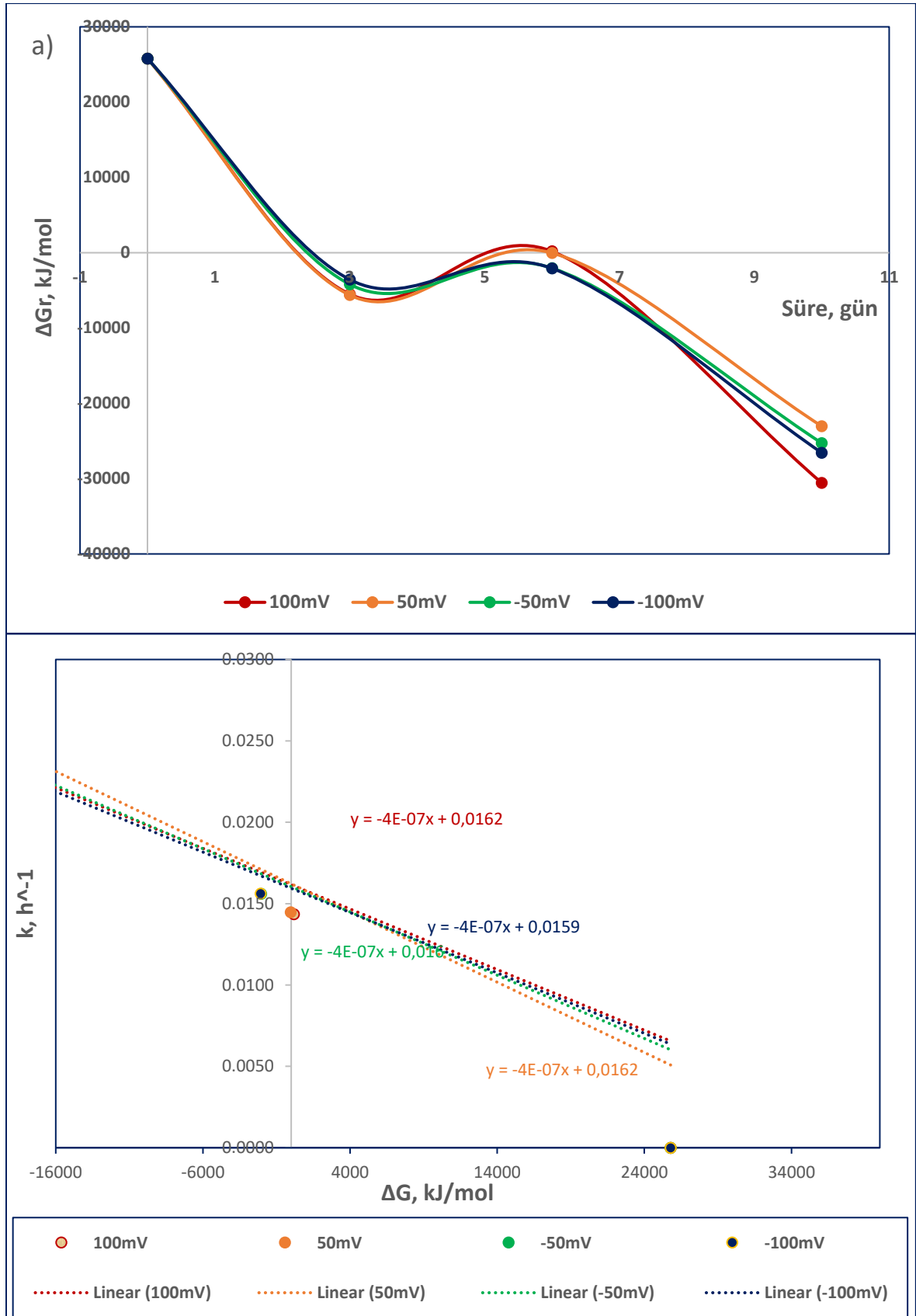
Kimyasal bileşiklerin Serbest Gibbs enerjileri de aşağıdaki gibidir [140], [141]:

ΔG_r^0	(UO_2^{2+})= -952,551kJ/mol,
ΔG_r^0	($\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COO}^-$)= -517,81kJ/mol,
ΔG_r^0	(CH_3COO^-)= -369,42kJ/mol,
ΔG_r^0	(HCO_3^-)= -586,85kJ/mol,
ΔG_r^0	($\text{UO}_{2(s)}$)= -1031,833kJ/mol,
ΔG_r^0	(H^+)=0

$$\begin{aligned} \Delta G_r^0 &= ((-369,42 \text{ kJ} / \text{mol}) + (-586,85 \text{ kJ} / \text{mol}) + (-1031,833 \text{ kJ} / \text{mol})) - \\ &-((-952,551 \text{ kJ} / \text{mol}) + (-517,81 \text{ kJ} / \text{mol})) = \\ &= (-1988,103 \text{ kJ} / \text{mol}) - (-1470,361 \text{ kJ} / \text{mol}) = -517,742 \text{ kJ} / \text{mol} \end{aligned}$$

Reaksiyonun toplam serbest enerjisi ise aşağıdaki eşitlik kullanılarak hesaplanmıştır.

$$\boxed{\Delta G_r = \Delta G_r^0 + RT \ln Q}$$



Şekil 6.24. Farklı ORP Değerlerinde S.İ.B. ile U(VI) İndirgeme Kesikli Reaktör Deneylerinde Reaksiyon Serbest Enerjisinin: a) Zamana, b) Reaksiyon Hızının Sabitine Göre Değişimi

6.2.6. VisualMINTEQ Programı ile Hesaplamalar

Sülfat İndirgeyen Bakterilerin bulunmadığı ortamda, sudaki 'Postgate' besin ortamının ve uranyumun U(VI) pH değerlerinin değişiminin etkisiyle, çözeltideki uranyum VI'nın uranyum IV'e indirgenip indirgenmediğini araştırmak için VisualMINTEQ bilgisayar programı kullanılmıştır. Burada pH değeri ve sıcaklığı ayarladıktan sonra 'Postgate' besi ortamının kimyasallarının konsantrasyonları girilmiş ve uranyum VI konsantrasyonu da 100mg/L olarak alınmıştır. Daha sonra programı çalıştırınca girilen kimyasallar verilerine göre program çözeltideki olası bileşikler listesini vermektedir. Farklı pH değerlerinde (pH 4, 7 ve 10) çözeltideki uranyum bileşikleri suda çözünmüş uranyum VI bileşikleri şeklindedir. Yani çözünmeyen uranyum IV veya çökelti halindeki uranyum bileşikleri mevcut değildir. Bu da suda S.İ.B. bulunmadığında, sadece 'Postgate' besi ortamında ve pH değerleri değiştirilse dahi uranyum çökeltilerek giderilmediğini göstermiştir. Bu yüzden uranyumun sudan arıtılması için S.İ.B. bulunması gerekmektedir.

6.3. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Deneylerinin Sonuç ve Tartışmaları

Burada, sudaki uranyumun canlı ve ısıyla öldürülmüş *Scenedesmus sp.* mikroalg türü ile farklı fiziksel ve kimyasal şartlar altında (farklı sıcaklık, pH, alg ve uranyum konsantrasyonlarında) giderimi aerobik çalışmalardan elde edilen sonuçlar verilmektedir.

Sudaki uranyumun mikroalglerle giderimi ile ilgili araştırmalar sınırlı sayıda olup bunlarda kurutulmuş/öldürülmüş mikroalglerle uranyumun adsorpsyonu araştırılmıştır [174]. Bu çalışmada ise 2 mikroalg türünün canlı ve ısıyla öldürülmüş halleri kullanılmıştır. Ayrıca farklı doğal şartların (sıcaklık, pH, uranyum konsantrasyonu, mikroalg konsantrasyonu, süre) sudaki uranyumun bu mikroorganizma ile giderime bakılmış ve optimal şartlar belirlenmiştir.

Fikoremediyasyon; fotosentezle oksijen üreten algler sudaki kirleticileri kendi bünyesine adsorbe ederek giderirler. Yetiştirilme maliyetinin düşük olması (güneş ışığı ve CO₂) ve aynı anda birden fazla teknoloji için (örneğin, karbon tutulumu, biyoyakıt üretimi ve biyolojik arıtma, metal giderimi) kullanım avantajı, mikroalglerin birçok çevre dostu teknolojiye aday olmasını sağlar. Mikroalgler kendilerinde ağır metal toksisitesi ile başa çıkabilmek için kapsamlı bir mekanizma (hücre dışı ve hücre içi) geliştirmiştir. Mikroalglerin, büyürken ağır metalleri kendi bünyesine alma özellikleri ile birlikte çevrede çok yaygın olmaları, atıksu biyoremediasyonunun pratik uygulamalarında uygunluğunu ortaya çıkarmaktadır.

Mikroalgler tarafından ağır metal alımının, toksik ağır metallerin atıslardan giderilmesinde kullanılan yaygın fizikokimyasal proseslerden daha üstün olduğu onaylanmıştır. Mikroalglerin avantajları: hızlı metal alım kapasitesi, zaman ve enerji tasarrufu, çevre dostu, kullanıcı dostu, yıl boyunca büyümesi, kullanım kolaylığı, geri dönüşümlü / tekrar kullanılabilir, düşük maliyetli, daha hızlı büyüme oranı (daha yüksek bitkilerle karşılaştırıldığında), seçiciliği, toksik atık oluşmasına yol açmaması, sentez gerektirmemesi, hem kesikli hem de sürekli sistemlerde faydalı uygulanabilen yüksek metal konsantrasyonları veya nispeten düşük kirletici seviyeleri içeren sularda kullanımında, etkin oldukları için mikroalgelerin (canlı ve ölü) suyun tehlikeli metallerden arıtımındaki önemi hayli büyüktür [175]. Nispeten yüksek metal bağlama kapasiteleri, negatif yüklü fonksiyonel gruplar içeren hücre duvarları bulunan kompozisyonundan kaynaklanmaktadır. Sonuç olarak, mikroalgal hücreleri, düşük konsantrasyonlardaki toksik metal kirleticilerin gideriminde özellikle etkilidir [176]. Atıksulardan uranyum gideriminde alglerin kullanımı (aerobik arıtım) anaerobik bakterilerle kıyaslandığında, arıtım sonucunda keskin kokuya neden olan gazlar ve çökelti oluşmamaktadır [177]. Algler, anaerobik bakteriler gibi negatif potansiyel oluşturarak uranyumu indirgeyemedikleri için giderimin daha az olacağı beklenir. Ancak ağır metal giderim deneylerinde %70-90 oranında giderim sonuçları elde edilmiştir [178]. Alglerin sudan ağır metalleri giderim oranı, alg türlerine göre değişiklik göstermektedir. Bu çalışmada uranyumun giderimi için iki çeşit mikroalg türü kullanılmıştır: *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.*. *Scenedesmus sp.* son yıllarda araştırmacılar tarafından sıkça kullanılan bir mikroalg türüdür. *Scenedesmus sp.*, yüksek adsorpsiyon özelliklerinden dolayı, 1) ağır metali (krom (VI), kadmiyum (II) ve bakır (II) gibi) uzaklaştırmak için farklı araştırmacılar tarafından laboratuvar deneylerinde kullanılmıştır ve % 25-78 oranında giderim elde edilmiştir [179], [180], Zhang ve arkadaşları tarafından Cd(II) giderimi için yapılan çalışmada ortamda bulunan Cd (II) 'nin % 93.39'unun *Scenedesmus sp. obliquus* AS-6-1'in bünyesine alınmasını sağlamışlardır [181], 2) atıksudaki azot, fosfor, COD ve CO₂'nin giderilmesinde %96.78 gibi iyi sonuçlar vermiştir [182], [183], 3) Arsenitin biyolojik olarak giderimi için (As [III]) [184], 4) fungusitler ve herbisit gideriminde de kullanılmıştır [185]. Bu çalışmada *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle ağır toksik ve radyoaktif metal olan uranyumun uzaklaştırılması için gerçekleştirilen deneyler detaylı verilmiştir. Ayrıca, başlangıç uranyum konsantrasyonu, biyokütle konsantrasyonu, başlangıç pH'sı ve sıcaklık gibi biyosorpsiyon kapasitesini etkileyen faktörlerin arıtma verimine etkisi bu çalışmada değerlendirilmiştir. Bilindiği gibi son yıllarda uranyumun biyoteknolojik arıtımı

için yapılan çalışmalarda çoğunlukla anaerobik bakteri türleri kullanılmıştır. Sudaki uranyumun mikroalgler ile arıtımı ile ilgili yapılan çalışmalar kısıtlı olup bu çalışmalar genellikle ısıyla öldürülmüş ve kuru alg türleriyle yapılmıştır. Bu çalışmada ise; *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* mikroalg türlerinin canlı olarak doğada in-situ olarak direk kullanılabilirliğini denemek amacıyla, farklı doğal şartlarda sudaki uranyumun giderim deneyleri yapılmıştır. Yani suyun farklı pH değerlerinde (radyoaktif atık sular uranyumun cevherinden ayrılması için güçlü asit kullanıldığı için genelde çok asidik olurlar, bazı durumlarda bazlar kullanılabilir ve bazik olurlar), farklı sıcaklıklarda (doğal sular mevsimlere ve bölgelere göre çok soğuk -5°C altında, yada çok sıcak 45°C kadar şartlarda olabilirler), suların uranyumla kirlenme dereceleri de farklı olması beklenebilir. Birinci set deneylerde *Scenedesmus sp.* mikroalglerinin canlı ve ısıyla öldürülmüş türleriyle sudaki uranyumun giderimi için laboratuvarında yapılan aerobik kesikli deneylerde farklı mikroalg konsantrasyonu, 4 farklı pH değeri (3, 5, 7 ve 9), 3 farklı sıcaklık (5°C, 25°C ve 45°C), 2 saatlik kontak süresi kullanılmıştır. Bu deneylerin yapılırken farklı doğal fiziksel ve kimyasal şartların sudaki uranyumun giderime etkisinin belirlenmesi ve ne kadar kısa sürede arıtımın gerçekleşeceğinin tespit edilmesi amaçlanmıştır. Uranyumun, biyoindirgeme, biyosorpsyon ve biyoakümülyasyonu yöntemlerini içeren biyoteknolojik arıtım yöntemleriyle arıtılmasının bugüne kadar yapılan araştırmalarda çoğunlukla çeşitli anaerobik ve aerobik bakteri türleri kullanılmıştır. Algerin kullanılmasına ise çok az çalışmada yer verilmiştir. Alglerin doğal sularda çok bulunan *Scenedesmus sp.* türleri kullanılmıştır.

Farklı fiziksel ve kimyasal şartlar altında gerçekleştirilen deneylerde 41.54mg/L ve 115.94mg/L *Scenedesmus sp.* mikroalgleri kullanılarak uranyumun değişimi 651nm dalga boyunda ölçülmüştür. Bu değerlerin standart uranyum konsantrasyonlarından elde edilen değerler kullanılarak interpolasyon yöntemiyle mg/L cinsine çevrilmiş ve yüzde biriminde (%) hesaplama sonuçları EK-1a ve b ve EK-2a ve b’de ve sadece 60 dakikalık süre için değişimi de Çizelge 6.8’de verilmiştir (EK-1, a ve b ve 2, a ve b Çizelge 6.8). Çizelgeden görüldüğü gibi en yüksek giderim 25°C sıcaklığında ve pH 7’de gerçekleşmiştir.

Elde edilen sudaki uranyumun giderim yüzdelerine kullanılan farklı faktörlerin (farklı pH, sıcaklık, uranyum konsantrasyonu, süre, farklı alg konsantrasyonları) etkileri Box-Behnken programı kullanılarak grafikleri oluşturulmuş ve karşılaştırılarak analiz edilmiştir.

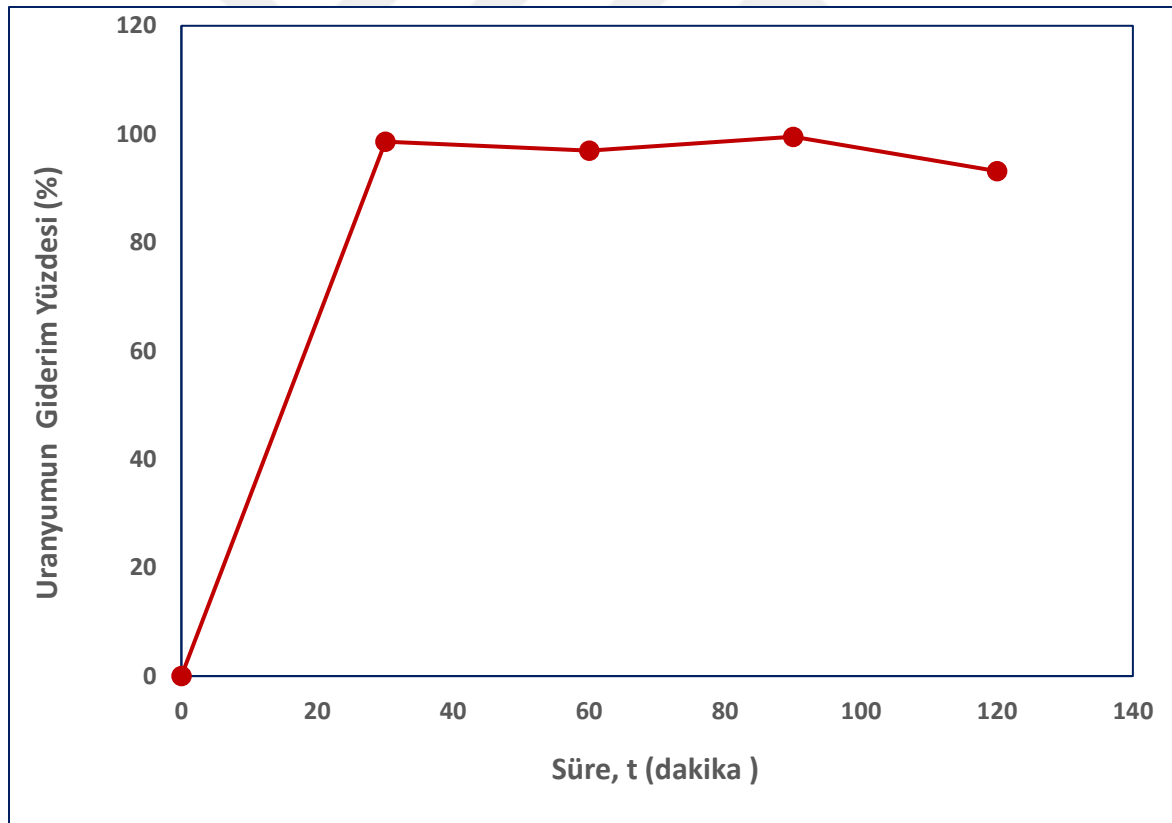
Çizelge 6.8. *Scenedesmus sp.* ile Uranyumun Konsantrasyonlarının C_e (mg/L), Giderim Yüzdelерinin (%) ve q_e (mg/g) Değerlerinin Değişimi: a) Sıcaklığa, b) pH'a Göre

a) <u>SICAKLIĞA GÖRE</u> Değişimi (15mgU/L, pH 7, süre 60dakika)								
	115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle			
Sıcaklık, canlı/ısıyla öldürülmüş	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e (mg/g)	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e (mg/g)
5°C, canlı	15	0,634	96	353	15	0,352	98	124
	10	0,070	99	239	10	0,493	95	82
	5	0,352	93	112	5	0,352	93	40
25°C, canlı	15	1,514	98	350	15	0,458	97	116
	10	0,141	99	237	10	0,704	93	80
	5	0,317	94	113	5	0,599	88	38
45°C, canlı	15	1,268	92	309	15	2,183	85	118
	10	1,092	89	214	10	1,338	87	75
	5	1,514	70	84	5	0,423	92	39
5°C, ısıyla öldürülmüş	15	1,444	90	306	15	1,585	89	116
	10	1,901	81	180	10	0,810	92	72
	5	2,183	56	68	5	1,796	64	24
25°C, ısıyla öldürülmüş	15	1,585	89	323	15	2,289	85	117
	10	2,535	75	195	10	1,620	84	79
	5	0,599	88	106	5	2,254	55	28
45°C, ısıyla öldürülmüş	15	0,423	97	351	15	0,423	95	126
	10	0,704	93	224	10	0,704	93	80
	5	0,810	84	101	5	0,810	84	36
b) <u>pH'a GÖRE</u> Değişimi (15mgU/L, 25°C, canlı alg, süre 60dakika)								
	115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle			
pH	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e (mg/g)	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e (mg/g)
pH 3	15	1,937	87	191	15	7,077	53	113
	10	3,134	69	165	10	2,923	71	61
	5	5,000	0	0	15	0,599	88	38
pH 5	15	1,197	92	344	15	0,704	95	119
	10	1,092	89	214	10	0,704	93	80
	5	0,739	85	103	15	3,310	34	15
pH 7	15	0,282	98	350	15	0,458	97	116
	10	0,141	99	237	10	0,704	93	80
	5	0,317	94	113	15	0,599	88	38
pH 9	15	2,254	85	240	15	5,035	66	110
	10	3,697	63	152	10	4,648	54	46
	5	1,901	62	75	15	1,162	77	33

6.3.1. Temas Süresinin Etkisi

Temas süresinin etkisini incelemek için 30, 60, 90 ve 120 dakikalık temas süreleri kullanılmıştır. Farklı pH (3, 5, 7 ve 9), sıcaklık (5°C, 25°C ve 45°C), alg konsantrasyonları (71.61mg/L ve 282.42mg/L), süre (0, 30, 60, 90 ve 120 dakika), uranyum konsantrasyonu (5mgU/L, 10mgU/L ve 15mgU/L) ve canlı/ısıyla öldürülmüş alglerle yapılan bu deneylerde uranyumun *Scenedesmus sp.* alglerinin üzerine biyosorpsiyonunun (q_e , mg/g) zamana göre değişimi EK-3a ve b’de verildiği gibidir (EK-3, a ve b).

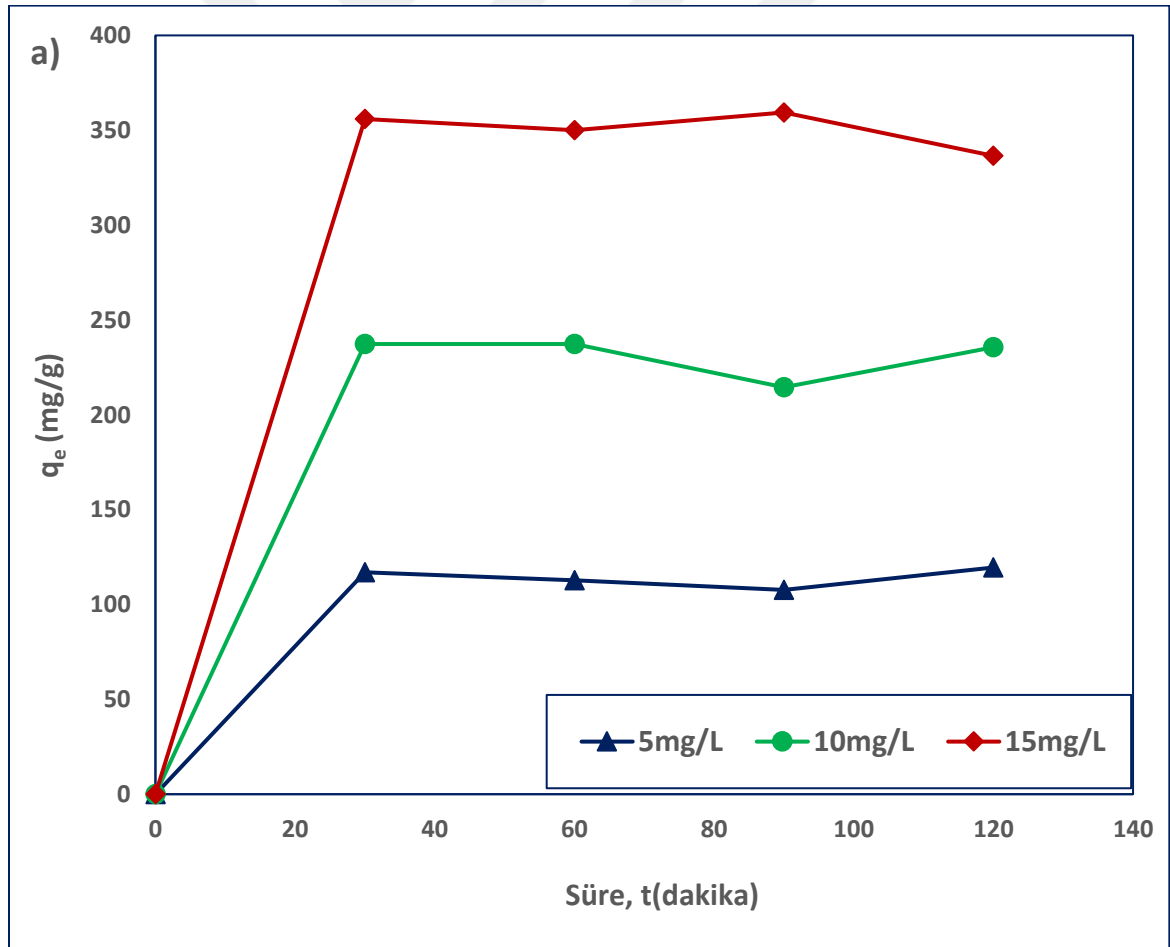
Seçilen şartlarda (pH 7, 71.61mg/L alg, canlı alg, 25°C, uranyum konsantrasyonu 15mg/L) temas süresinin etkisine bakılmıştır. Şekil 6.25’te görüldüğü gibi, uranyumun *Scenedesmus sp.* ile adsorpsiyonu 2 fazdan oluşmaktadır: birinci fazda 30 dakikaya kadar süre arttıkça adsorpsiyon da artmaktadır, ikinci fazda ise adsorpsiyon az çok değişikliklerle sabit olarak devam etmektedir. Biyosorpsiyon hızının yüksek olduğu ve 30 dakikada tamamlandığı görülmüştür (Şekil 6.25).

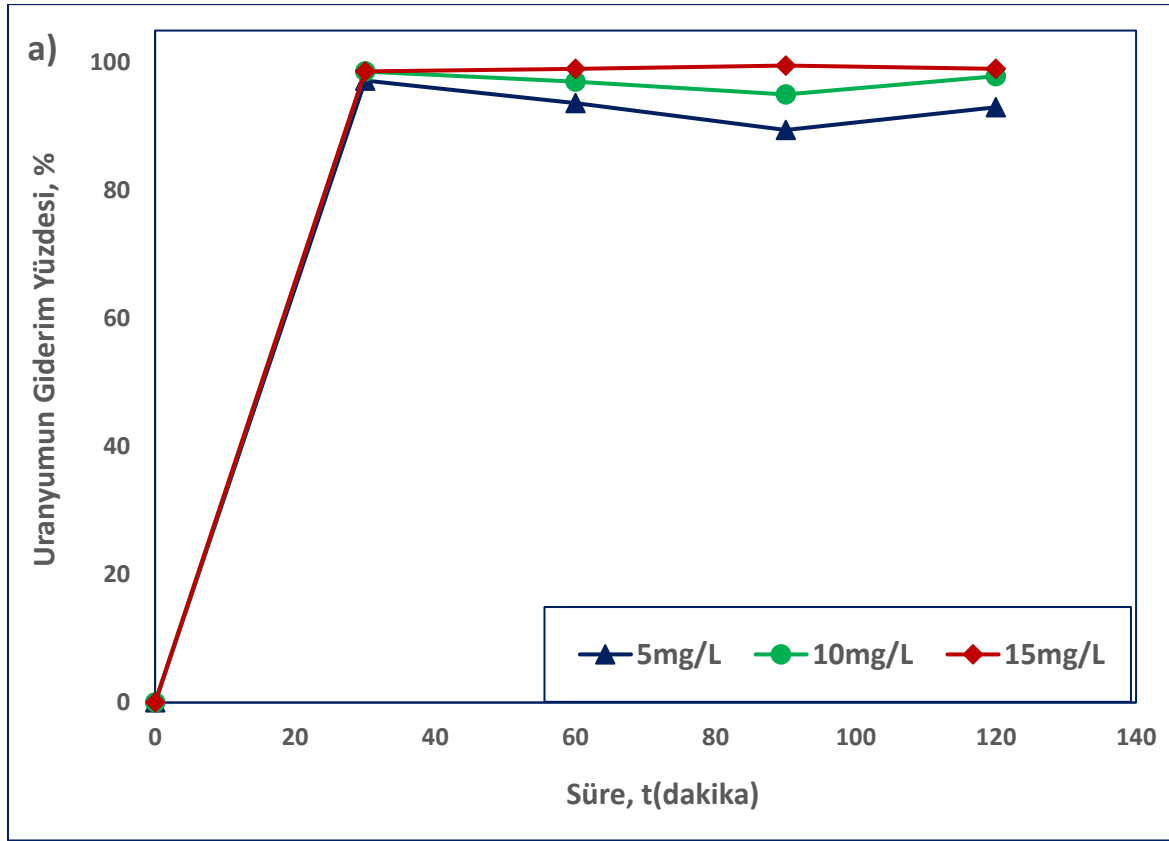


Şekil 6.25. Uranyumun *Scenedesmus sp.* Mikroalgleri ile Gideriminde Temas Süresinin: a) Adsorplanmaya, b) Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi

6.3.2. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun Etkisi

Uranyumun *Scenedesmus sp.* üzerine adsorpsiyonuna başlangıç konsantrasyonunun etkisini görebilmek için 5, 10 ve 15mg/L başlangıç uranyum konsantrasyonlarında çalışılmıştır. Seçilen şartlarda (pH 7, 71.61mg/L alg konsantrasyonu, canlı alg, 25°C) uranyumun adsorplanmasının zamana göre değişim grafiğine bakıldığında, uranyumun başlangıç konsantrasyonu arttıkça q_e (mg/g)'nın miktarının da arttığı görülmektedir. Her 3 konsantrasyonda biyosorpsiyon 30 dakikada tamamlanmıştır. Şekil 6.26'da görüldüğü gibi, 30 dakika süreden sonra biraz farklılıklar olmakla beraber uranyumun biyosorpsiyonunda büyük farklılık görülmemektedir. Uranyumun farklı başlangıç konsantrasyonlarında giderim yüzdeleri hemen aynı olmakla beraber alglerin birim yüzeyine adsorplaması uranyumun konsantrasyonuna göre büyük farklılık göstermektedir. Yani giderim uranyumun farklı konsantrasyonuna göre çok değişmemektedir, ama alglerin birim yüzeyine uranyumun adsorplanması uranyum konsantrasyonu arttıkça artmaktadır (Şekil 6.26a ve b).





Şekil 6.26. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun: a) *Scenedesmus sp.* Mikrolgleri Üzerine Adsorplanmasına b) Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, 41.54mg/L alg, canlı alg, 25°C)

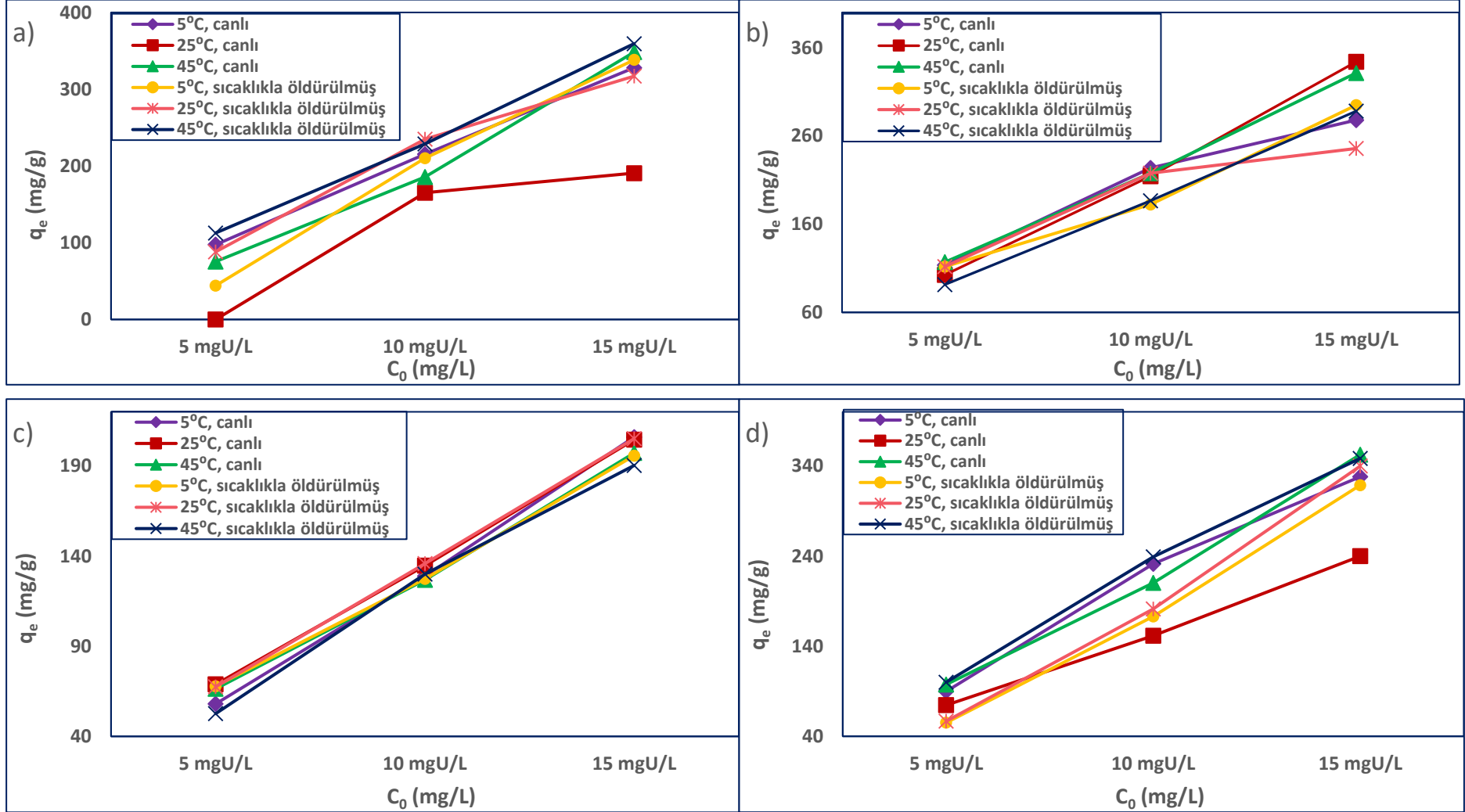
Uranyumun farklı sıcaklık ve farklı pH şartları altındaki *Scenedesmus sp.* mikroalgleri üzerine biyoaorpsiyonunun değişen başlangıç uranyum konsantrasyonu değerlerine göre grafikleri sırasıyla Sekil 6.28 ve Sekil 6.28’de gösterilmiştir. Kullanılan tüm sıcaklık ve pH şartlarında biyosorpsiyonun uranyumun başlangıç konsantrasyonu arttıkça arttığı gözlemlenmiştir. Grafiklerden de görüldüğü gibi, uranyum giderimi yüksek oranda başlangıç konsantrasyonuna bağlıdır. Buradan görülebileceği gibi, canlı alglerin canlı kalabilmeleri için en elverişli olan nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) canlı alglerin olduğu deneylerde q_e (mg/g) değeri en yüksek olup en yüksek değeri de 25°C’de görülmektedir. Asidik (pH 3) ve bazik (pH 9) ortamı olan deneylerde ise ısıyla öldürülmüş mikroalglerle en yüksek q_e (mg/g) değerleri elde edilmiş olup sıcaklık arttıkça biyosorplanması da artmaktadır (Şekil 6.27 ve 6.28).

Şekillerden de görüldüğü gibi, uranyumun maksimum biyosorplanma değeri q_e (**max**), pH 7, 25°C sıcaklık, 15mg/L uranyum ve canlı ve 41.54mg/L algler içeren reaktörlerde gözlemlenmiş olup değeri **360 mg/g’dır**. En düşük adsorpsiyon değerleri q_e (**min**) ise pH 9 ve pH 3’te, 5°C sıcaklık, ısıyla öldürülmüş alg, ve 115.94 mg/Lalgler ve 5mg/L uranyum içeren

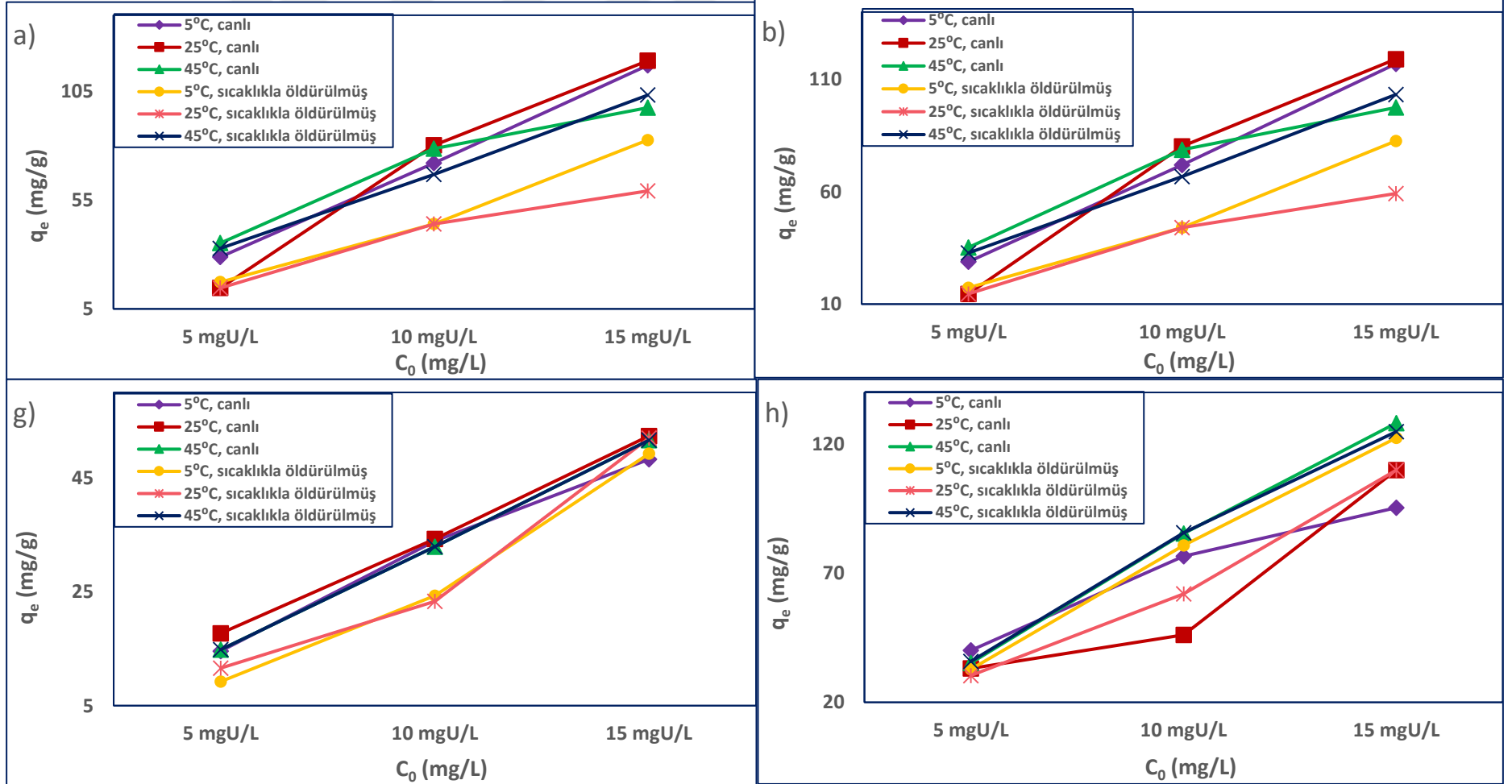
reaktörlerde gözlenmiştir ve değeri sırasıyla: **42 mg/g ve 43 mg/g'dır**. 41.54mg/L alg ile yapılan deneylerde **uranyumun ilk konsantrasyonu 5, 10 ve 15mg/L** olan reaktörlerde alglerin **q_{max} (mg/g)** değerleri sırasıyla; **120, 239 ve 360** olup hepsi pH 9, canlı alg türü ve 25°C sıcaklıkta elde edilmiştir. 115.94 mg/L alg içeren reaktörlerde ise bu değerler: **43, 86 ve 129**'dur. Verilen değerlerden de görüldüğü üzere, uranyum konsantrasyonu her 5mg/L arttırıldığında adsorbe edilen uranyum miktarı da, **q_e (mg/g)** da 1,5-2 katına artmaktadır.

q_e değerlerinin, başlangıç uranyum konsantrasyonundaki artış ile artması, temelde biyosorban yüzeyindeki aktif yerleri saran uranyum iyonlarının miktarı ile alakalıdır. Yani, uranyumun başlangıç konsantrasyonunun artmasıyla biyosorban yüzeyindeki biyosorpsiyona elverişli yerleri daha fazla metal iyonu bağlandığından uranyum iyonlarının adsorban tarafından daha fazla adsorplandığını söyleyebiliriz. Benzer sonuçlar daha önce çeşitli araştırmacılar tarafından yapılan çalışmalarda da rapor edilmiştir [53], [186], [187]. Bu çalışmaların içinden Bai'nin *Rhodotorula glutinis* algleriyle uranyumun biyosorpsiyon araştırmasında kullanılan uranyumun başlangıç konsantrasyonu 50mg/L'den 300mg/L'ye arttıkça **q_e (mg/g)** değeri de sürekli olarak artmıştır [53].

Şekil 6.27. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun **41.54mg/L** *Scenedesmus sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60 dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9



Şekil 6.28. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun **115.94mg/L** *Scenedesmus sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9



6.3.3. Başlangıç pH Değerinin Etkisi

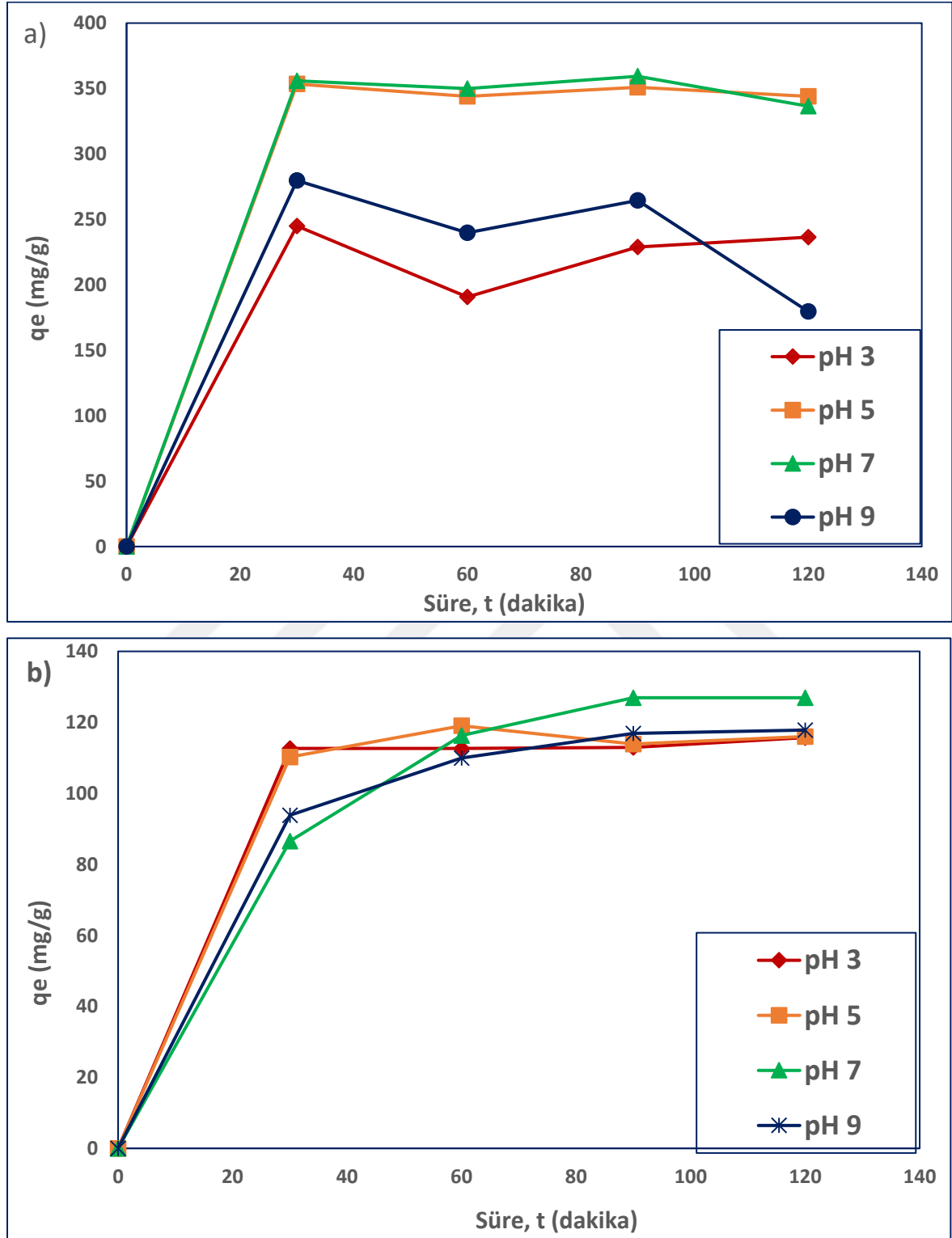
Başlangıç pH'ın adsorplanan uranyum miktarı üzerindeki etkisi görebilmek için burada 3, 5, 7 ve 9 pH değerlerinde çalışmalar yapılmıştır. Uranyumun *Scenedesmus sp.* üzerine adsorpsiyonunun değişen pH değerlerine göre grafiği Şekil 6.28'de gösterilmiştir. Görüldüğü gibi, en yüksek adsorpsiyon değerleri pH 7 ve 5'te ve en düşük adsorpsiyon kapasitesi de pH 9 ve 3'te gözlenmiştir. Düşük adsorban miktarında pH etkisi çok yüksek iken en iyi sonuçlar pH 5 ve 7'de elde edilmiştir. Adsorban miktarı arttığında pH'ın etkisi biraz azalmaktadır, en iyi sonuçlar yine pH 7'de elde edilmiştir (Şekil 6.28).

Uranyumun maksimum adsorpsiyon değeri, 41.54mg/Lalg içeren reaktörlerde **3, 5, 7 ve 9 pH değerlerinde** alglerin **q_{max} (mg/g)** değerleri sırasıyla; **359, 353, 359 ve 360** olup hepsi canlı alg ve 25°C sıcaklıkta elde edilmiştir. 115.94 mg/L alg içeren reaktörlerde ise bu değerler: **129, 119, 127 ve 129**'dür.

Şekil 6.29'da görüldüğü gibi uranyumun farklı pH değerlerinde *Scenedesmus sp.* üzerine biyosorpsiyonu 30 dakikalık süreden sonra fazla değişiklik göstermeden sabit kalmasıyla birlikte en fazla giderim 60 dakika içerisinde gerçekleşmiştir. Bundan dolayı uranyumun bu algler üzerine biyosorpsiyonuna uygulanan farklı sıcaklık ve pH'ların etkisini görebilmek için q_e (mg/g)'nin bu şartlar altında pH'a göre değişiminin grafikleri çıkartılmıştır (Şekil 6.29). Bu şekillerde hem 41.54mg/L mikroalglerle hem de 115.94mg/L mikroalgleriyle yapılan deneylerde bazı istisnai durumları olmakla birlikte tüm pH ve sıcaklıklarda q_e (mg/g)'nin en yüksek değerleri pH 3 ve 7'de elde edilmiştir. Nötr pH alglerin canlı kalması için en elverişli şarttır. Bu da sıcaklığa bağlı olarak q_e (mg/g) değerinin pH'a göre değişimi de farklılık göstermektedir (Şekil 6.29).

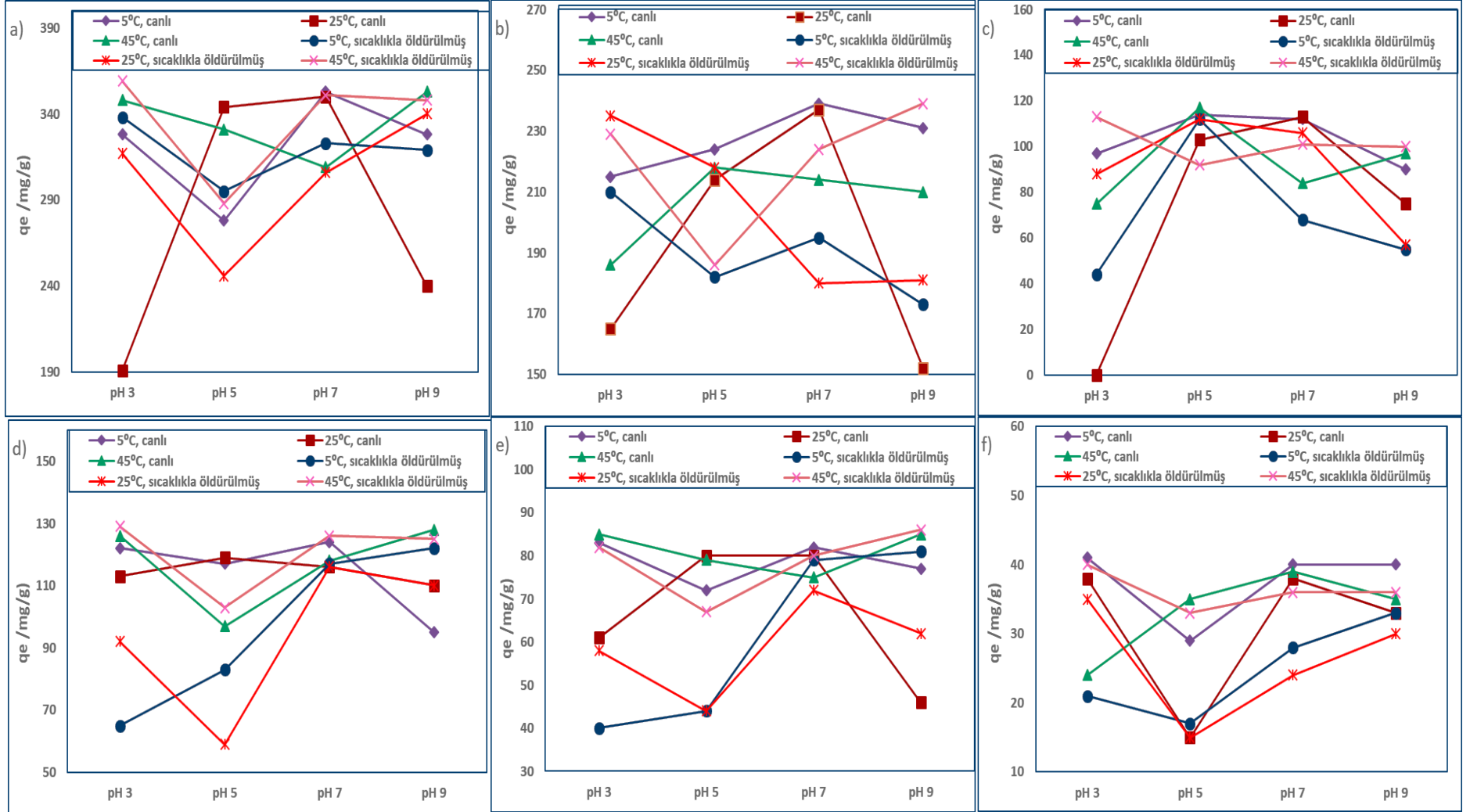
En yüksek adsorpsiyon değeri mikroalglerin yaşamı için en elverişli olan pH 7 ve 5'te elde edilmiştir. Canlı algler hareketli halde oldukları için uranyumun algle buluşma oranı artmaktadır, canlı algler ölü olanlara nazaran adsorpsiyonun yanısıra bioakümülyasyon ile de metalleri bünyesine alabilmektedir. Yi ve çalışma arkadaşlarına göre, düşük pH değerinde H^+ ionları arttığı için de alglerin negatif yüklü aktif bağlayıcı yüzeyine metal ionlarının yerine bağlandıkları için uranyumun adsorpsiyonunu azaltabilmektedir [147]. Burada da en yüksek adsorsiyon değeri algin canlı kalmasına en elverişli olan pH 7 ve 5'te elde edilmiştir.

Farklı pH değerlerinin uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle giderim yüzdesine bakılırsa en yüksek giderim pH 7 ve 5'te görülmektedir (Şekil 6.31).



Şekil 6.29. Farklı pH Değerinin Uranyumun *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi: (25°C, canlı alg, $C_0=15\text{mgU/L}$): a) 41.54mg/L alg, b) 115.94mg/L alg İçeren Reaktörlerde

Şekil 6.30. Başlangıç pH'ın Uranyumun *Scenedesmus sp.* Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 dakika): a), b) ve c) 41.54mg/L Alg ile Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) ise 115.94mg/L Alg ile

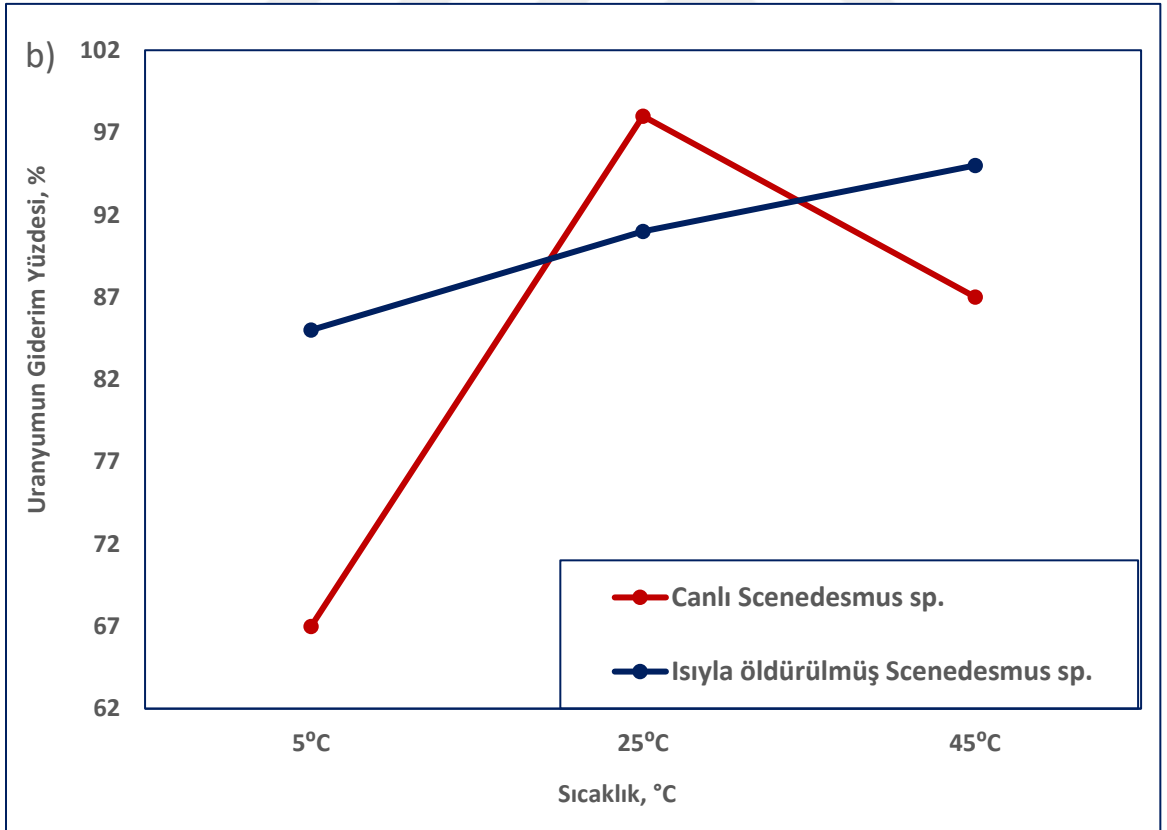
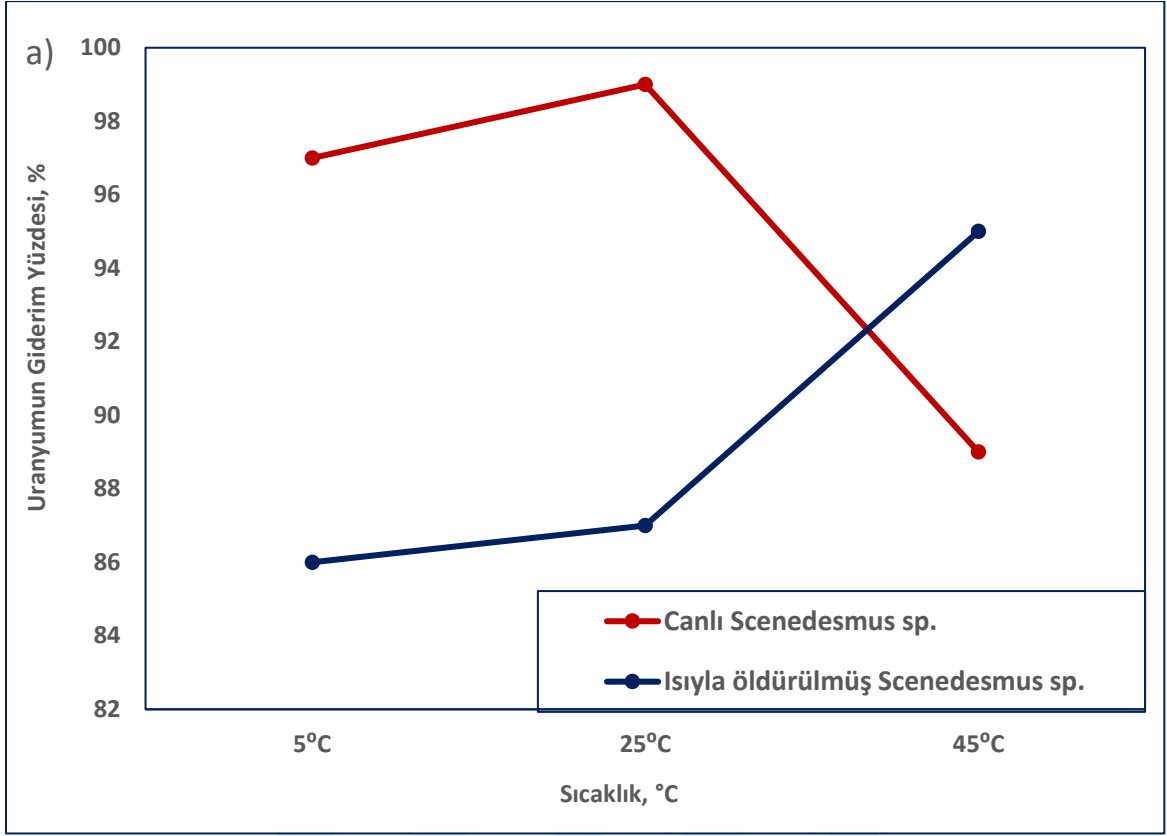


6.3.4. Sıcaklığın Etkisi

Uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleri tarafında biyosorpsiyonu üzerine sıcaklığın etkisini incelemek için 5, 25 ve 45°C’de çalışmalar yapılmıştır. Sıcaklığa göre uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleri üzerindeki adsorpsiyonunun zamana göre değişim grafikleri Şekil 6.31’den verildiği gibidir. Burada en yüksek giderim 25°C sıcaklıkta canlı alglerle elde edilmiş olup, 90 dakikada maksimum giderime ulaşmıştır. Canlı mikroalglerle yapılan çalışmalarda 25°C’de en yüksek adsorplanma görülmekle birlikte 5°C ve 45°C’de giderim daha düşüktür. 25°C mikroalglerin canlı kalabilmeleri için optimal şarttır. Canlı algler uranyumu adsorpsiyonun yanı sıra bioakümülyasyon ile de alabildikleri için mikroalglerin canlı kalabilmeleri için optimal olan sıcaklıkta en yüksek giderim gözlenmiştir. Isıyla öldürülmüş mikroalglerle yapılan çalışmalarda ise sıcaklık arttıkça giderim artmaktadır. Canlı mikroalglerle giderim ölü mikroalglere nazaran giderim daha yüksek olmuştur. Mikroalg konsantrasyonu düşük iken (41.54mg/L) canlı mikroalgler ısıyla öldürülmüş mikroalglere nazaran yaklaşık %10-12 daha fazla uranyum gidermişken, mikroalg daha yüksek iken (115.94mg/L) bu fark %12-20 arasındadır (Şekil 6.31 a ve b). Canlı mikroalgler öldürülmüş olanlara nazaran uranyumu biyosorpsiyonun yanı sıra biyoakümülyasyonla da bünyesine almaktadır. Dolayısıyla burada ısıyla öldürülmüş ve canlı mikroalglerin giderim yüzdelerinin farklarına bakarak uranyumun yaklaşık %10-20’sinin *Scenedesmus sp.* mikroalgleri tarafından biyoakümülye edildiği, kalan %80-90 kısmının da biyosorpsiyonla giderildiği sonucuna varılabilir.

Bu grafiklerde görüldüğü gibi standart şartlarda (pH 7, canlı mikroalg, $C_0=15\text{mgU/L}$) süre 30 dakika) mikroalgler canlı iken en yüksek giderim 25°C’de elde edilmişken, ısıyla öldürülmüş mikroalglerde sıcaklık arttıkça giderim sürekli artmaktadır ve en yüksek giderim 45°C’de elde edilmiştir. Kullanılan mikroalg konsantrasyonu daha düşük iken (42.54mg/L) canlı mikroalg ile ölü mikroalg giderim yüzdeleri arasında fark %20 olup canlı alglerle daha fazla giderim olmuştur. Mikroalg konsantrasyonu 115.94 iken ise yine canlı mikroalglerle ölümlere nazaran daha yüksek giderim olmasına rağmen arasındaki fark ancak %5 arasındadır. Canlı algler uranyumu ölü olanlara nazaran biyoadsorpsiyonun yanı sıra biyoakümülyasyonla bünyesine alabilmektedir. Burada canlı ile ölü mikroalglerinin giderim yüzdelerinin farklarına bakarsak biyoakümülyasyonla uranyumun yaklaşık %12-20 giderilmektedir. Anaerobik bakterilerle yapılan çalışmalarda da benzer sonuç elde edilmiştir.

Burada uranyumun *Scenedesmus sp.* üzerine adsorpsiyonuna sıcaklığın etkisi standart şartlarda (nötr pH, oda sıcaklığı) bakıldığında, canlı mikroalglerle 25°C'ye ve ölü mikroalglerle sıcaklık arttıkça adsorpsiyonun da sürekli arttığı belirlenmiştir. Termodinamik hesaplama sonuçlarına da bakılırsa, standart şartlarda adsorpsiyon entalpisi pozitif olduğu için endotermiktir (ısı enerjisini tüketen), yani sıcaklığın artmasıyla adsorpsiyon da artıyor. (Çizelge 6.12). Ancak EK-2'de verildiği gibi, diğer şartlarda, uranyumun *Scenedesmus sp.* ile adsorpsiyonu sıcaklık arttıkça tersine azalmakta ve en yüksek giderim en düşük sıcaklıkta elde edilmiştir. Bu sonuçlar termodinamik hesaplamalara da uymaktadır. Bu şartlarda adsorpsiyon ekzotermik (ısı üreten) olduğu belirlenmiştir. Genel olarak çoğunlukla uranyumun *Scenedesmus sp.* ile adsorpsiyonu endotermiktir, yani sıcaklık artmasıyla giderim de artmaktadır.



Şekil 6.31. Sıcaklığın Uranyumun *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, canlı alg, $C_0=15\text{mgU/L}$): a) 41.54mg/L alg, b) 115.94mg/L Mikroalg İçeren Reaktörler İçin

41.54mg/L Scenedesmus sp. Mikroalgleriyle Yapılan Çalışmalar. Şekil 6.32a'da 15 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde sıcaklık arttıkça q_e (mg/g) değeri azalmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde ise, nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) mikroalglerin birim kütlesi üzerine adsorplanan uranyum miktarı (q_e (mg/g) değeri) 5°C'den 25°C'ye kadar yaklaşık 1-4mg/g'a artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da sıcaklık arttıkça q_e (mg/g) sürekli artmaktadır (Şekil 6.32a). Şekil 6.32b'de 10 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde, tüm pH 3 dışında tüm pH değerlerinde q_e (mg/g) değeri 25°C'ye kadar artıp daha sonra azalmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde de tüm pH değerlerinde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır (Şekil 6.32b). Şekil 6.32c'de 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve hem canlı hem ısıyla öldürülmüş algler içeren reaktörlerde, nötr pH değerlerinde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da canlı algler olan reaktörlerde biyosorbans sıcaklık arttıkça azalırken, ısıyla öldürülmüş algleri bulunanlarda ise tüm pH değerlerinde sürekli artmaktadır (Şekil 6.32c).

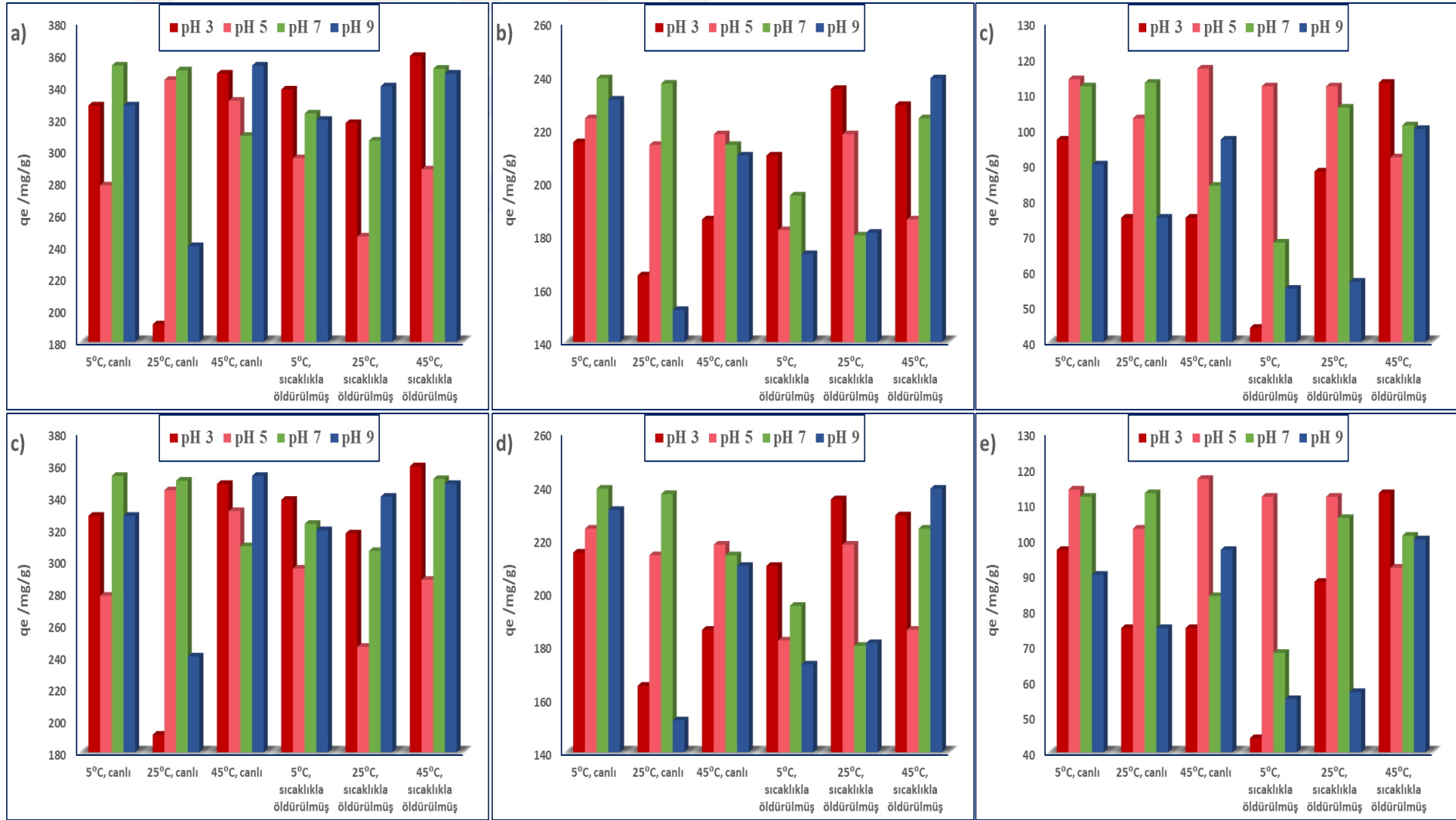
115.94mg/L Scenedesmus sp. Mikroalgleriyle Yapılan Çalışmalar. Şekil 6.32 d, e ve f'de sırasıyla 15 mg/L, 10 mg/L ve 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar yaklaşık 15-40mg/g'a artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da ise tersine 5°C'den 25°C'ye kadar azalmakta ve 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar artmaktadır. Isıyla öldürülmüş mikroalgleri bulunan reaktörlerde ise, 15mg/L uranyum konsantrasyonu olan reaktörlerde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. 10mg/L uranyum konsantrasyonunda, canlı mikroalglerde sıcaklık arttıkça q_e (mg/g) azalmakta ve ısıyla öldürülmüş mikroalglerde ise q_e sıcaklıkla genellikle artmaktadır (Şekil 6.32e). Şekil 6.32f'de 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde, nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) q_e (mg/g) değeri 25°C'ye kadar artıp daha sonra azalmaktadır, asidik ve bazik pH değerlerinde de tersine 25°C'ye kadar azalıp sonra artmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde pH 3 dışında başka pH değerlerinde q_e (mg/g) değeri sıcaklıkla sürekli artmaktadır (Şekil 6.32d, e ve f).

Burada görüldüğü gibi biyosorbans farklı fiziksel ve kimyasal parametrelerin etkilerinin altında sıcaklığa göre farklı olarak değişmektedir. Ama genel olarak aşağıdaki gibi genel

sonuç çıkarabiliriz: 1) nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7), hem canlı hem ısıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar azalmakta ve 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar artmaktadır, yani en yüksek biyosorpsiyon 25°C'de gerçekleşmiştir, 2) Asidik (pH 3) ve bazik (pH 9) şartlar altında ise genel olarak canlı mikroalgler kullanıldığında sıcaklıkla arttıkça q_e (mg/g) değeri azalmakta, ısıyla öldürülmüş mikroalgler olan reaktörlerde ise tersine sıcaklık arttıkça sürekli artmaktadır. Bu durum aşağıdaki gibi açıklanabilir: nötr pH değerleri (pH 5 ve 7) alglerin canlı kalabilmesi için en elverişli olan şarttır ve bundan dolayı algler çoğunlukla canlı kaldıkları için uranyumun giderimi algler için optimal sıcaklık olan 25°C'de en yüksektir. Canlı mikroalgler ne kadar fazla olursa o kadar daha hareketli ve dolayısıyla uranyumla buluşma ve biyosorplama olasılığı da daha yüksektir. Hem de canlı mikroalgler adsorpsiyonun yanı sıra bioaküstasyonla da uranyumu bağlayabilmektedirler.

Buradan görüldüğü gibi farklı şartlar altında uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleri üzerine biyosorpsiyonu farklı olarak değişiklik göstermektedir. Ama optimal şartların belirlenmesi için böyle farklı fiziksel ve kimyasal şartlar aynı anda etkisini dikkate alarak optimizasyon yönteminin yardımıyla üç boyutlu grafikleri çıkartılarak analiz edilmelidir.

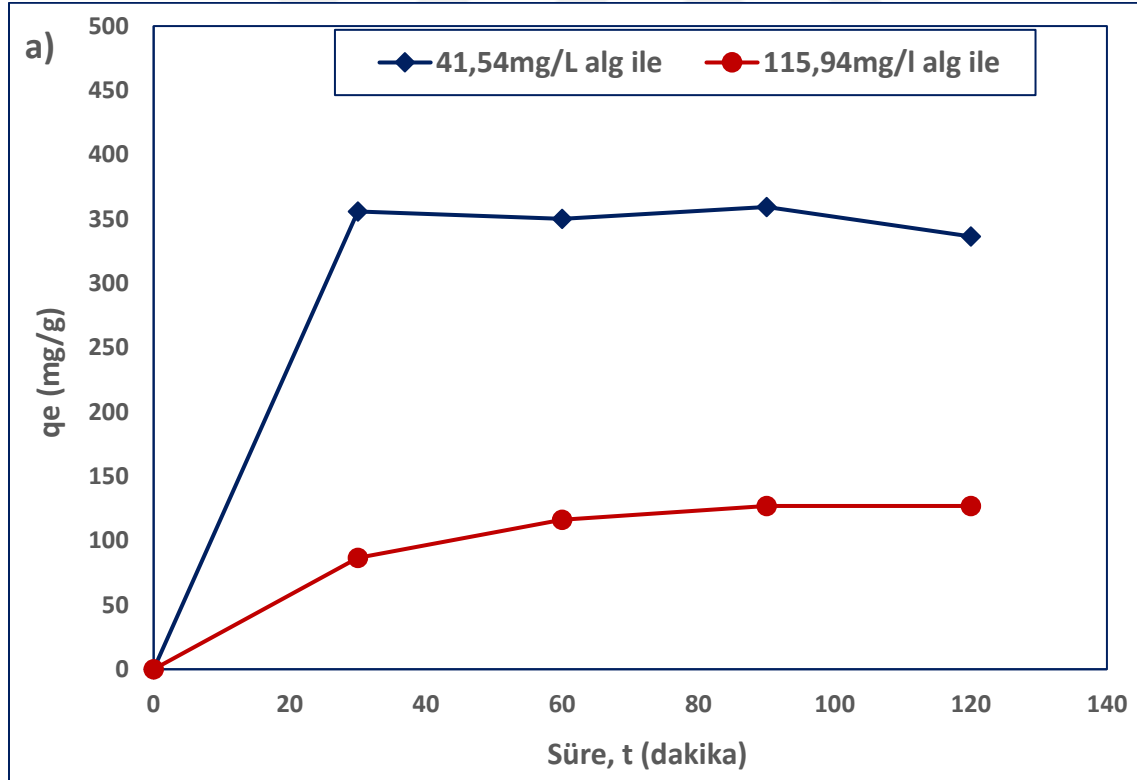
41.54mg/L alg içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde, 5, 25 ve 45°C sıcaklıklarda canlı alglerle yapılan deneylerde q_{max} (mg/g) degerleri sırasıyla; **359, 360 ve 353'dir**. Isıyla öldürülmüş mikroalglerle yapılan deneylerde ise q_{max} (mg/g) degerleri sırasıyla; **353, 355 ve 359'dır**. 115.94mg/Lalg içeren reaktörlerde ise bu değerler canlı mikroalgler için: **127, 129 ve 122'dir** ve ısıyla öldürülmüş algler için ise: **122, 123 ve 129'dür**. Canlı mikroalglerin olduğu reaktörlerde adsorban miktarı yüksek iken başlangıçta düşük sıcaklıkta adsorbans daha yüksek olmasına rağmen zaman geçtikçe en yüksek değeri 25°C'de görülmektedir. Yani zaman geçtikçe q_e (mg/g) miktarına değil mikroalglerin canlı ve hareketli kalması için uygun sıcaklığa bağlı olduğu görülmüştür.

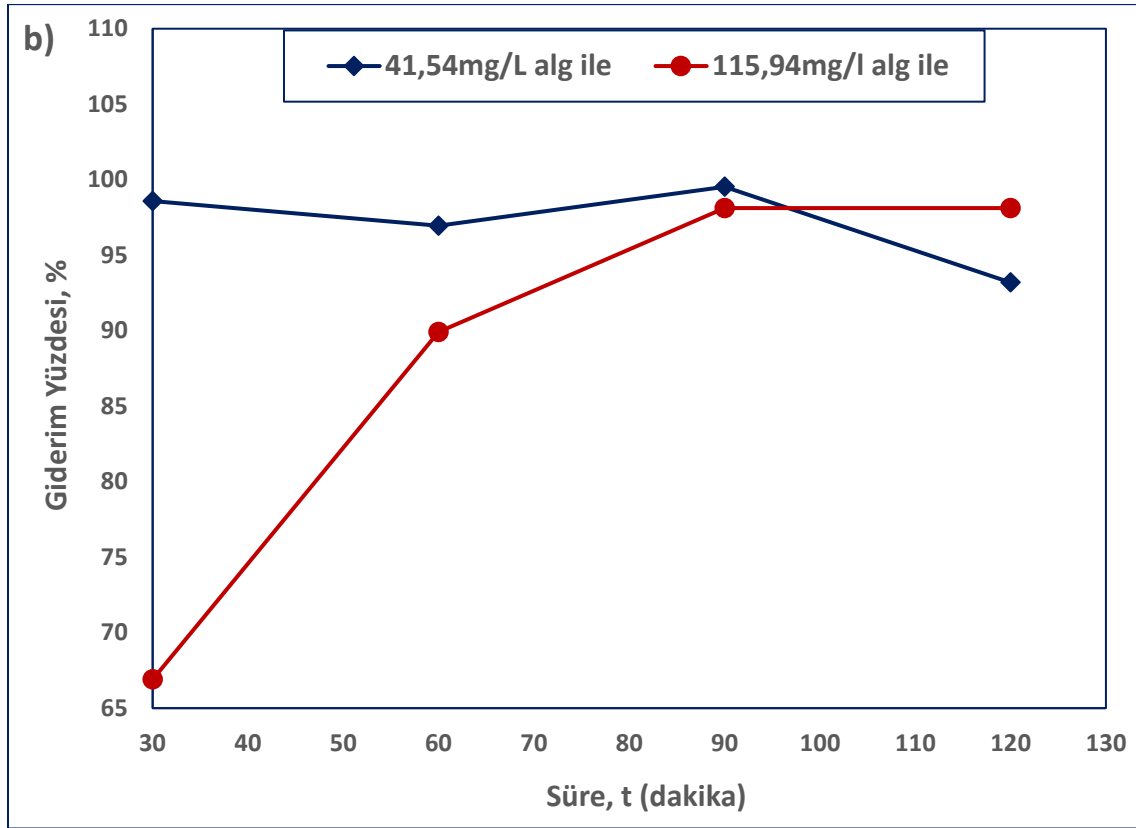


Şekil 6.32. Sıcaklığın Uranyumun *Scenedesmus sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 dakika): a), b) ve c) 41.54mg/L Alg ile Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) ise 115.94mg/LAlg ile

6.3.5. Mikroalg Konsantrasyonunun Etkisi

Uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleri üzerine biyosorplanmasının q_e (mg/g) zamana karşı değişimini görebilmek için algin 41.54mg/L ve 115.94 mg/L'lik konsantrasyonları, optimal şartlar altında (25°C, pH 7, 15mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı alg türü) kullanılmıştır ve sonuçları Şekil 6.33'de gösterildiği gibidir. q_e (mg/g) değerinin, adsorban miktarı arttıkça azaldığı görülmüştür. Ama Şekil 6.33b'deki giderim yüzdesine karşı grafiğine bakılırsa daha yüksek konsantrasyonda *Scenedesmus sp.* mikroalgleri ile yapılan deneylerde (115.94 mg/L) daha düşük konsantrasyonda (41.54mg/L) nazaran başta büyük fark olmamakla biraz az olmakla birlikte 90 dakikadan sonra daha yüksek giderim olduğu gözlemlenebilir. Yani burada alg konsantrasyonu daha fazla olduğu için alglerin birim yüzey başına biyosorplanan uranyum daha az olmuştur, ama giderimi daha düşük alg konsantrasyonu ile hemen hemen aynıdır. Bu da uranyumun *Scenedesmus sp.* üzerine biyosorplama ile gideriminde alg konsantrasyonunun 41,54mg/L olmasının yeterli olduğunu göstermiştir. (Şekil 6.33 a ve b).





Şekil 6.33. Uranyumun a) *Scenedesmus sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorpsiyonunun Değişen Adsorban Miktarı Değerlerine Göre, b) Giderim Yüzdesine Göre Grafikleri (25°C, pH 7, 15mg/L uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve canlı alg türü)

Adsorban miktarı arttıkça adsorpsiyon değerindeki azalma süreç içerisinde adsorban yüzeyindeki aktif yerlerin uranyum iyonları tarafından doyurulmadan kalmasına bağlıdır. Bunun sebebi, belirli bir miktar adsorbanın ancak belirli bir miktar uranyumu adsorbe edebilmesi söylenebilir. Bir önceki bölümde bahsedildiği gibi sabit adsorban miktarında, uranyum konsantrasyonu arttırıldığında adsorpsiyon değeri artmaktaydı. Burada ise sabit uranyum konsantrasyonunda adsorban miktarı arttırıldı dolayısıyla bu hareketle ortamdaki adsorban miktarına oranla uranyum konsantrasyonu azalmış oldu. Bu da adsorbanın daha düşük uranyum iyonları ile teması ve adsorbandaki aktif yerlerin doyurulmadan kalması anlamına gelir.

Burada farklı parametrelerin (temas süresi, uranyum konsantrasyonu, pH, sıcaklık, adsorban miktarı) uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle adsorpsiyonuna olan etkileri seçilen şartlar altında ayrı ayrı olarak bakılmıştır. Ancak bu parametrelerin etkilerinin aynı anda göz önünde bulundurarak uranyumun adsorpsiyonuna olan etkilerine bakabilmek için Box-Behnken programının yardımıyla ‘Yanıt Yüzey Metodu (YYM)’ ile optimizasyon yöntemi kullanılmıştır. Sonuçta optimal şartlar belirlenmiştir.

6.3.6. Uranyum Adsorpsiyonunun Yanıt Yüzey Metodu (YYM) ile Optimizasyonu

6.3.6.1. Model Oluşturulması ve İstatistiksel Analiz

Eğer uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle adsorplanarak gideriminde tek değişken parametre olarak süre alınsaydı, uranyumun gideriminin süreye göre değişimini grafikte izlemek kolay olurdu. Ancak değişken parametrelerin (pH, sıcaklık, uranyum konsantrasyonu, alg konsantrasyonu, alglerin ölü yada canlı olması, süre) sayısı arttıkça herhangi bir parametrenin giderime etkisini izlemek için diğer parametrelerin de bu etkiye katkısını hesaba katarak en optimal (en verimli) giderim şartların belirlenmesi gerekmektedir. Böylelikle kullanılan değişken parametrelerin hepsinin etkisini bir arada görebilmek için Box-Benken istatistiksel-matematiksel grafik analizi kullanılır. Böylece burada Box-Behnken optimizasyon yöntemi kullanılarak farklı parametrelerin farklı değerlerinde: (1) pH: 3, 5, 7 ve 9, 2) sıcaklık: 5°C, 25°C ve 45°C, 3) uranyumun başlangıç konsantrasyonu: 5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L, 4) süre: 30dakika, 60dakika, 90dakika ve 120dakika, 5) mikroalg konsantrasyonu: 41.54mg/L ve 115.54mg/L, 6) mikroalglerin ölü yada canlı olması) uranyumun yüzde grafikleri kıyaslanarak en yüksek uranyumun giderilmesinin sağlayan optimum şartlar belirlenmiştir. Box-Behnken programı kullanılarak toplam 720 adet deney verisi elde edilmiştir. İstatistiksel deneysel tasarımdan elde edilen veriler çoklu lineer regresyon analizi kullanılarak bağımlı değişken Y (giderim yüzdesi, %) ve bağımsız değişkenler (alg konsantrasyonu (X_1), canlı/ölü alg (X_2), sıcaklık (X_3), süre (X_4), pH (X_5), U(VI) ilk konsantrasyonu (X_6)) arasındaki bağlantı aşağıdaki gibi üçüncü dereceden polinom denklem ile verilmektedir:

$$\begin{aligned} Y(\text{mg} / \text{g}) = & 87,91 - 6,59X_1 + 4,67X_2 + 2,07X_3 - 4,33X_4 + 12,5X_5 + 4,49X_6 + 2,06X_1X_2 \\ & + 1,81X_1X_3 - 0,2687X_1X_4 + 0,7692X_1X_5 - 1,79X_1X_6 - 3,64X_2X_3 + 1,59X_2X_4 \\ & + 0,1392X_2X_5 + 0,6294X_2X_6 + 3,37X_3X_4 - 2,58X_3X_5 - 0,9236X_3X_6 + 1,63X_4X_5 \\ & + 1,93X_4X_6 - 0,3166X_5X_6 + 5,09X_3^2 - 45,7X_4^2 - 3,13X_5^2 - 4,34X_6^2 + 58,61X_1X_2X_3 \\ & + 185,17X_1X_2X_4 + 3734,45X_1X_2X_5 + 212,02X_1X_2X_6 + 11,86X_1X_3X_4 + 286,67X_1X_3X_5 \\ & + 10X_1X_3X_6 + 56,65X_1X_4X_5 + 1,56X_1X_4X_6 + 534,96X_1X_5X_3 + 17,14X_2X_3X_4 \\ & + 232,54X_2X_3X_5 + 817,91X_2X_3X_6 + 11,96X_2X_4X_5 + 210,94X_2X_4X_6 + 3268,31X_2X_5X_6 \\ & + 169,23X_3X_4X_5 + 500,07X_3X_4X_6 + 68,37X_3X_5X_6 + 1,21X_4X_5X_6 + 316,3X_1X_2^2 \\ & + 30,55X_1X_4^2 + 5352,37X_1X_5^2 + 748,1X_1X_6^2 + 56,77X_2X_3^2 + 106,75X_2X_4^2 + 4014,72X_2X_5^2 \\ & + 33,63X_2X_6^2 + 166,28X_3^2X_4 + 69,48X_3^2X_5 + 33,63X_3^2X_6 + 57,52X_3X_4^2 + 919,74X_3X_5^2 \\ & + 79,92X_3X_6^2 + 257,46X_4^2X_5 + 481,3X_4X_6^2 + 4013,80X_5^2X_6 + 24,29X_5X_6^2 + 70398,07X_4^3 \\ & + 2692,03X_5^2 \end{aligned}$$

Elde edilen bu regresyon denkleminin istatistik olarak analiz edilmesi için ANOVA model analizi yapılmıştır (Çizelge 6.9). Modelde **F-değerinin** 68,60 olması modelin önemliliğini göstermektedir. **P-değerlerinin** 0,0500'ten daha az olması modeldeki parametrelerin önemliliğinin göstergesidir. Burada; A(X₁), B(X₂), E(X₅), F(X₆), AB(X₁X₂), AC(X₁X₃), AF(X₁X₆), BC(X₂X₃), BD(X₂X₄), CD(X₃X₄), CE(X₃X₅), DF(X₄X₆), C²(X₃²), D²(X₄²), E²(X₅²), F²(X₆²), ABE(X₁X₂X₅), BCF(X₂X₃X₆), BEF(X₂X₅X₆), AE²(X₁X₅²), AF²(X₁X₆²), BE²(X₂X₅²), CE²(X₃X₅²), D²F(X₄²X₆), E²F(X₅²X₆), D³(X₄³), E³(X₆³)- önemli model parametreleri olduğu görünmektedir. Bu değer 0.1000'den daha büyük olması model parametrelerinin önemli olmadığını göstermektedir. Parametrelerin P-değerlerine bakıldığında uranyum giderim yüzdesini en çok etkileyen parametrelerden birinci sırada pH (p<0,0001) ve alg konsantrasyonu gelmektedir, sonra canlı yada ölü olması, daha sonra uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve kontak süresi ile sıcaklık gelmektedir.

Çizelge 6.9. ANOVA Model Analizi (Scenedesmus sp. sp. 1. Deney)

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	8.198E+05	67	12236.32	68.60	< 0.0001	significant
A-Chlorofill-a	3915.42	1	3915.42	21.95	< 0.0001	
B-Canlı yada ölü	1969.10	1	1969.10	11.04	0.0009	
C-Sıcaklık	344.88	1	344.88	1.93	0.1649	
D-Süre	463.12	1	463.12	2.60	0.1076	
E-pH	3451.35	1	3451.35	19.35	< 0.0001	
F-U(VI) Konsantrasyonu	1611.70	1	1611.70	9.04	0.0027	
Cor Total	9.361E+05	719				

6.3.6.2. YYM Optimizasyon Sonuç Analizleri

Bağımsız değişken parametrelerin uranyumun giderilmesine olan etkilerini aynı anda görebilmek ve inceleyebilmek için YYM optimizasyon yöntemiyle elde edilen üç boyutlu yüzey grafikleri kullanıldı. Bu grafiklerde iki parametrenin giderime etkisine bakılırken, kalan 4 parametreler ise giderim yüzdesi en yüksek değere gelene kadar ayarlanarak optimum sabit değere getirildi. Farklı iki parametreler seçilerek her bir parametre için farklı üç boyutlu yüzeysel grafikler oluşturuldu. Bu grafikler karşılaştırılarak tüm parametreler için optimum (giderim yüzdesi en yüksek değerde olan) değerleri tespit edilmiştir.

pH-Sıcaklık Grafikleri. İstatistiksel analizde gösterildiği gibi, burada kullanılan 6 bağımsız değişkenlerin içinden uranyumu giderimini en çok etkileyen parametre olan pH parametresinin diğer 5 parametrelere karşı ayrı ayrı yapılan grafiklere bakılırsa sabit tutulan

parametrelerin optimum değerlere getirilip getirilmemesine bağlı olarak giderimde ne kadar büyük fark olduğu görülür (Şekil 6.34). Örneğin, pH ve sıcaklığın değişken olduğu grafiklerde, optimal olarak tespit edilen:1) süre (54-62,4 dakika), 2) mikroalgler canlı, 3) mikroalg konsantrasyonunun 115.95mg/L ve 4) uranyumun ilk konsantrasyonu en yüksek (15mg/L) seçilerek pH-sıcaklık grafiğinin'e bağlı olarak nasıl değiştiği Şekil 6.34a'da görülmektedir. Aynı grafikler, aynı optimal şartlarda, ancak uranyumun konsantrasyonu en düşük olan 5mg/L olunca uranyumun gideriminin pH-sıcaklık grafikleri Şekil 6.34b'de verilmiştir. Bu şekillerden, optimal uranyumun başlangıç konsantrasyonu 15mg/L olanlarda ve optimal olmayan ilk konsantrasyonu 5mg/L olana göre büyük fark olduğu görülmektedir. Uranyumun başlangıç konsantrasyonu 5mg/L iken giderim yüzdesi %50-90 arasındayken, bu konsantrasyon 15mg/L'ye çıkartılınca giderim yüzdesi %90'den fazla olduğu da görülmektedir. Yani uranyumun ilk konsantrasyonunun giderim yüzdesine olan etkisi büyük olduğu burada net olarak yansıtılmaktadır. Hem optimal şartlarda hem de optimal olmayan şartlarda alger canlı iken sıcaklığa bağlı olmadan nötr pH (pH 6-8 arası) değerlerinde en yüksek giderim yüzdesi vermektedir. Ama ölü alglerin olduğu reaktörlerde ise giderim yüzdesi sıcaklık arttıkça hayli artmaktadır, nötr pH değerlerinde giderim biraz daha fazladır.

pH-Mikroalg Ölü/Canlı Grafikleri. Uranyumun gideriminin optimal süre (62,4dakika), optimal U(VI) konsantrasyonunda (15mg/L), optimal ve optimal olmayan mikroalg konsantrasyonu ve sıcaklık şartları altında pH parametresinin mikrooalglerin canlı yada ölü olmasına karşı giderim yüzdesinin değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.35'de gösterildiği gibidir (Şekil 6.35). Burada hem optimal hem optimal olmayan şartlarda uranyumun giderimi tüm grafiklerde canlı mikroalglerin olduğu reaktörlerde giderim ölü mikroalglerin olduğuna nazaran daha yüksek giderim verdi. Her şartta uranyum gideriminin pH arttıkça da arttığını da görebiliriz. Burada belirtilmesi gereken önemli nokta: mikroalg konsantrasyonu (adsorban) yüksek iken (115.94mg/L) giderim yüzdesi sıcaklığa bağlı olarak önemli derecede değişmektedir (sıcaklık arttıkça giderim artıyor). Bu durum ANOVA hesaplamasından da görülmektedir.

pH-Mikroalg Konsantrasyonu Etkileşimi. Uranyumun *Scenedesmus sp.* ile gideriminin optimal şartlarda pH ve alg konsantrasyonuna göre değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.36'da verilmiştir. Grafiklerde görüldüğü gibi uranyumun giderimi alg konsantrasyonu ve pH arttıkça artmaktadır.

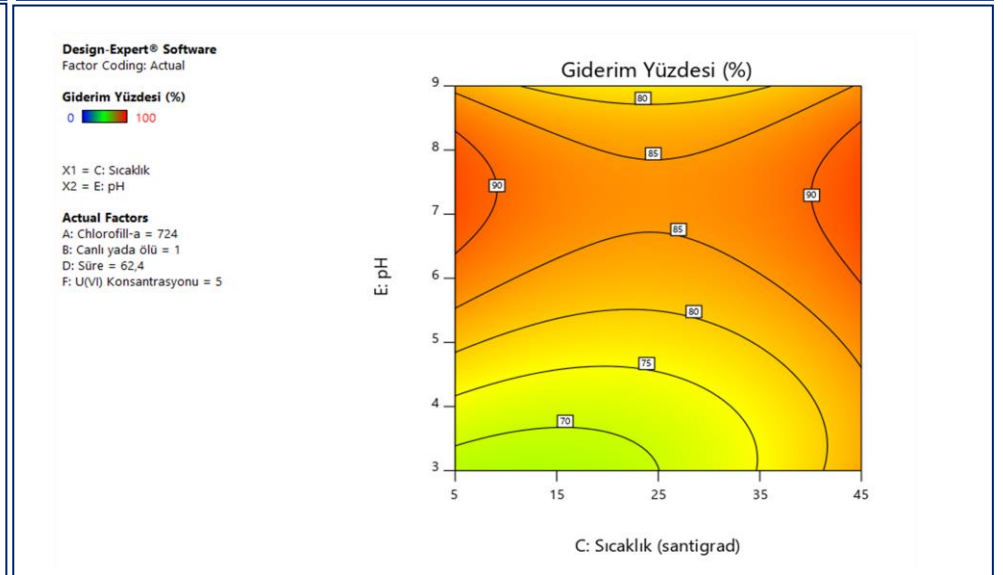
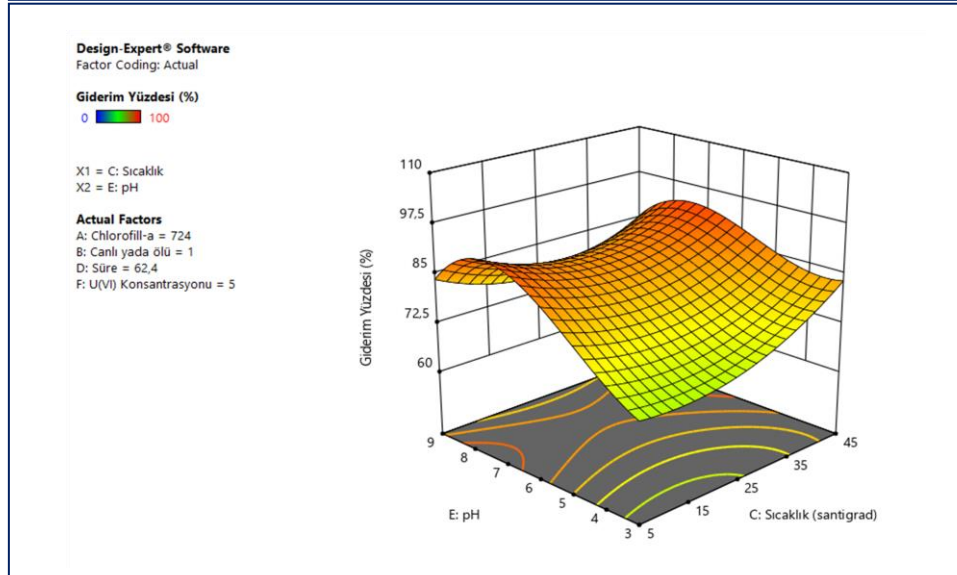
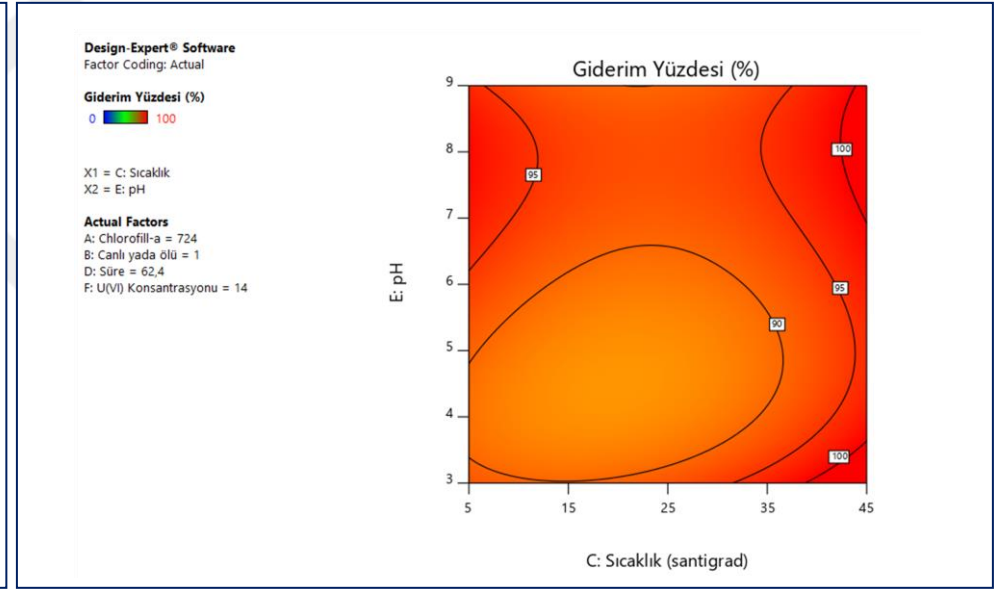
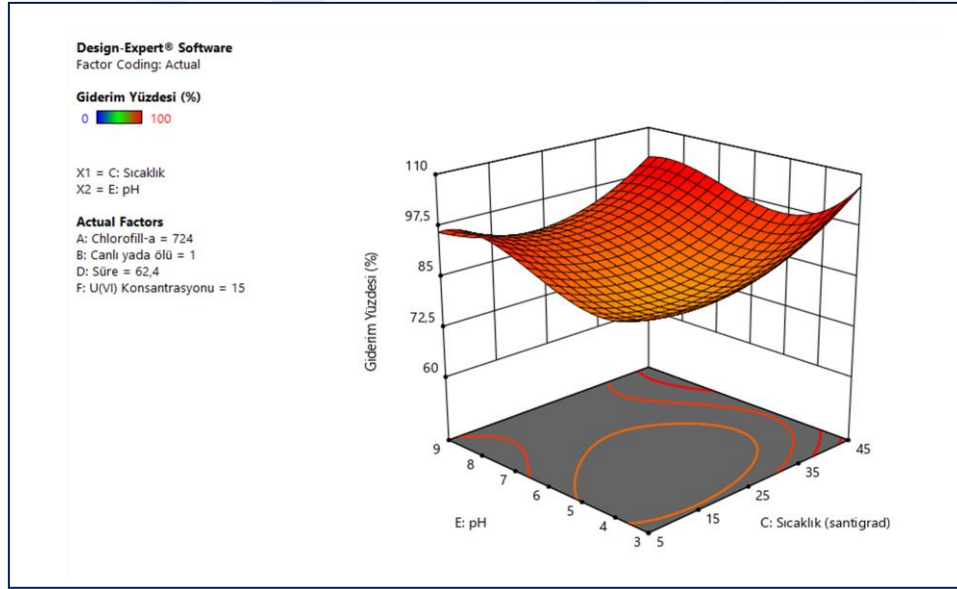
pH-Süre İlişkisi. Optimal şartlarda pH ve süreye göre uranyumun giderim yüzdesinin değişmesinin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.36'da görülmektedir. Grafiklerde en yüksek giderimin 54 dakika ila 62,4 dakika arasında gerçekleştiği görülmektedir (Şekil 6.36).

Uranyum Konsantrasyonu – pH İlişkisi. Optimal şartlarda uranyumun konsantrasyonuna ve pH'a bağlı olarak giderim yüzdesinin değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.37'da görülmektedir. Grafiklerde giderim yüzdesinin, uranyum konsantrasyonu arttıkça arttığı ve en yüksek giderimin pH 6,5-8 arasında (nötr pH) gerçekleştiği gözlenebilir.

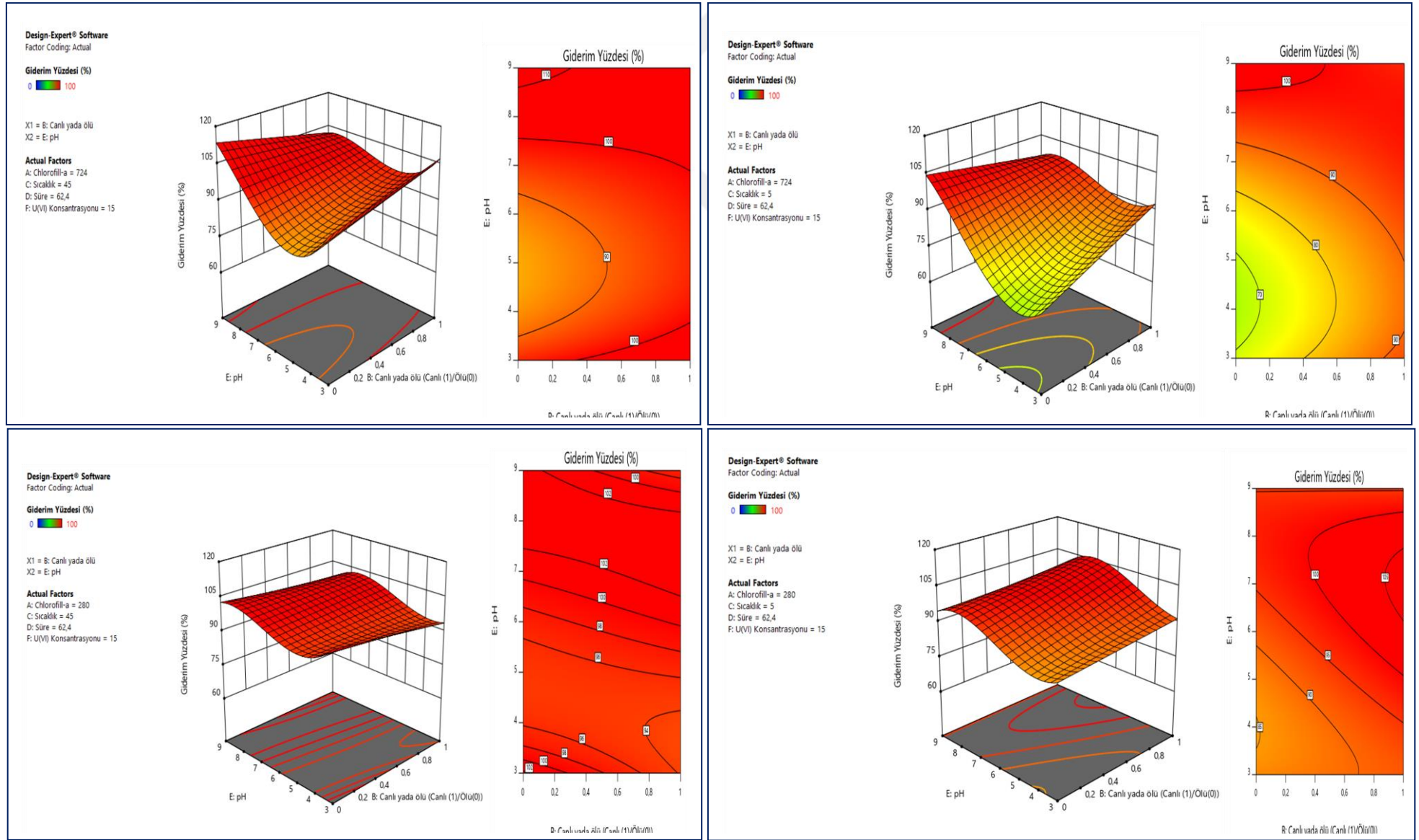
Uranyum - Alg Konsantrasyonu İlişkisi. Uygulanan şartlarda uranyumun gideriminin uranyumun konsantrasyonu ve alg konsantrasyonu arttıkça artmaktadır (Şekil 6.37).

Uranyum Konsantrasyonu - Sıcaklık İlişkisi. Burada algler ölüyken, giderim yüzdesi sıcaklık arttıkça sürekli artmaktadır, ama algler canlıyken, hem düşük hem de yüksek sıcaklıkta yüksek giderim elde edilmiştir. Hem canlı hem de ölü alglerde uranyumun konsantrasyonu arttıkça giderim yüzdesi de arttığı belirlenmiştir. Canlı mikroalglerle giderimim ölü mikroalglerle göre daha yüksek olduğu da görülmektedir (Şekil 6.37).

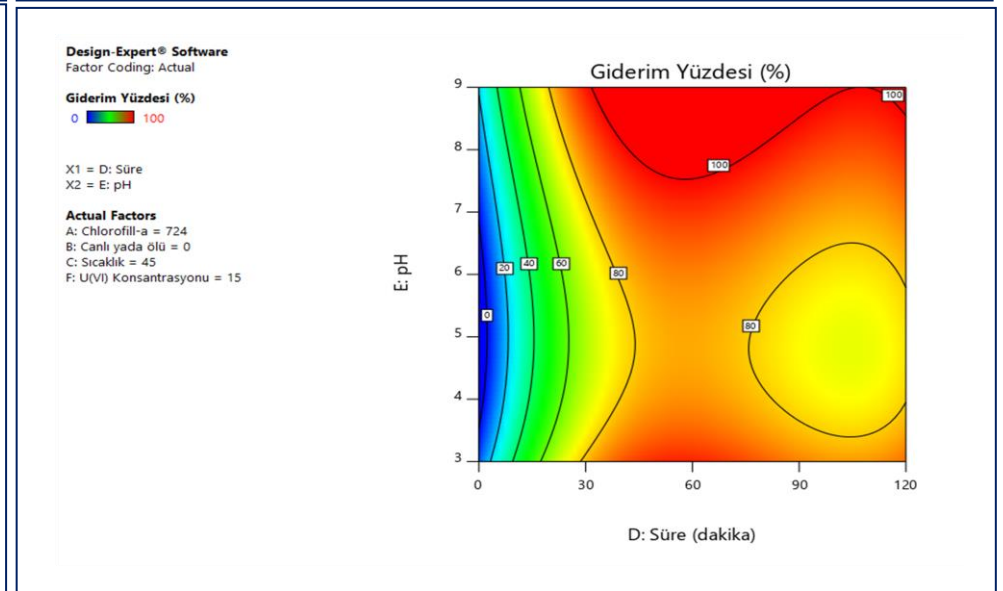
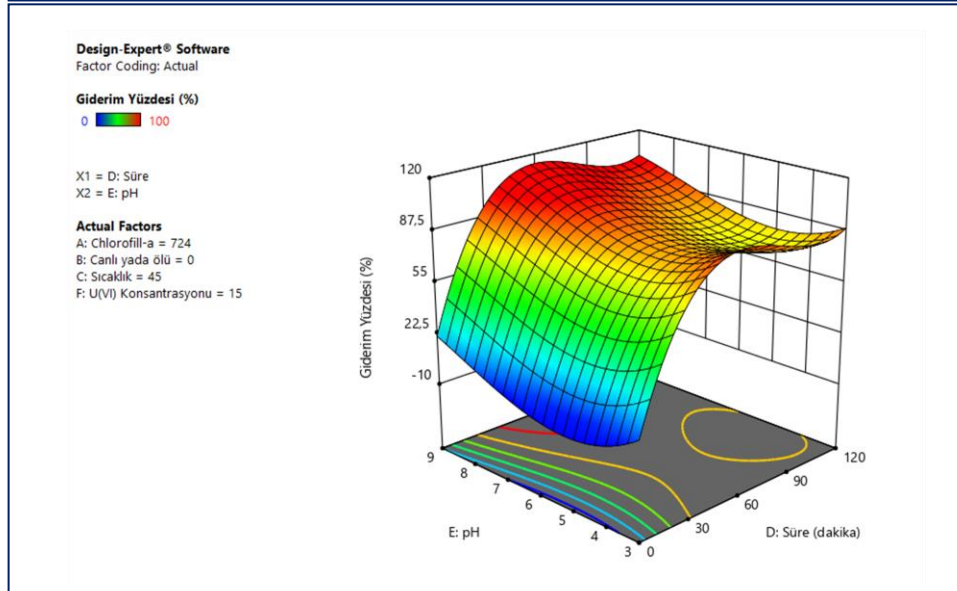
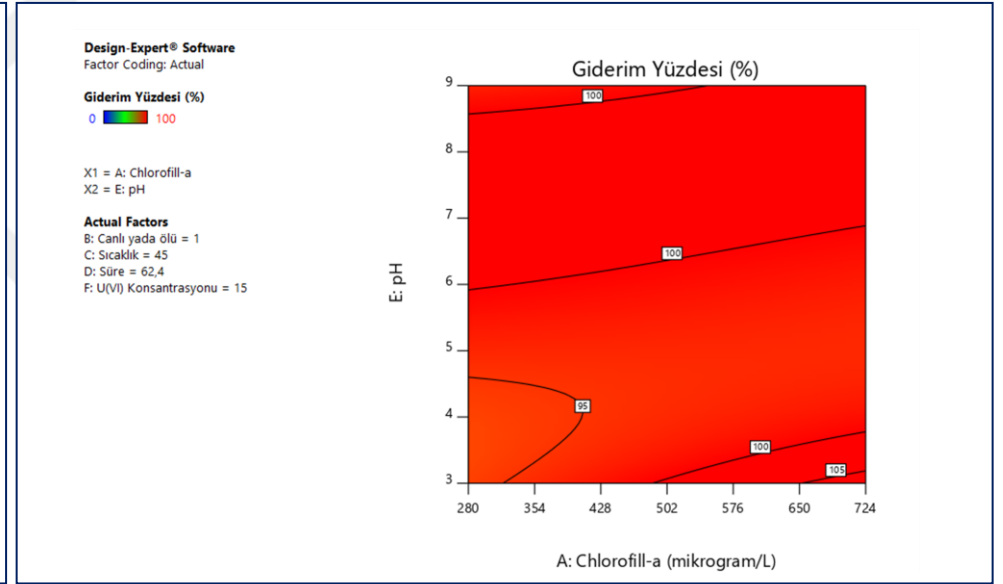
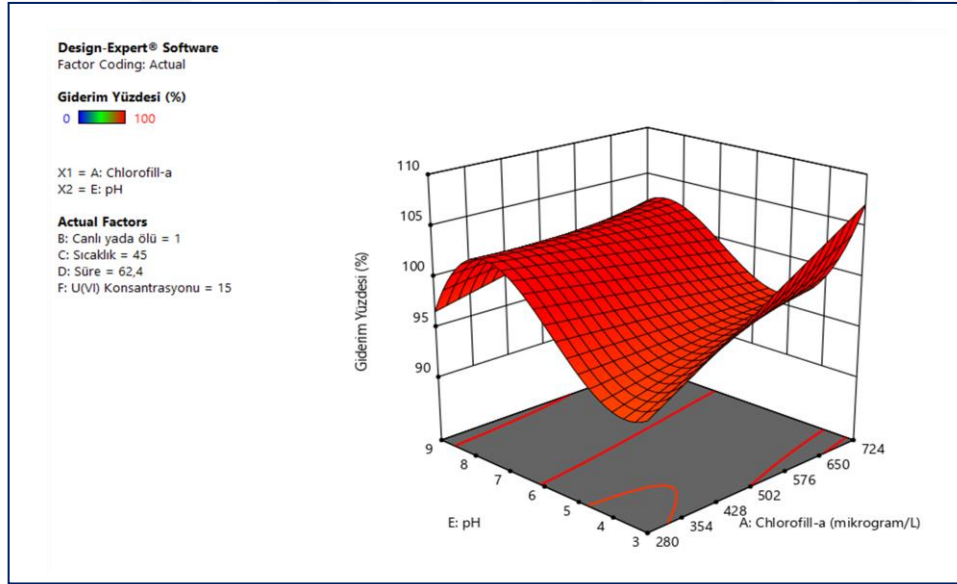
U(VI) Konsantrasyonu - Süre, Sıcaklık - Alg Konsantrasyonu, Sıcaklık - Canlı/Ölü, Canlı/Ölü - Alg Konsantrasyonu grafikleri Şekil 6.37'de verilmektedir. Burada sonuçlar önceki grafiklerden elde edilen sonuçlarla aynı sonuçlar vermektedir.



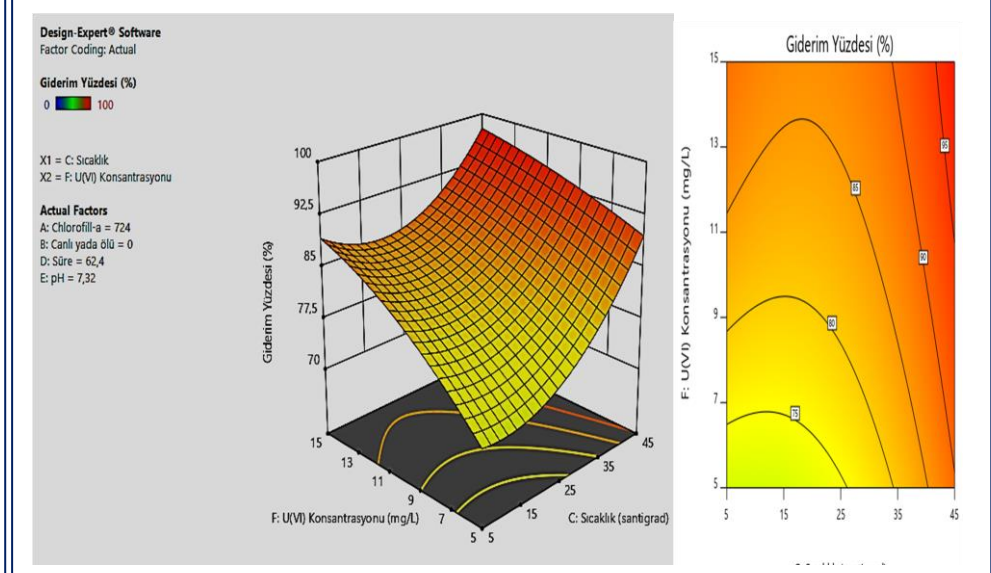
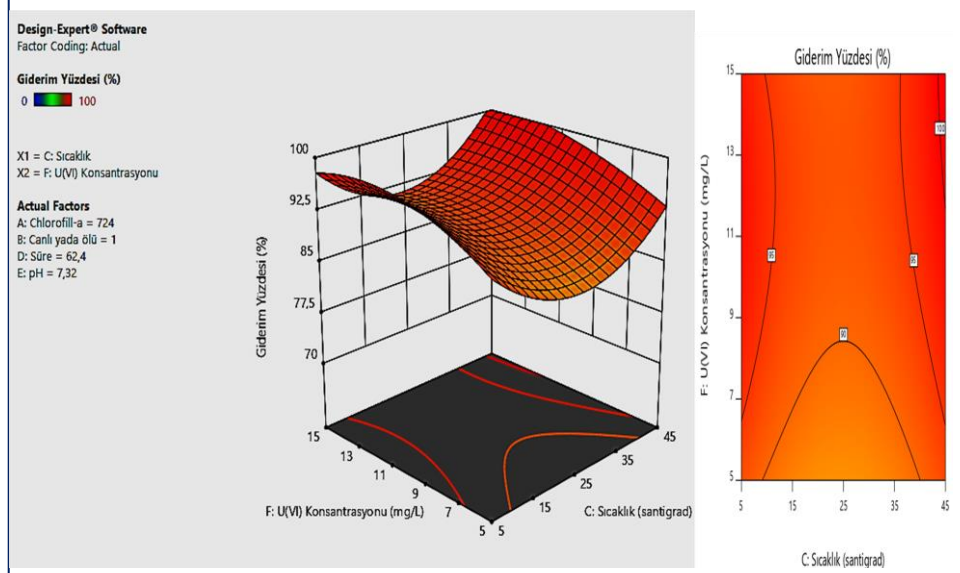
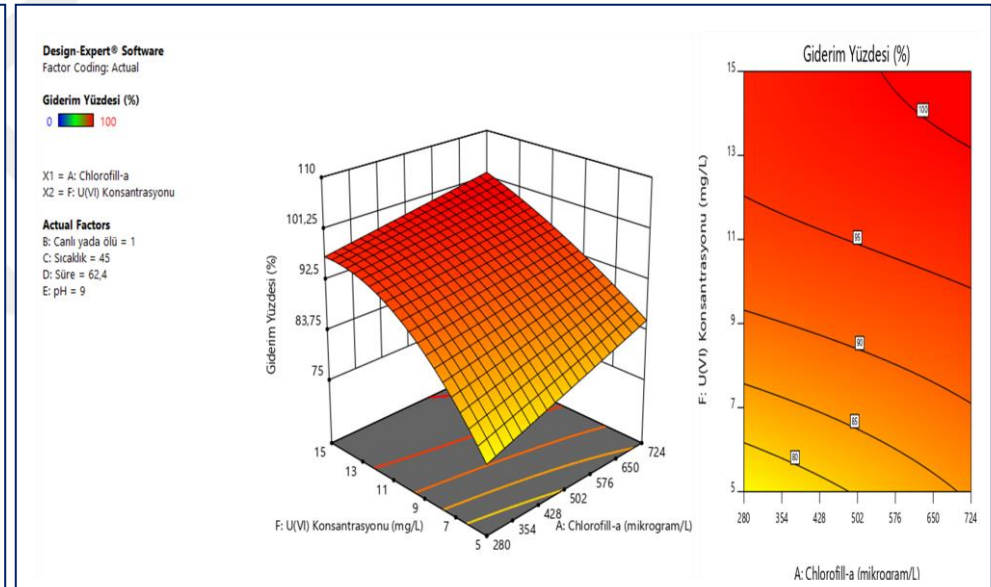
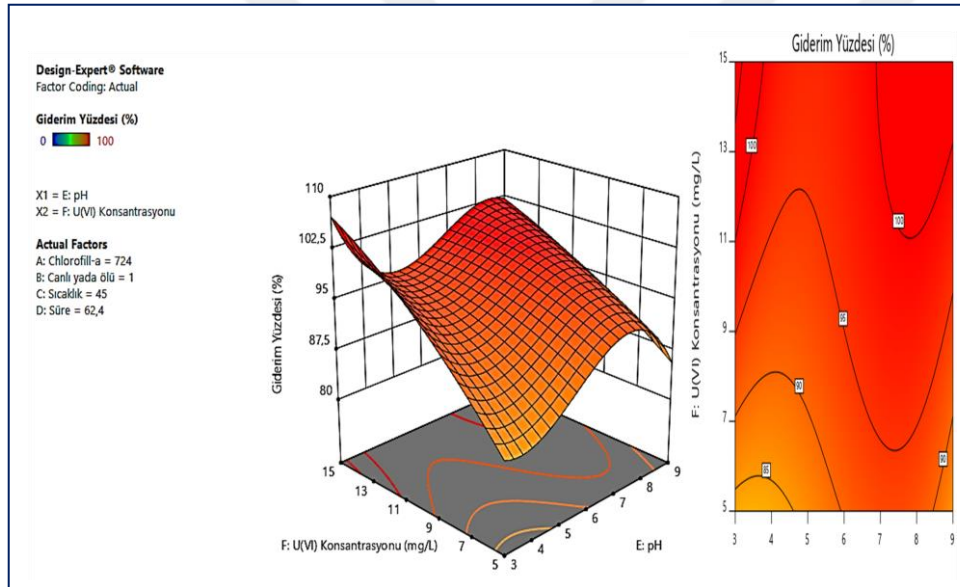
Şekil 6.34. pH-Sıcaklık parametrelerin uranyumun *Scenedesmus* ile giderim yüzdesine olan etkilerini gösteren 3D-grafikleri: a) optimal şartlar, b) optimal şart ama U(VI) 5mg/L

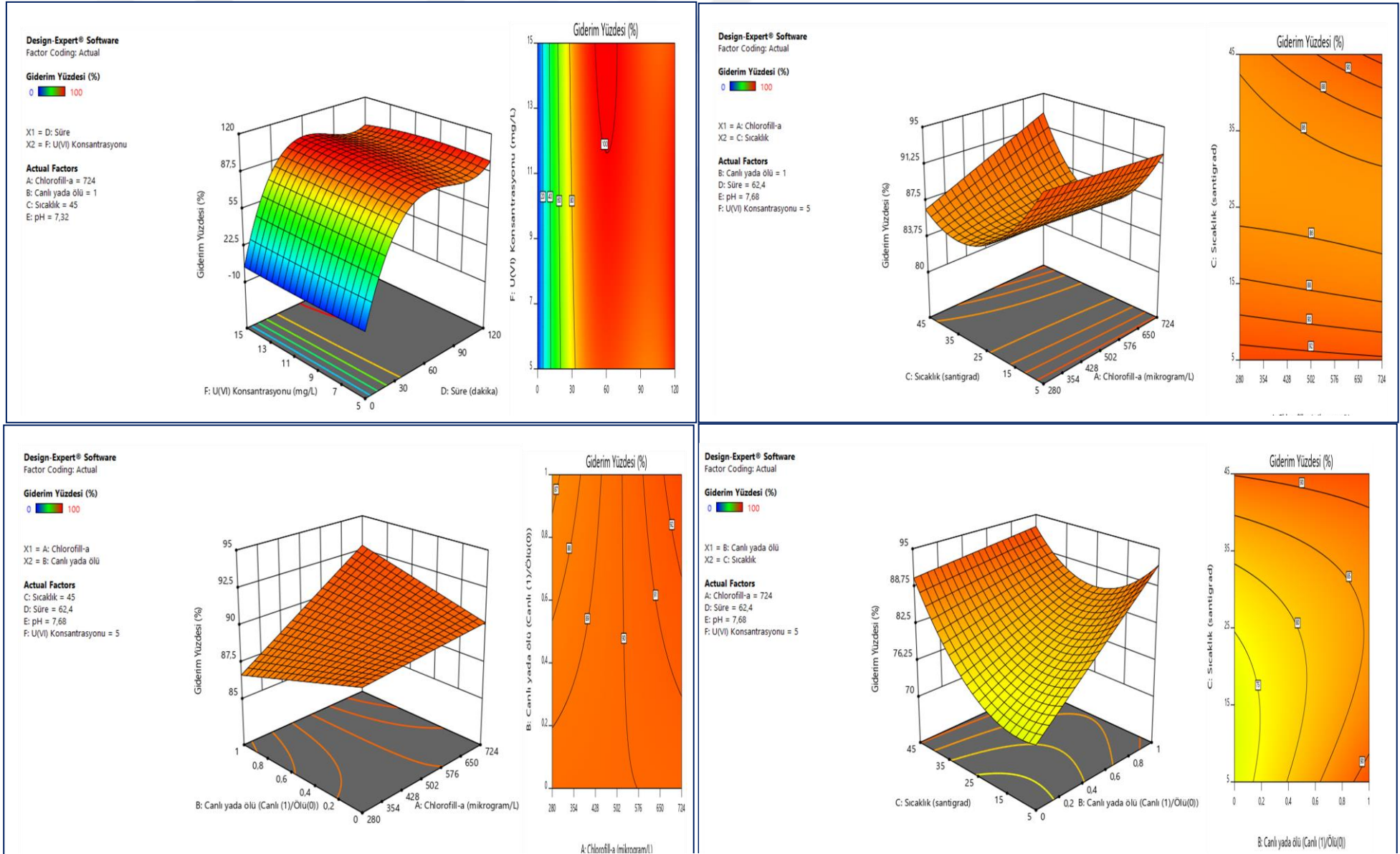


Şekil 6.35. pH-Canlı yada ölü (alg) Parametrelerin U(VI)'un *Scenedesmus* ile Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-grafikleri



Şekil 6.36. U(VI)-pH/U(VI)-Alg Konsantrasyonu/U(VI)-Sıcaklık parametrelerin uranyumun *Scenedesmus* ile giderim yüzdesine olan etkilerini gösteren 3D-grafikler





Şekil 6.37. U(VI) Konsantrasyonu-Süre, Sıcaklık-Alg Konsantrasyonu, Sıcaklık-Canlı/Ölü, Canlı/Ölü-Alg Konsantrasyonu Grafikleri

Bağımsız değişkenler için optimum koşullar ve beklenen yanıt değerleri aşağıdaki gibi hesaplanmıştır: 6-8 pH değeri, mikroalg konsantrasyonu 115.94mg/L, canlı mikroalg türü, 15mg maksimum uranyum konsantrasyonu, 45°C sıcaklık ve temas süresi 62,4 dakika.

6.3.7. Adsorpsiyon İzoterminin Hesaplama Sonuçları

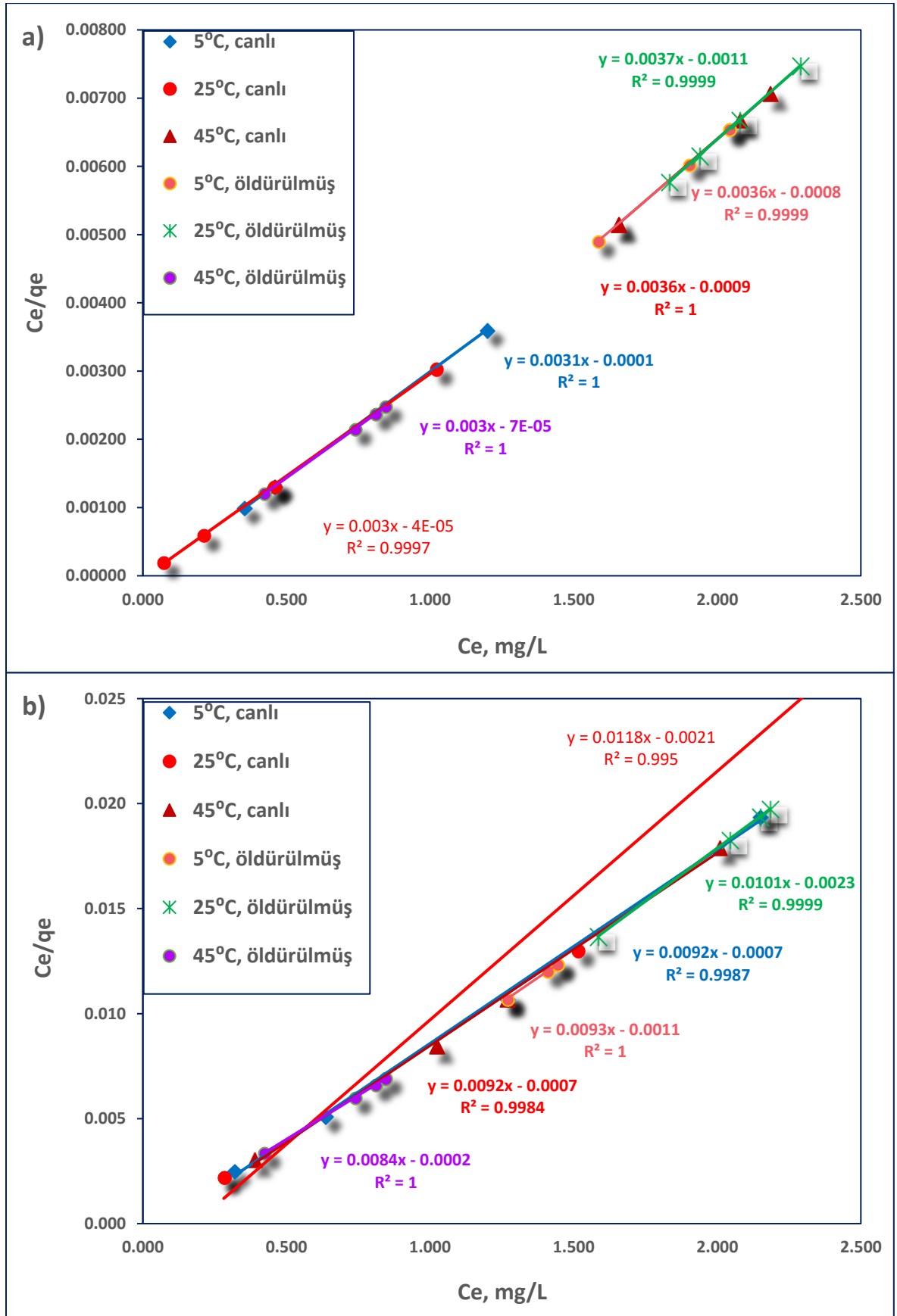
Farklı sıcaklıklar (5°C, 25° ve 45°) için ayrı ayrı olarak deneylerde izoterm hesaplamalar farklı zamanlarda (30dak., 60dak., 90 dak. ve 120dak.) yapılmıştır. Farklı pH değerlerinde (pH 3, 5, 7 ve 9), alg konsantrasyonlarında (41.54mg/L ve 115.94mg/L), uranyum konsantrasyonlarında, canlı ve ölü algler, giderim süresi boyunca alglerin birim kütlelerine adsorpladığı uranyum miktarları EK-1’de ve optimal şartlardakiler ise Çizelge 6.10’da verilmiştir. Çizelgeden görüldüğü gibi sıcaklık ve uranyum konsantrasyonları arttıkça alglerin adsorpsiyon kapasiteleri de artmaktadır. En yüksek adsorpsiyon kapasiteleri burada pH 7 ve pH 9’da görülmektedir. Adsorpsiyon kapasiteleri tüm pH değerlerinde ve sıcaklıklarda canlı alglerde ölü alglere nazaran daha yüksek olduğunu da görebiliriz. Mikroalgler canlıyken çoğaldıkları ve hareket halinde oldukları için uranyumla birim yüzeyinin buluşma olasılığı daha yüksek olmaktadır, bu yüzden canlı mikroalglerde ölülerinkine nazaran daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi gözlenmektedir. Uranyum konsantrasyonu arttıkça mikroalgle buluşma olasılığı da yüksek olduğu için daha yüksek konsantrasyonlarda daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi elde edilmektedir.

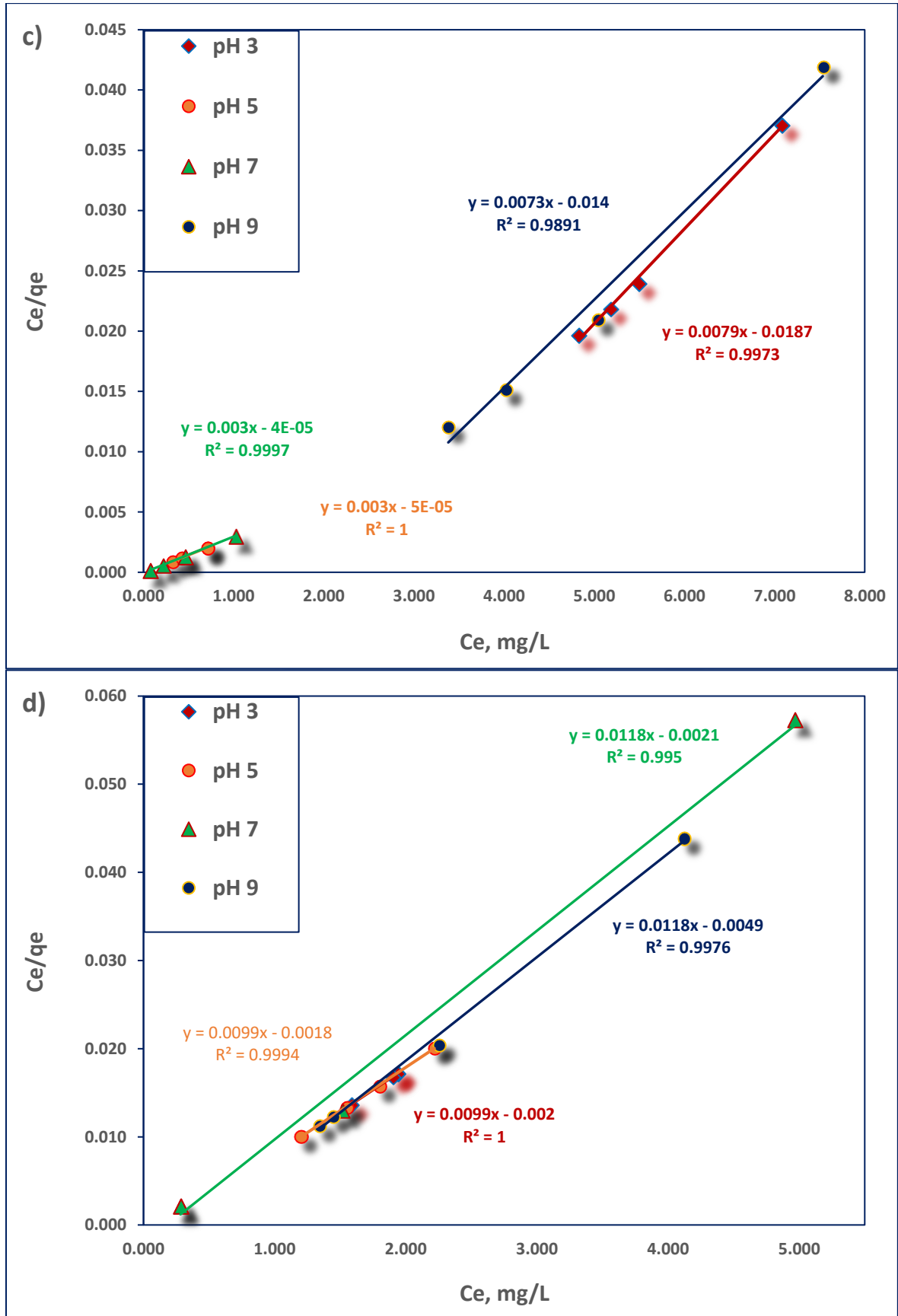
6.3.7.1. Langmuir İzotermi Hesaplama Sonuçları

Birinci set deneylerde farklı reaktörlerdeki Lagmuir İzoterm hesaplama sonuçları Çizelge 6.10 ve Şekil 6.38’de gösterildiği gibidir. Çizelgede görüldüğü gibi adsorbanın (*Scenedesmus sp.* mikroalgleri) maksimum adsorplama kapasitesini gösteren ‘a’ sabitinin en yüksek değerleri uranyumun en yüksek konsantrasyonunda (15mg/L), pH 7’de, canlı alglerde 25°C sıcaklığında ve ölü alglerde 45°C sıcaklığında ve daha düşük alg konsantrasyonu olan reaktörlerdedir. ‘a’ sabitinin en düşük değeri ise tersine ölü alglerin ve en düşük uranyumun (5mg/L), olduğu en düşük sıcaklıkta (°5C) görülmektedir. Adsorpsiyon kuvvetini gösteren ‘b’ sabitinin en yüksek değeri canlı *Scenedesmus sp.* mikroalgleri ve 5mg/L uranyum bulunan reaktörde ve en düşük değeri de ölü alglerin ve 15mg/L uranyumun bulunduğu reaktörlerde görülmektedir. Reaktörlerde adsorpsiyonun elverişli olup olmadığını belirlemek için ‘R’ sabitine bakıldığında, tüm koşullarda adsorpsiyonun elverişli olduğunu görebiliriz. Yani $0 < R < 1$ olduğu için adsorpsiyon elverişlidir.

Çizelge 6.10. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Deneylerde q_e (mg/g) ve Lagmuir İzoterm Sabitleri: a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi

a) Optimal Şartlarda (pH 7, süre 60dak., 15mgU/L) <u>SICAKLIĞA GÖRE</u> Lagmuir İzoterm Sabitlerinin Değişimi										
	41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikrolgleriyle					115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				
Sıcaklık, canlı/ölü	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2
5°C, canlı	353	323	31.000	0.002	1.0000	124	109	13.143	0.005	0.9987
25°C, canlı	350	333	7.500	0.009	1.0000	116	85	5.619	0.012	0.9950
45°C, canlı	309	278	4.000	0.016	0.9997	118	109	13.143	0.005	0.9984
5°C, ısıyla öldürülmüş	323	278	4.500	0.015	0.9999	117	108	8.455	0.008	1.0000
25°C, ısıyla öldürülmüş	306	270	3.364	0.019	0.9999	116	99	4.391	0.015	0.9999
45°C, ısıyla öldürülmüş	351	333	42.854	0.002	1.0000	126	119	42.000	0.002	1.0000
b) Optimal Şartlarda (25°C, canlı alg, süre 60dak, 15mgU/L.) <u>pH'a GÖRE</u> Lagmuir İzoterm Sabitlerinin Değişimi										
	41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle					115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				
pH	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2
pH 3	191	127	0.422	0.136	0.9973	113	101	4.950	0.013	1.0000
pH 5	344	333	60.000	0.001	1.0000	119	101	505.000	0.012	0.9994
pH 7	350	333	75.000	0.001	0.9997	116	85	5.619	0.012	0.9950
pH 9	240	137	0.521	0.113	0.9891	110	85	2.408	0.027	0.9976





Şekil 6.38. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Lagmiur İzoterm Grafikleri: a) 41.54mg/l ve b) 115.94mg/L Adosrbans İçeren Farklı Sıcaklıklarda, c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Deneyler için

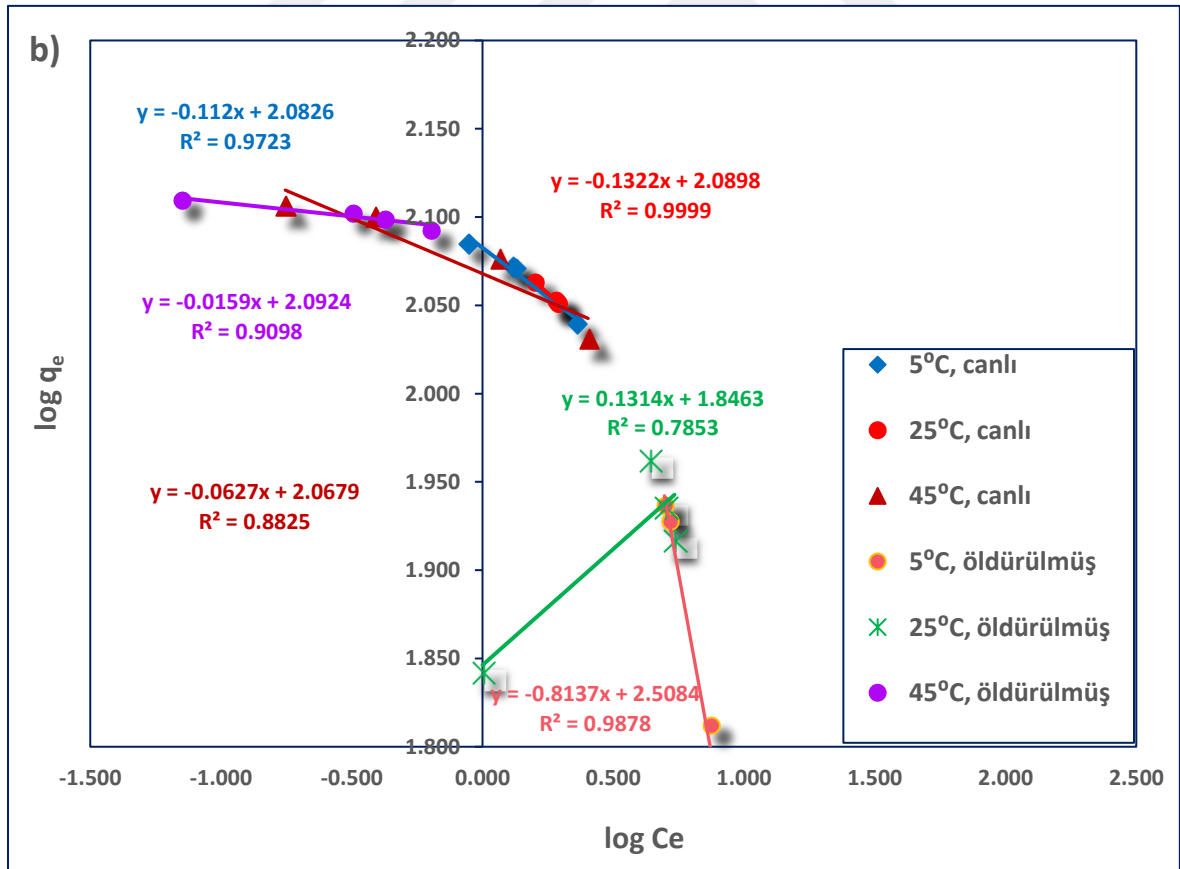
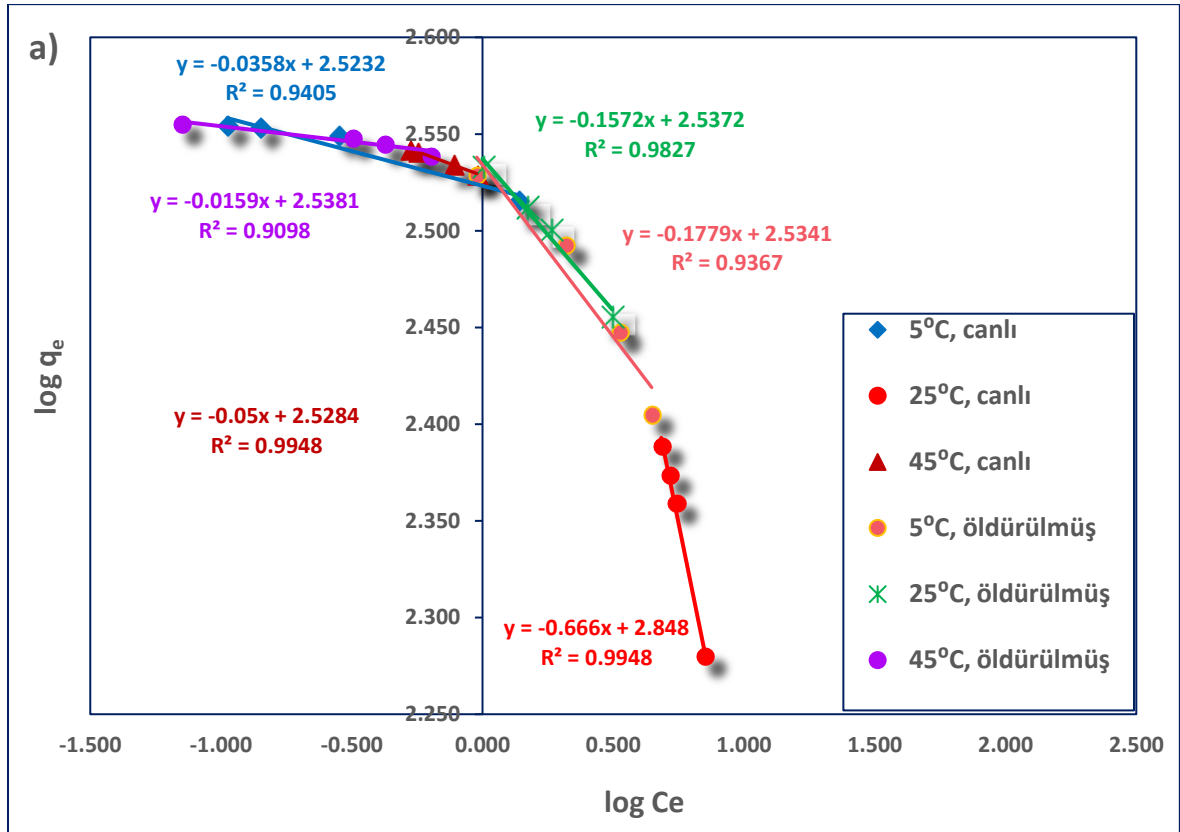
6.3.7.2. Freundlich İzotermi Hesaplama Sonuçları

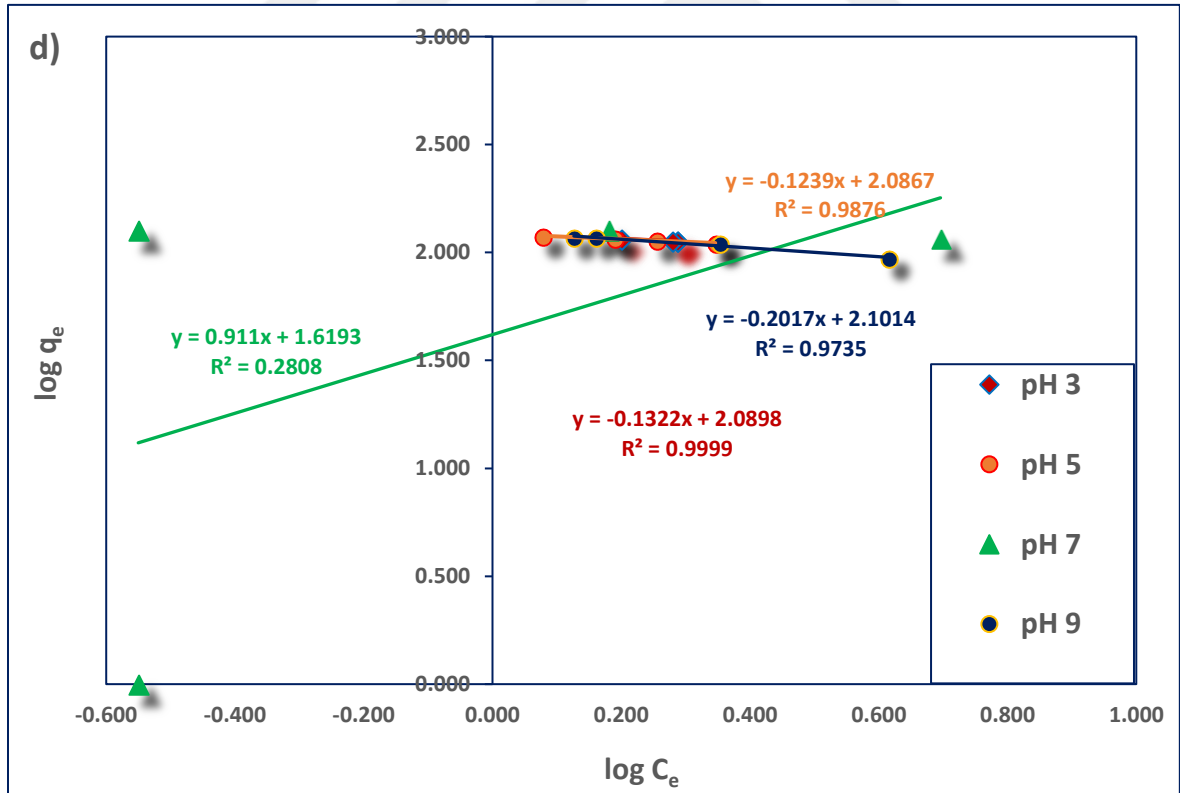
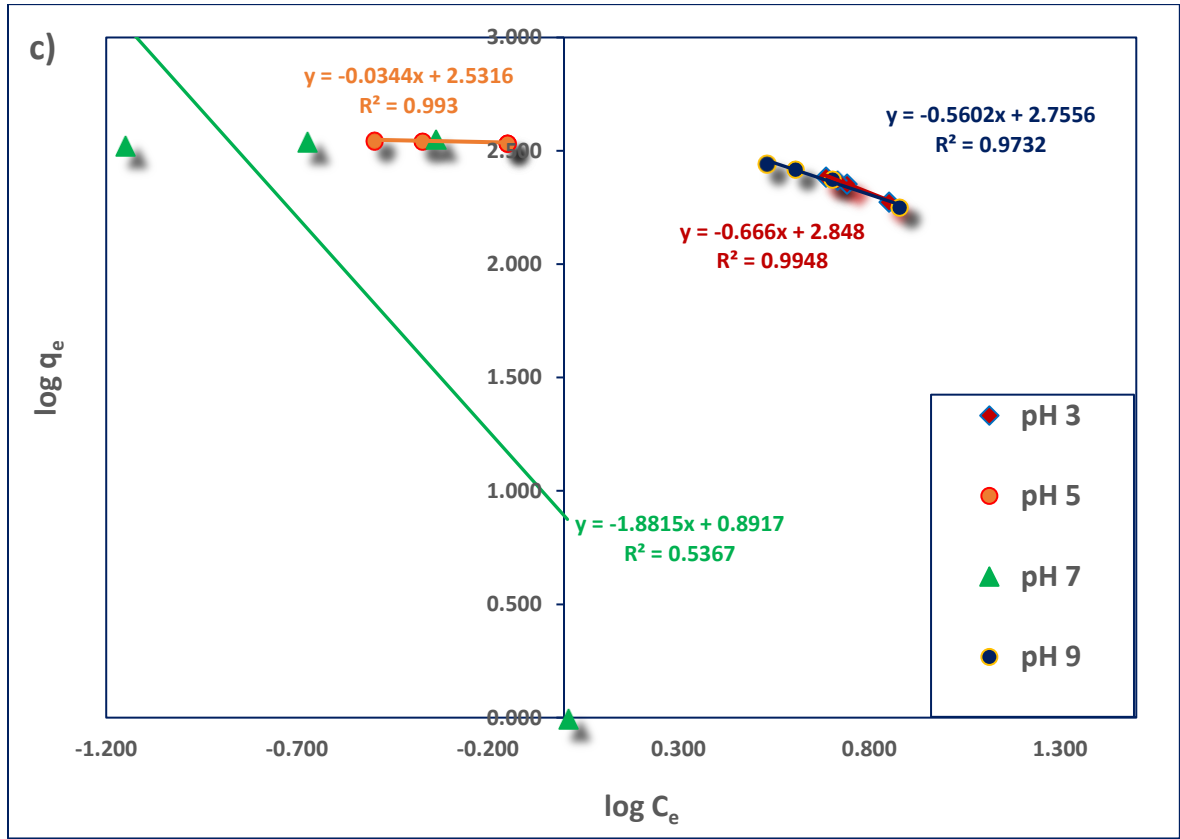
Scenedesmus sp. mikroalgleri ile sudaki uranyumun giderim çalışmalarının sonuçları Freundlich izotermi ile ifadesi incelenmiş ve Çizelge 6.11 ve Şekil 6.39'da ifade edilmiştir. Adsorpsiyonun yoğunluğunu gösteren 'n' sabitine göre en iyi adsorpsiyon koşulları: 115.95mg/L alg ile - 25°C ve pH 7'de; 41.54mg/L mikroalg ile de - 25°C/canlı ve ısıyla öldürülmüş ve pH 7'de elde edilmiştir. Daha önce de belirtildiği gibi, 'K_F'sabitinin yüksek değerleri adsorban ile adsorplanan maddenin birbirlerine yakınlığının oldukça yüksek olduğunun göstergesidir. Burada çizelgeden görebildiğimiz gibi tüm reaktörlerde bu sabitin değerleri çok yüksektir. Yani bu reaktörlerde adsorban (*Scenedesmus sp.*) ve adsorplananın (uranyum) birbirlerine olan yakınlığı oldukça yüksektir.

R² değerlerine bakılırsa pH 7 dışında tüm pH ve sıcaklık değerleri için Freundlich izotermi uygundur. Ancak Lagmuir İzotermi ile kıyaslandığında R² değeri Lagmuir izotermine daha yüksek olmuştur, dolayısıyla *Scenedesmus sp.* ile uranyum giderimi Lagmuir İzotermine daha uygundur. Bu da giderimin tek tabakada gerçekleştiğini göstermektedir.

Çizelge 6.11. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Deneylerde Freunlich İzoterm Sabitleri (Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L): a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi

a) Optimal Şartlarda (pH 3, süre 60dak., 15mgU/L) SICAKLIĞA GÖRE Freundlich İzoterm Sabitlerinin Değişimi								
	41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle			
Sıcaklık, canlı/ölü	q_e (mg/g)	K_F	n	R²	q_e (mg/g)	K_F	n	R²
5°C, canlı	353	334	27,933	0,9405	124	121	8,929	0,9723
25°C, canlı	350	705	1,502	0,9948	116	123	7,564	0,9999
45°C, canlı	309	338	20,000	0,9948	118	117	15,949	0,8825
5°C, ısıyla öldürülmüş	323	342	5,621	0,9367	117	322	5,444	0,9878
25°C, ısıyla öldürülmüş	306	345	6,361	0,9827	116	70	7,610	0,7853
45°C, ısıyla öldürülmüş	351	345	62,893	0,9098	126	124	62,893	0,9098
b) Optimal Şartlarda (25°C, canlı alg, süre 60dak, 15mgU/L.) pH'a GÖRE Freundlich İzoterm Sabitlerinin Değişimi								
	41.54 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle				115.94 mg/L <i>Scenedesmus sp.</i> Mikroalgleriyle			
pH	q_e (mg/g)	K_F	n	R²	q_e (mg/g)	K_F	n	R²
pH 3	191	705	1,502	0,9948	113	123	7,564	0,9999
pH 5	344	340	29,070	0,9930	119	122	8,071	0,9876
pH 7	350	8	0,531	0,5367	116	42	1,098	0,2808
pH 9	240	570	1,785	0,9732	110	126	4,958	0,9735





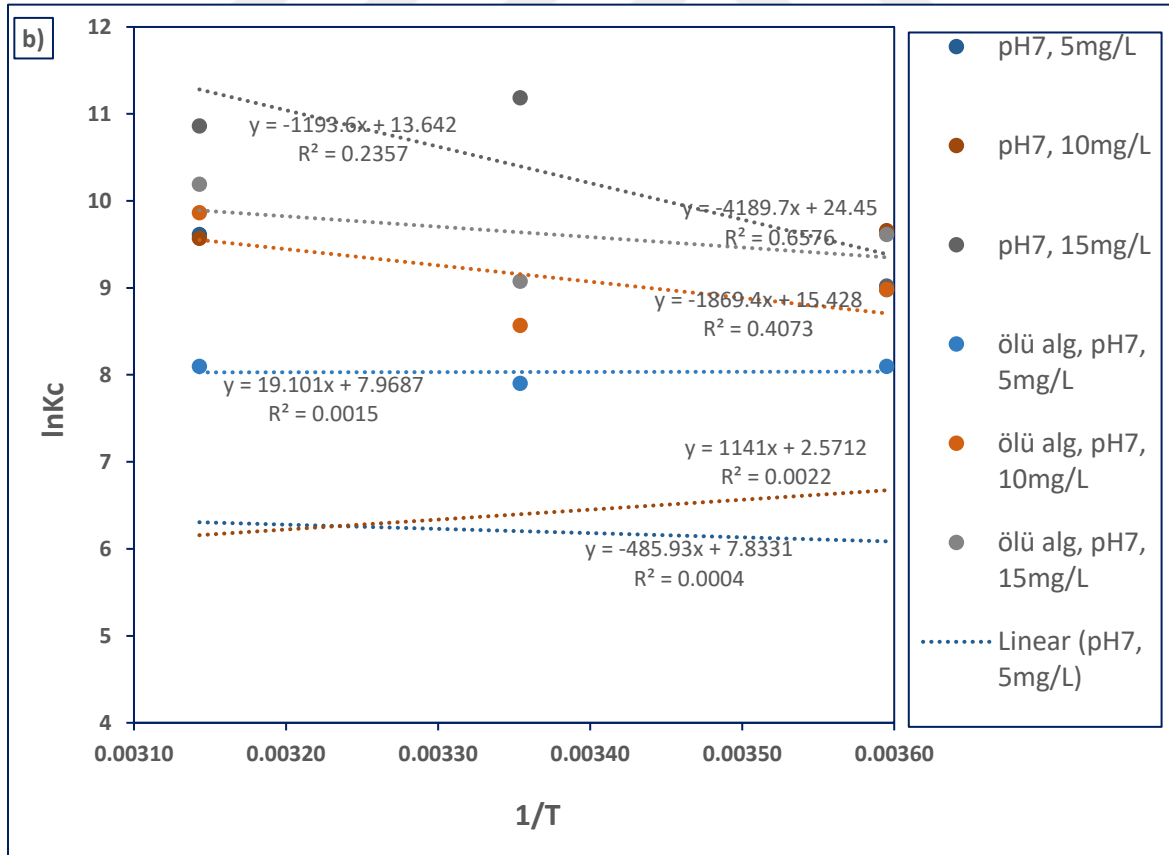
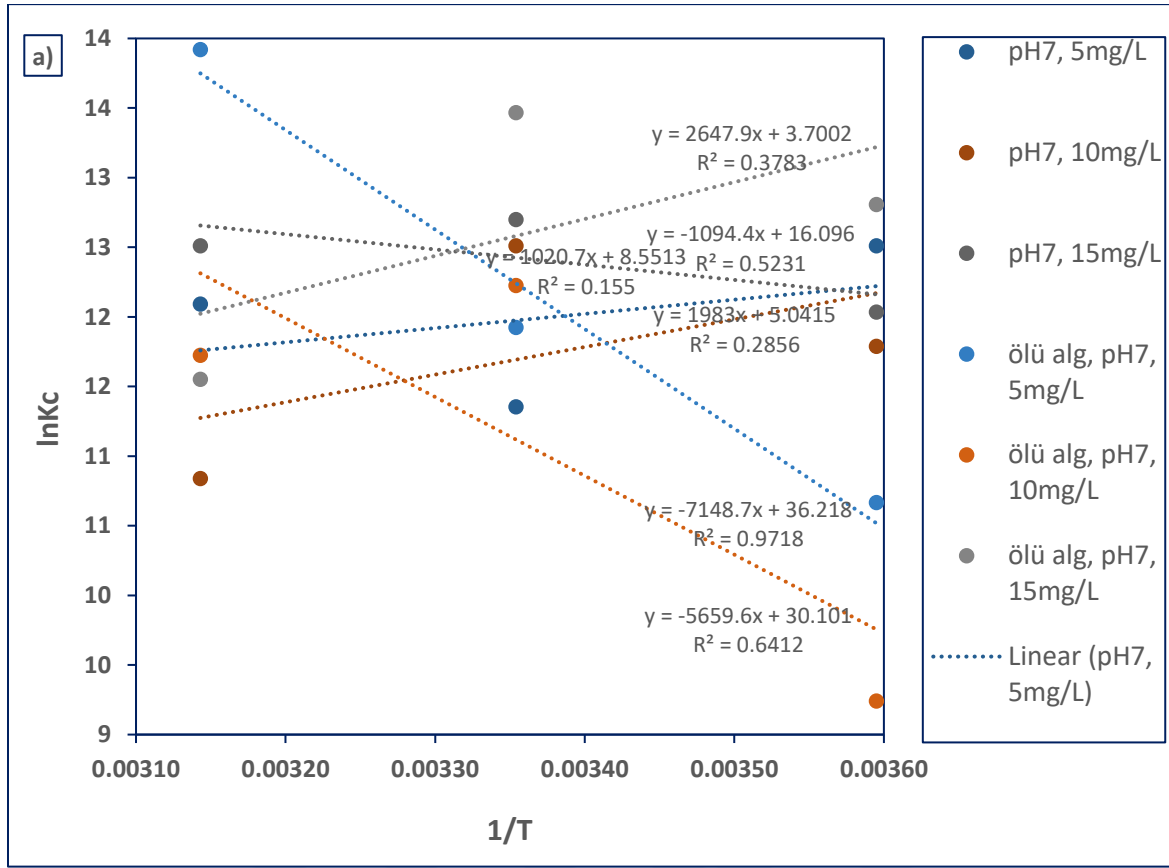
Şekil 6.39. *Scenedesmus sp.* Mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde Freundlich İzoterm Eğrileri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklarda, c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Sırasıyla 41.54mg/l ve 115.94mg/L Mikroalg ile

6.3.8. Termodinamik Hesaplamaların Sonuçları

Scenedesmus sp. mikroalgleriyle yapılan deneylerde termodinamik hesaplama sonuçları elde edilen Serbest Gibbs enerji değerleri Çizelge 6.12’de verilmektedir. Bu çizelgeden görüldüğü gibi Serbest Gibbs enerji değerleri tüm reaktörler için eksi değerler vermektedir. Bu da adsorplanma reaksiyonunun kendi kendinde gerçekleşebildiğini gösterir. Entalpi (ΔH°) değerleri parametrelere bağlı olmaksızın bazı durumlarda negatif, yani ekzotermik iken bazı durumlarda ise pozitif, yani endotermik olduğunu görebiliriz. Bu da uranyumun algerle adsorpsiyonu hem enerji tüketici hem de enerji üretici olabileceğini göstermektedir. Yani bazı durumlarda sıcaklığın artırılması giderim yüzdesini arttırırken, bazı durumlarda tersine azaltılırken giderim de artabilmektedir. Ama burada çalışmaların çoğunda enerji tükettiği (ekzotermik) için sıcaklık arttırılınca giderim de artmaktadır. Burada ΔS° ’nin değerlerinin yüksek olması da çözelti ara yüzeyindeki rastlantısallığın arttığını yansıtmaktadır (Çizelge 6.12 ve Şekil 6.40).

Çizelge 6.12. *Scenedesmus* sp. Mikrolgleriyle Termodinamik Hesaplama Sonuçları (pH 7, Süre 120 Dakika, Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L)

Canlı/ölü Mikroalg	Sabitler	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
		5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L
42,54 mg/L <i>Scenedesmus</i> sp. Mikroalg ile													
Canlı <i>Scenedesmus</i> sp.	ΔH^o	-16764	-2740	2293	3086	2241	-2603	4143	-1308	3044	-1220	1462	-2512
	ΔS^o	61	18	2	0	3	19	3	15	0	13	5	18
	ΔG^o	-5319	-6073	-6177	-6121	-5957	-6187	-5957	-6331	-6017	0	-6096	-6299
Ölü <i>Scenedesmus</i> sp.	ΔH^o	-6502	-25516	-6608	2367	-2443	-188	-3847	-2681	-2414	-4586	-1763	2290
	ΔS^o	30	93	32	2	17	9	22	19	18	24	16	3
	ΔG^o	0	-6418	-6455	-5739	-5916	-5807	-5974	-6162	-6244	-5974	-6121	-6198
115,94 mg/L <i>Scenedesmus</i> sp. Mikroalg ile													
Canlı <i>Scenedesmus</i> sp.	ΔH^o	-1768	-4676	1597	-2364	-4430	-3660	-486	1141	-4190	-5764	-740	-8422
	ΔS^o	14	25	4	17	24	21	8	3	24	28	11	39
	ΔG^o	-4001	-4665	-3494	-3808	-3900	-3459	-4001	-3974	-4643	0	-3325	-5334
Ölü <i>Scenedesmus</i> sp.	ΔH^o	-4643	-6841	-6841	-2281	-3294	-2809	19	-1869	-1194	-4840	-261	-821
	ΔS^o	24	32	32	15	19	17	8	15	14	24	10	13
	ΔG^o	0	-4665	-4735	-3136	-3585	-3314	-2926	-4144	-4317	-3722	-4055	-4220

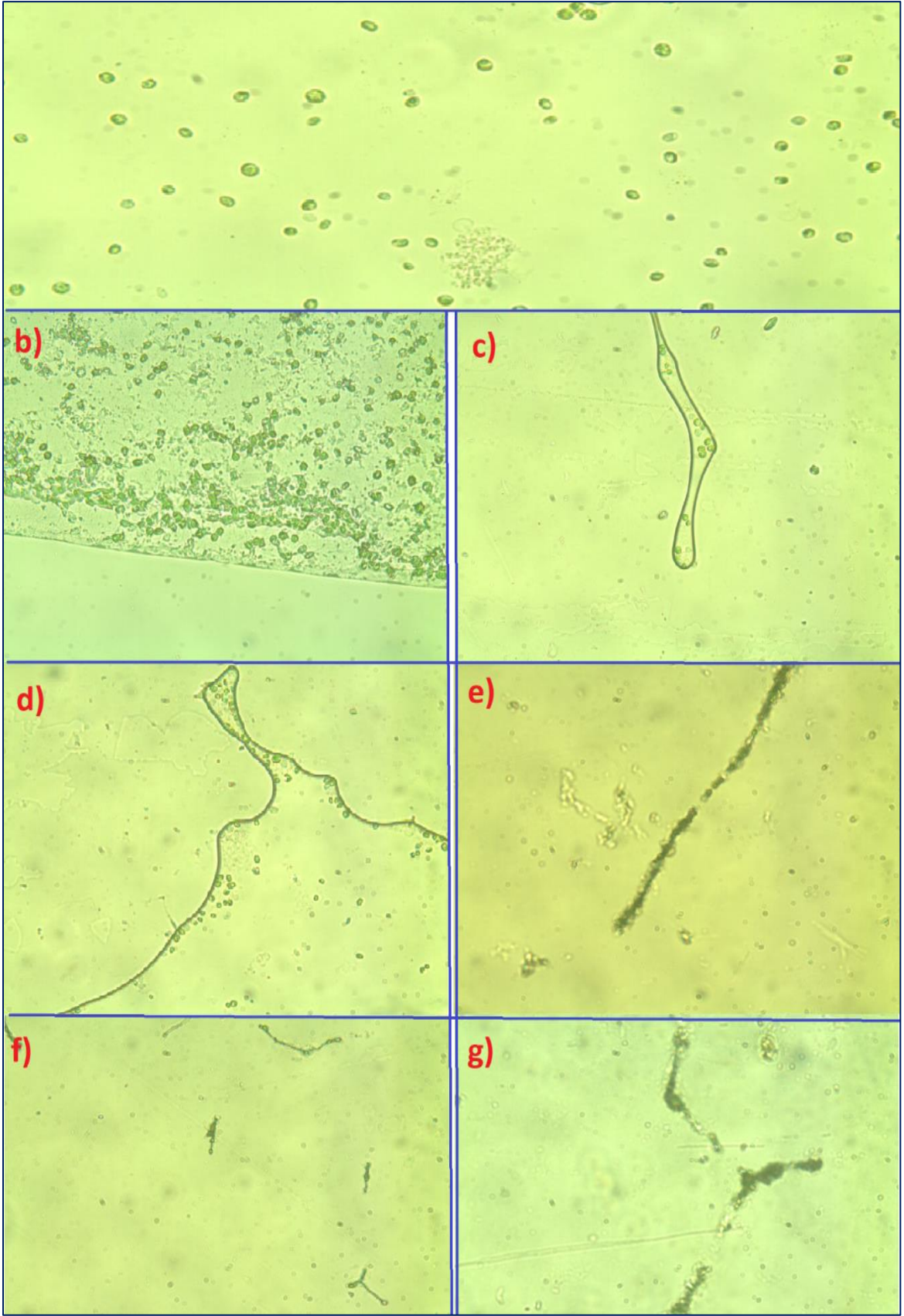


Şekil 6.40. Uranyumun *Scenedesmus sp.* Mikrolgleriyle Biyosorpsiyonunun Termodinamik Modeli: a) 41.54mg/l ve b) 115.94mg/L Mikroalg ile

6.3.9. *Scenedesmus sp.* Mikroalglerinin Değişiminin Mikroskop Görüntüleri

Çalışmaların sonunda farklı konsantrasyonlarda uranyum içeren aerobik kesikli reaktörlerden örnek alınarak LEICA DFC280 mikroskobu ile 40x büyütme ile *Scenedesmus sp.* fotoğrafları çekilmiştir (Şekil 6.41). Şekilde görüldüğü gibi uranyum olmayan sadece *Scenedesmus sp.* mikroalgleri içeren örnekte algler ayrı ayrı hücreler halindedir. Uranyum mevcut olan örneklerde ise algler topaklanmış haldedirler ve uranyum konsantrasyonu arttıkça topaklanma da artmaktadır. Uranyumu adsorplanınca algler ağırlığından dolayı çökelirken birbiriyle topaklama oluşturmaktadırlar.





Şekil 6.41. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli reaktörlerde *Scenedesmus sp.* Mikroalglerinin Mikroskop Görüntüleri: a) Uranyum Olmayan, Sadece *Scenedesmus sp.* Olan Örnek, b) ve c) 5mg/L Uranyum İçeren Örnekler, d) ve e) 10mg/L Uranyum İçeren Örnekler, f) ve g) 15mg/L Uranyum İçeren Örnekler

6.4. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Uranyumun Gideriminin Aerobik Deneylerin Sonuç ve Tartışmaları

Chlorella sp. mikroalgleriyle sudaki uranyumun giderimi ile ilgili sınırlı sayıda çalışmalar mevcut olup bunlar genellikle laboratuvar şartlarında öldürülmüş kuru ve ıslak mikroalglerle yapılmıştır [188], [189], [190]. Canlı mikroalgler ise büyüme sırasında (fotosintez) CO₂'nin tüketilmesi sonucunda suyun pH'nı asidikten baziğe (pH 9-10) kadar yükselttiği için uranyumun indirgenerek çökmesine elverişli şartlar yaratmaktadırlar. Bu yüzden bu çalışmada bu mikroalglerin hem canlı hem öldürülmüş ıslak türü kullanılmıştır.

Laboratuvar şartlarında sudaki uranyumun *Chlorella sp.* gideriminin aerobik kesikli çalışmaları detaylı olarak verilmektedir. Sadece tatlı sularda bulanabilen *Chlorella sp.* eski zamanlardan beri besin maddesi olarak kullanılmaktadır. Ayrıca bu tür algler sadece vücudun gereksinim duyduğu besinleri de en üst seviyede sağlamakla kalmayıp, aynı zamanda vücudu zararlı maddelerden de temizlemektedir [191]. Bundan dolayı *Chlorella sp.* algleri içme suların uranyumdan arıtımında en iyi seçeneklerden olarak değerlendirilebilir. Burada *Chlorella sp.* ile sudaki uranyumun arıtımı farklı uranyum ve alg konsantrasyonları, canlı ve ölü alg türleri kullanılarak araştırılmıştır.

Farklı fiziksel ve kimyasal şartlar altında gerçekleştirilen birinci set deneylerin 71.61mg/L konsantrasyonunda *Chlorella sp.* 282.42mg/L konsantrasyonunda *Chlorella sp.* algleri kullanılan çalışmalarda uranyumun değişimi 651nm dalga boyunda ölçülmüş ve standart uranyum konsantrasyonlarından elde edilen değerler kullanılarak interpolasyon yöntemiyle mg/L cinsine çevrilmiştir. Bu kalibrasyon eğrisi Çizelge 6.13'de verilmiştir.

Elde edilen uranyumun gideriminde farklı faktörlerin (farklı pH, sıcaklık, uranyum konsantrasyonu, süre, farklı alg konsantrasyonları) bu giderime etkileri Box-Behnken programı kullanılarak analiz edilmiştir.

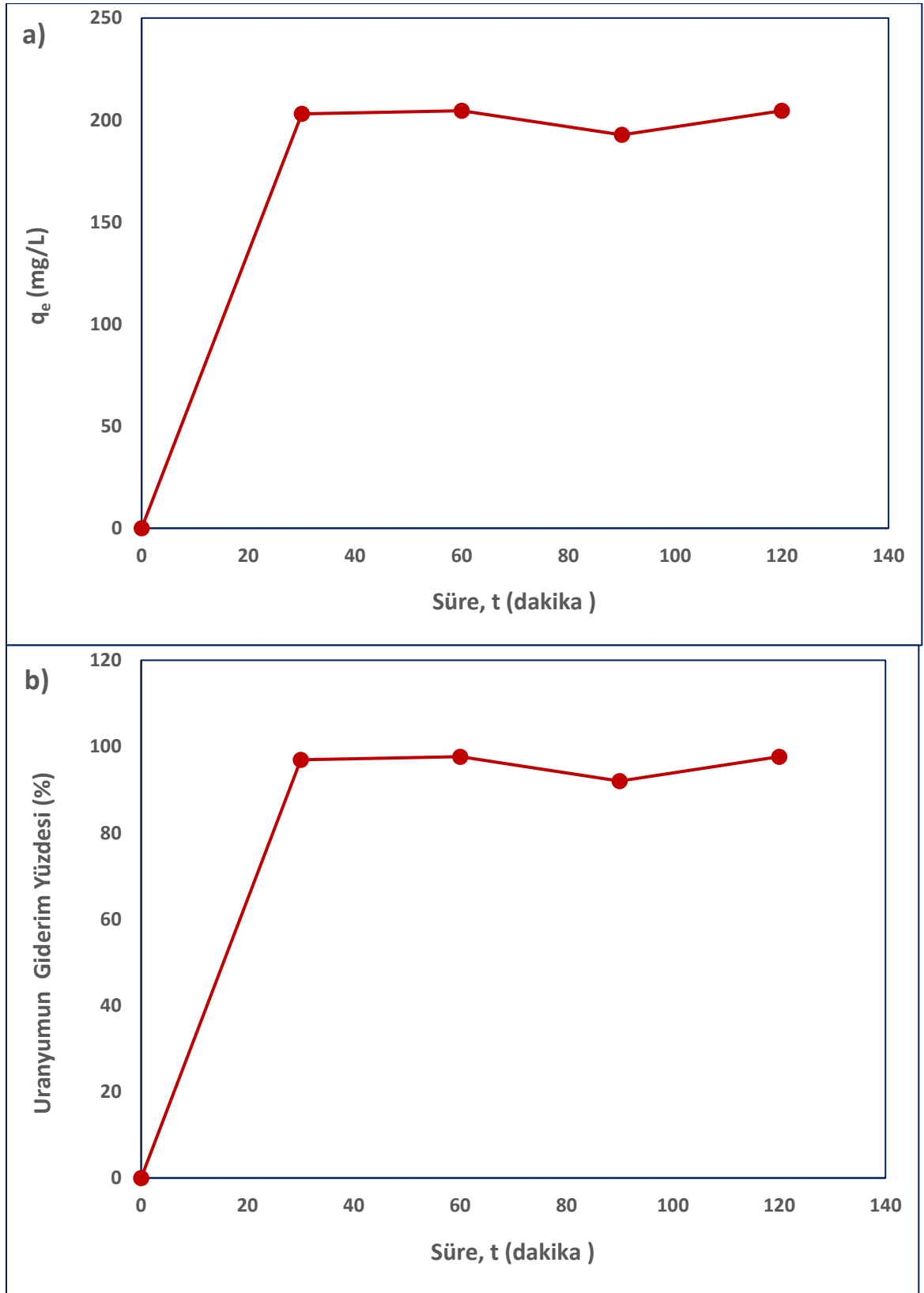
Çizelge 6.13. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Uranyumun Konsantrasyonlarının C_e (mg/L), Giderim Yüzdelерinin (%) ve q_e (mg/g) Değeri nin Değ iř imi: a) Sıcaklı ğ a, b) pH'a G re

a) <u>SICAKLIĐA G�RE</u> Değ iř imi (15mgU/L, pH 7, s�re 60 dakika)								
	71.61mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				282.42mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle			
Sıcaklık, canlı/�l�	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e
5�C, canlı	15	0,246	98	206	15	1,268	99	48
	10	0,775	92	129	10	0,423	96	34
	5	0,845	83	58	5	0,880	82	15
25�C, canlı	15	0,352	98	205	15	2,958	40	52
	10	0,352	96	135	10	0,317	97	34
	5	0,070	99	69	5	0,000	100	18
45�C, canlı	15	0,880	94	197	15	0,528	83	52
	10	0,915	91	127	10	0,704	93	33
	5	0,246	95	66	5	0,810	84	15
5�C, sıcaklıkla �ld�r�lm�ř	15	0,986	93	196	15	3,310	51	49
	10	0,880	91	127	10	3,134	69	24
	5	0,141	97	68	5	2,394	52	9
25�C, ısıyla �ld�r�lm�ř	15	0,310	98	205	15	1,232	59	52
	10	0,269	97	136	10	3,415	66	23
	5	0,165	97	68	5	1,725	65	12
45�C, ısıyla �ld�r�lm�ř	15	1,373	91	190	15	0,528	83	52
	10	0,718	93	130	10	0,704	93	33
	5	1,232	75	53	5	0,810	84	15
b) <u>pH'a G�RE</u> Değ iř imi (15mgU/L, 25�C, canlı alg, s�re 60dakika)								
	71.61 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				282.42 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle			
pH	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e	C_0 (mg/L)	C_e (mg/L)	%	q_e
pH 3	15	1,514	90	188	15	1,549	90	48
	10	1,408	86	120	10	1,232	88	31
	5	2,641	47	33	5	1,866	63	11
pH 5	15	2,817	81	170	15	1,338	91	48
	10	3,063	69	97	10	0,810	92	33
	5	1,303	74	52	5	0,563	89	16
pH 7	15	0,352	98	205	15	0,211	99	52
	10	0,352	96	135	10	0,317	97	34
	5	0,070	99	69	5	0,000	100	18
pH 9	15	1,662	89	186	15	2,958	80	43
	10	0,377	96	134	10	1,866	81	29
	5	1,338	73	51	5	2,993	40	7

6.4.1. Temas Süresinin Etkisi

Temas süresinin etkisini incelemek için 30, 60, 90 ve 120 dakika gibi deney süreleri kullanılmıştır. Farklı pH (3, 5, 7 ve 9), sıcaklık (5°C, 25°C ve 45°C), mikroalg konsantrasyonları (71.61mg/L ve 282.42mg/L), süre (0, 30, 60, 90 ve 120 dakika), uranyum konsantrasyonu (5mgU/L, 10mgU/L ve 15mgU/L) ve canlı/ısıyla öldürülmüş alglerle yapılan bu deneylerde uranyumun *Chlorella sp.* mikroalglerinin üzerine biyosorpsiyonunun (q_e , mg/g) zamana göre değişimi EK-2’de verildiği gibidir.

Seçilen şartlarda (pH 7, 71.61mg/L alg, canlı alg, 25°C, uranyum konsantrasyonu 15mg/L) temas süresinin etkisine bakılmıştır. Şekil 6.42’de görüldüğü gibi, uranyumun *Chlorella sp.* ile adsorpsiyonu 2 fazdan oluşmaktadır: birinci fazda 30 dakikaya kadar süre arttıkça adsorpsiyon da artmaktadır, ikinci fazda ise adsorpsiyon az çok değişikliklerle sabit olarak devam etmektedir. Uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleriyle giderim yüzdesinin grafiğine bakılırsa uranyumun, mikroalglerin birim yüzeyine adsorplanması grafiği ile benzer sonuç vermektedir. Adsorpsiyon ilk 30 dakikada tamamlanmıştır, ancak 60 dakikada dengeye ulaşılmıştır (Şekil 6.42).

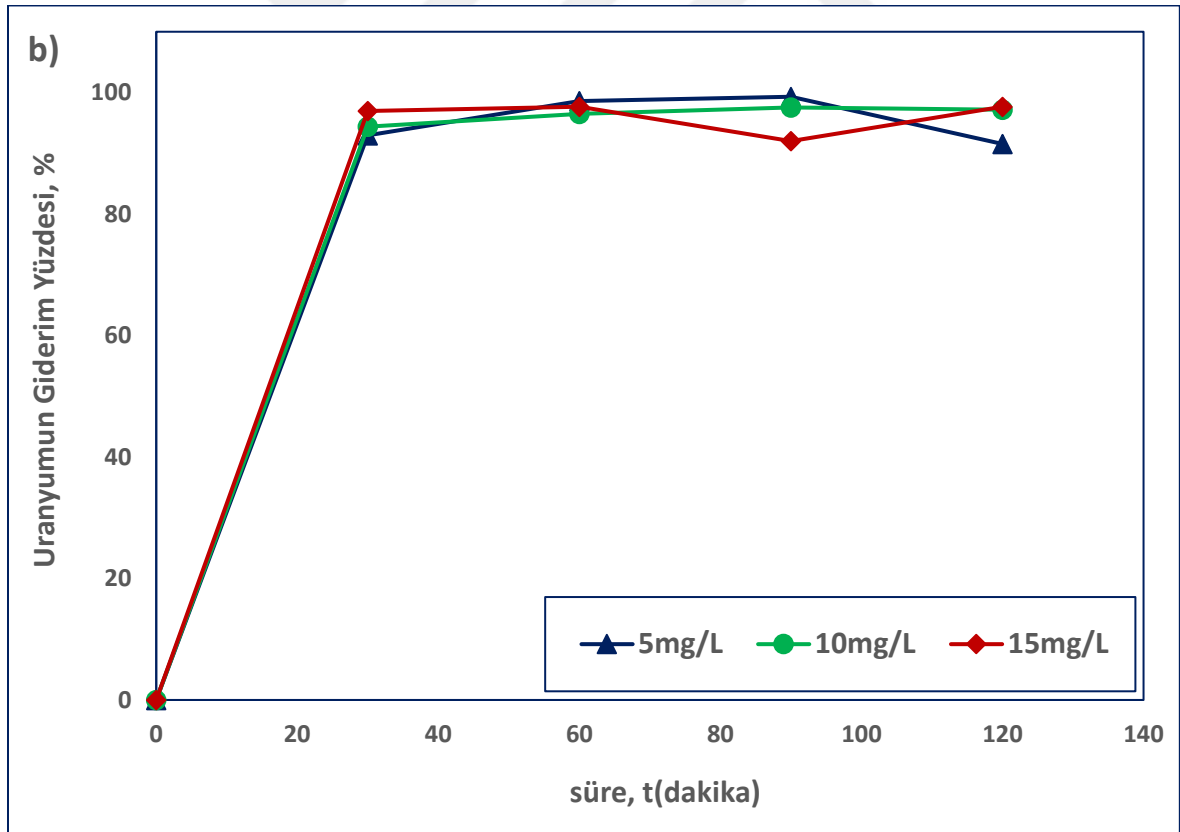
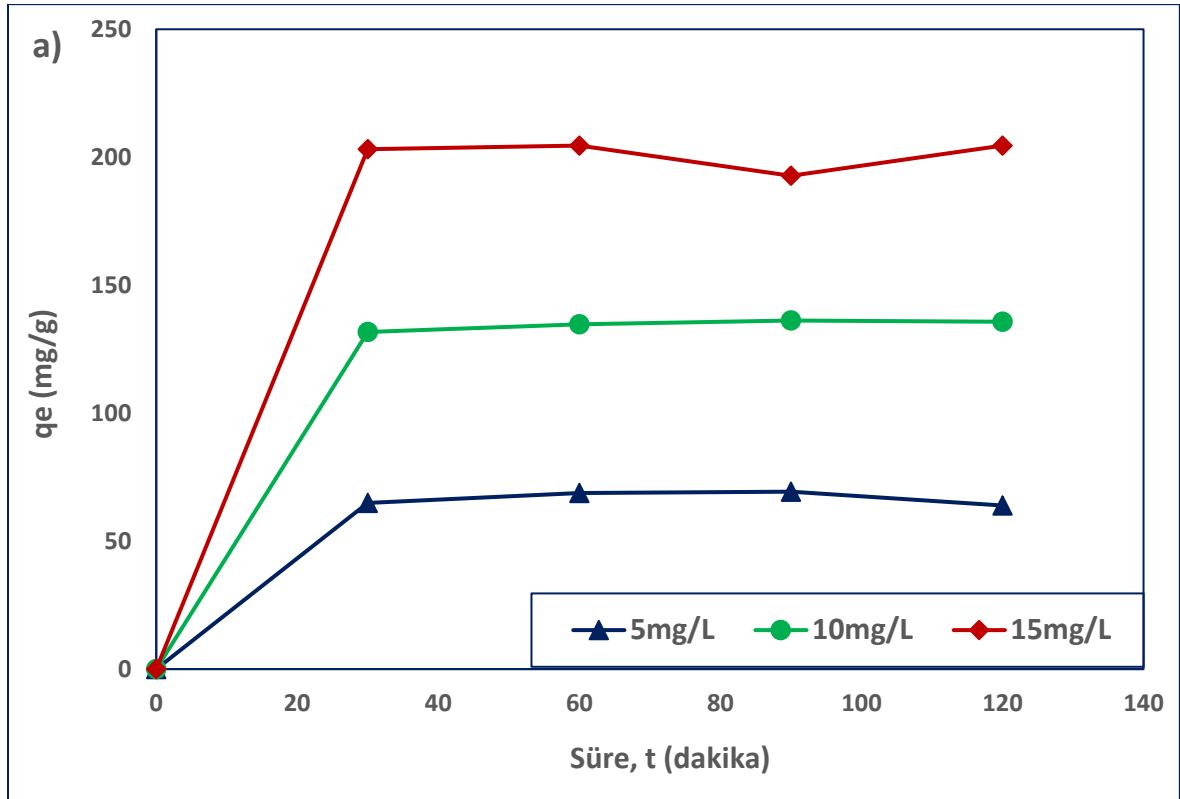


Şekil 6.42. Uranyumun *Chlorella sp.* Mikroalgeleriyle ile Gideriminde Temas Süresinin: a) Adsorplanmaya, b) Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi

6.4.2. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun Etkisi

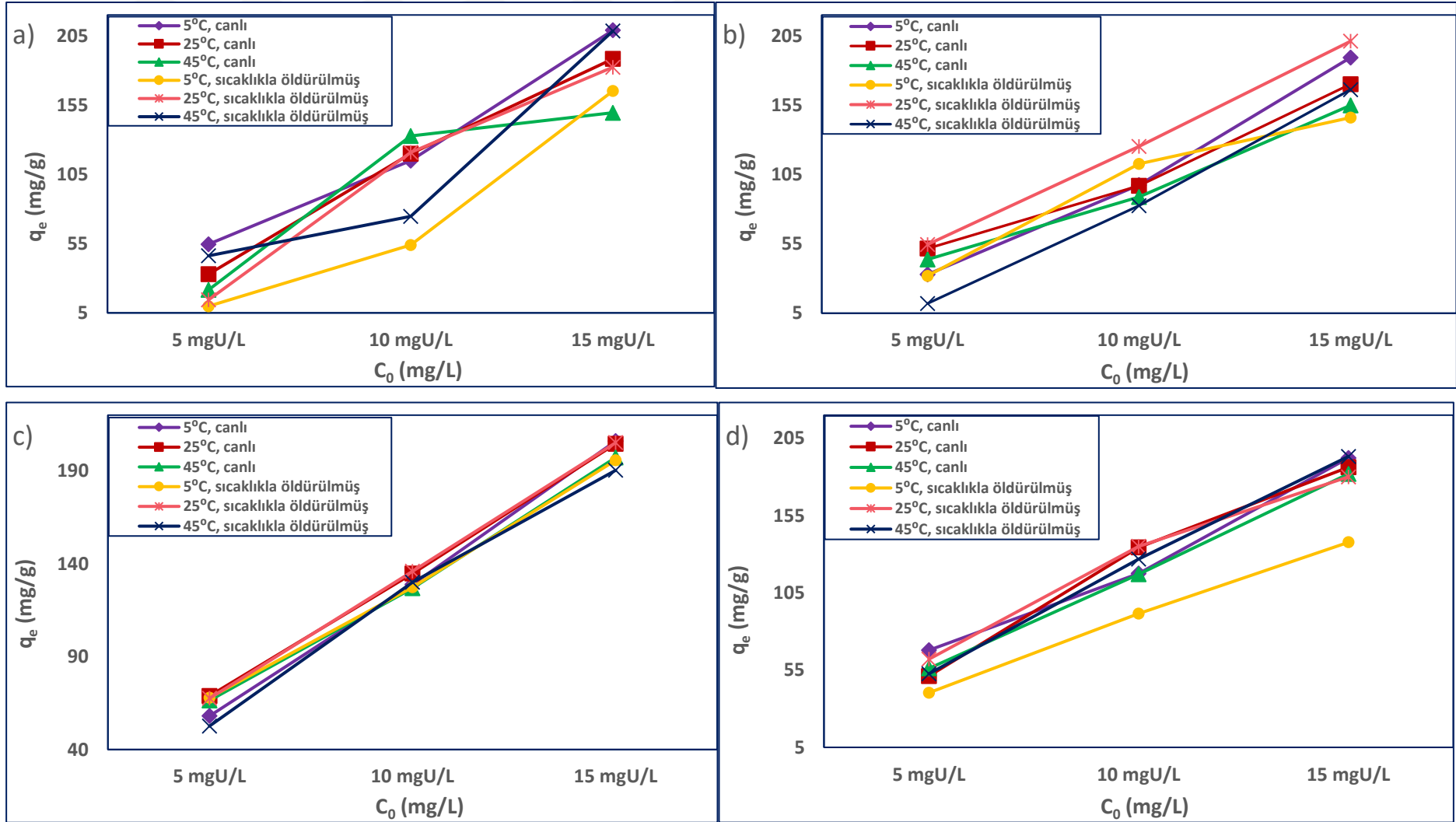
Uranyumun *Chlorella sp.* tarafından adsorpsiyonda başlangıç konsantrasyonunun etkisini görebilmek için 5, 10 ve 15mg/L uranyum konsantrasyonları kullanılmıştır. Seçilen şartlarda (pH 7, 71.61mg/L alg konsantrasyonu, canlı alg, 25°C) uranyumun adsorpsiyonunun zamana göre değişim grafiğine bakılınca, uranyumun başlangıç konsantrasyonu arttıkça adsorpsiyon miktarının da arttığı görülmektedir. Her 3 konsantrasyonda biyosorpsiyon 30 dakikada tamamlanmış, ancak 60 dakikada dengeye ulaşmıştır (Şekil 6.43).

Şekil 6.43'te görüldüğü gibi 30 dakika süreden sonra dengeye 60 dakikada ulaştığı, uranyumun biyosorpsiyonunda büyük farklılıkların olmadığı görülmüştür. Bu yüzden uranyumun *Chlorella sp.* mikroalglerinin üzerine biyosorpsiyonunda farklı faktörlerin (pH, sıcaklık, alg konsantrasyonu ve alglerin canlı yada öldürülmüş olması) etkisini 60 dakika sürelik temas süresinde yapılmıştır. Uranyumun farklı sıcaklık ve farklı pH şartları altındaki *Chlorella sp.* mikroalgleri üzerine biyosorpsiyonunun değişen başlangıç uranyum konsantrasyonu değerlerine göre grafikleri sırasıyla Sekil 6.44 ve Sekil 6.45'te gösterilmiştir. Her 3 konsantrasyonda da adsorpsiyon 60 dakikada tamamlanmıştır. Kullanılan tüm sıcaklık ve pH şartlarında biyosorpsiyonun uranyumun başlangıç konsantrasyonu arttıkça arttığı gözlemlenmiştir. Grafiklerden de görüldüğü gibi, uranyum giderimi yüksek oranda uranyumun başlangıç konsantrasyonuna bağlıdır. Şekil 6.43b'deki uranyumun giderim yüzdesinin grafiğine bakıldığında, giderimin yüksek olduğu (%93-99) görülmüştür. Uranyumun farklı başlangıç konsantrasyonlarında giderim yüzdeleri benzer olmakla beraber alglerin birim yüzeyine adsorplaması uranyumun konsantrasyonuna göre farklılık göstermektedir. Mikroalglerin birim yüzeyine uranyumun adsorplanması uranyum konsantrasyonu arttıkça artmaktadır. Uranyumun maksimum adsorpsiyon değeri $q_e(\max)$, pH 7, 25°C sıcaklık, 15mg/L uranyum konsantrasyonu ve 71.61mg/L canlı mikroalg ile elde edilmiş olup değeri **209 mg/g'dır**. En düşük adsorpsiyon değerleri $q_e(\min)$ ise pH 9 ve pH 3'te, 5°C sıcaklık, ısıyla öldürülmüş alg, ve 115.94 mg/L algler ve 5mg/L uranyum içeren reaktörlerde gözlenmiştir ve değeri sırasıyla: **17mg/g ve 18 mg/g'dır**. 71.61mg/L alg ile yapılan deneylerde ise **uranyumun ilk konsantrasyonu 5, 10 ve 15mg/L** olan reaktörlerde alglerin $q_{\max}$ (mg/g) değerleri sırasıyla; **69, 139 ve 209** olup hepsi pH 7, canlı alg ve 25°C sıcaklıkta elde edilmiştir. 282.42mg/L alg içeren reaktörlerde ise bu değerler: **18, 35 ve 53'dür**. Verilen değerlerden de görüldüğü üzere, uranyum konsantrasyonu her 5mg/L'ye artırılca giderilen uranyum konsantrasyonunda 1,5-2 katına artmaktadır.

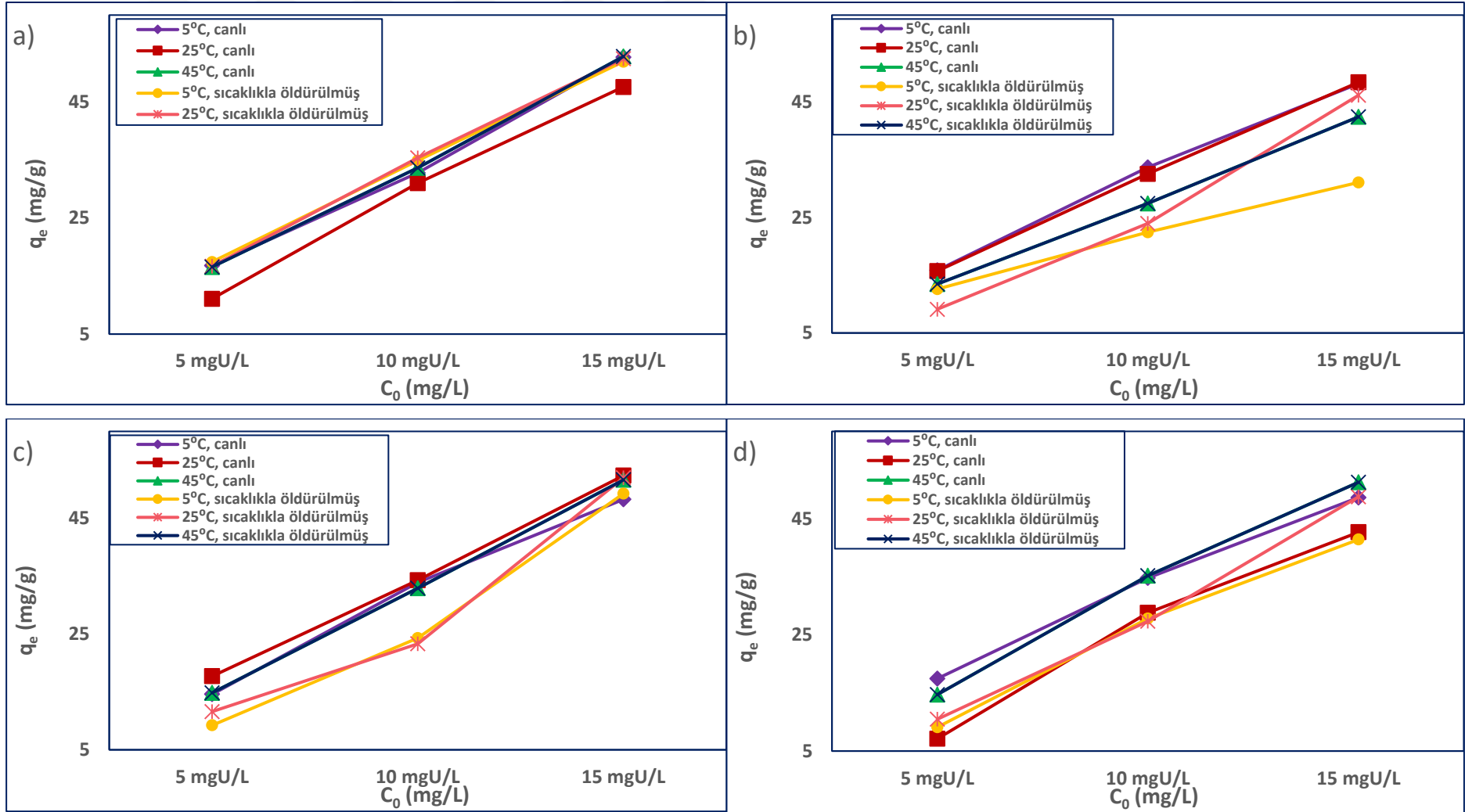


Şekil 6.43. Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonunun: a) *Chlorella sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına b) Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, 71.61 mg/L mikroalg, canlı mikroalg, 25°C)

q_e deęerlerinin, baslangıç uranyum konsantrasyonundaki artış ile artması temelde adsorban yüzeyindeki aktif yerleri (amino, karboksil ve hidroksil gruplar) saran uranyum iyonlarının miktarı ile alakalıdır. Yani, uranyumun baslangıç konsantrasyonunun artmasıyla adsorban yüzeyindeki adsorpsiyona elverişli yerleri daha fazla uranyum iyonu bağlandığından uranyum iyonları adsorban tarafından daha fazla adsorpladığını söyleyebiliriz. Benzer sonuçlar daha önce çeşitli araştırmacılar tarafından yapılan çalışmalarda rapor edilmiştir [53], [186], [187]. Bu çalışmalarından Bai'nin *Rhodotorula glutinis* algleriyle uranyumun biyosorpsiyon araştırmasında kullanılan uranyumun başlangıç konsantrasyonu 50mg/L'den 300mg/L'ye arttıkça q_e (mg/g) deęeri de sürekli olarak artmaktadır [53]. Moghaddam, 'brown' algleriyle uranyum iyonlarının biyosorpsiyon çalışmasında uranyumun başlangıç konsantrasyonu 0-2.2 mmol/L'ye deęişince pH 3, 4 ve 5 deęerlerinin hepsinde q_e (mg/g) deęerleri de sürekli artmıştır [187].



Şekil 6.44. Farklı Sıcaklıkta Uranyumun **71.61mg/L** *Chlorella sp.* Algleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9



Şekil 6.45. Farklı Sıcaklıklarda Uranyumun **282.42mg/L** *Chlorella sp.* Algleri Üzerine Adsorplanmasının Uranyumun Başlangıç Konsantrasyonuna Göre Değişimi (Süre 60dakika): a) pH 3, b) pH 5, c) pH 7 ve d) pH 9

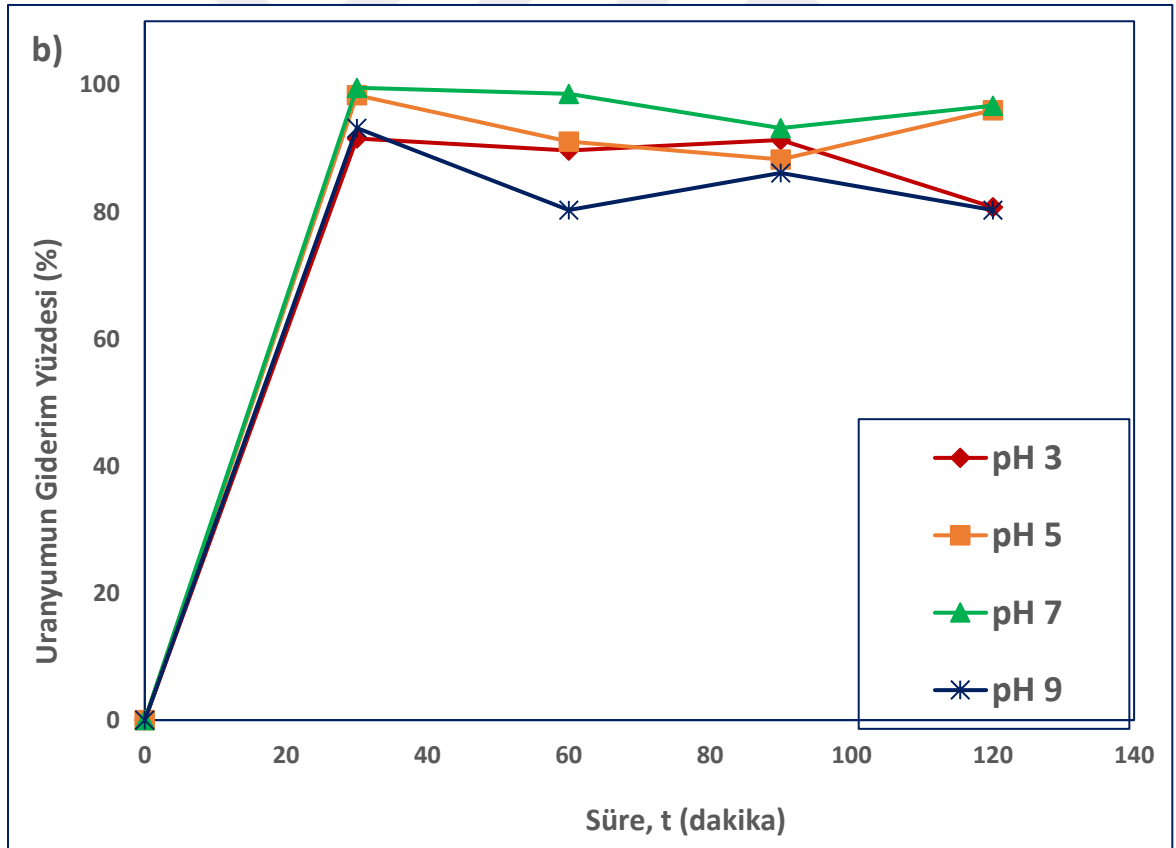
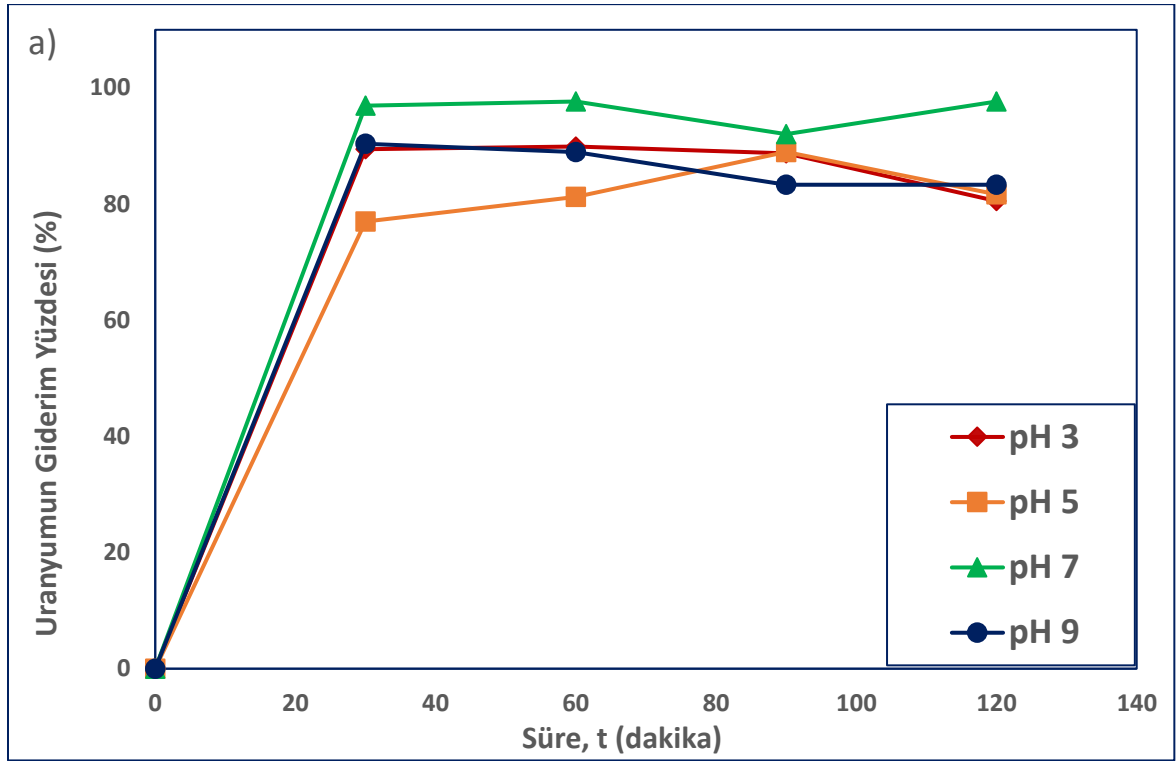
6.4.3. Başlangıç pH Değerinin Etkisi

Başlangıç pH'ın adsorplanan uranyum miktarını etkilediğini görebilmek için burada 3, 5, 7 ve 9 pH değerleri optimal şartlarda (25°C ve uranyum konsantrasyonu 15mg/L) kullanılmıştır. Uranyumun *Chlorella sp.* algleri üzerine adsorpsiyonunun değişen pH değerlerine göre grafiği Şekil 6.46'de gösterilmiştir. Görüldüğü gibi, en yüksek adsorpsiyon değerleri pH 7 ve 5'te ve en düşük değerleri de pH 9 ve pH3'tedir.

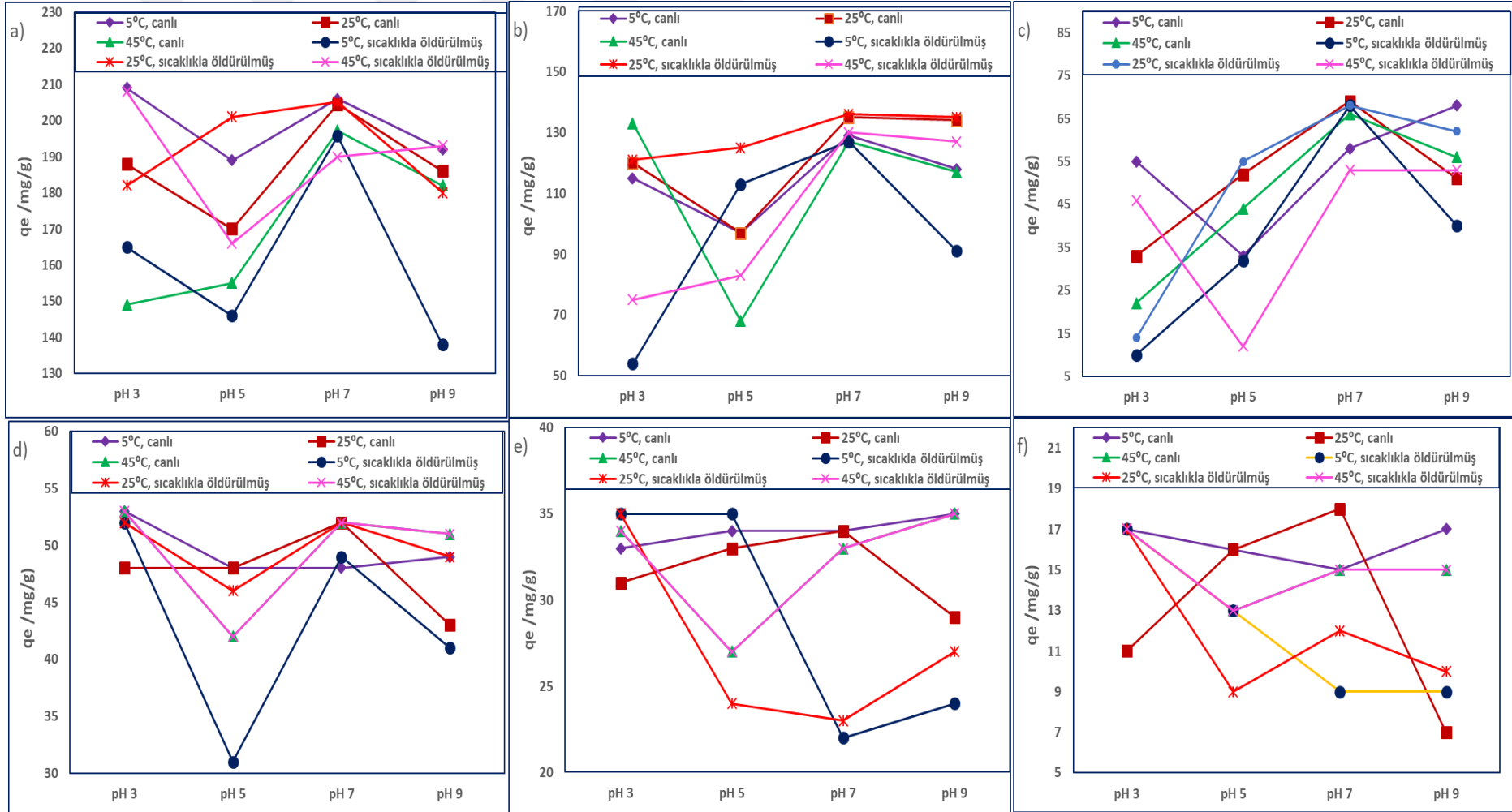
Uranyumun maksimum adsorpsiyon değeri, 71,61mg/L alg içeren reaktörlerde **3, 5, 7 ve 9 pH değerlerinde** alglerin q_{max} (mg/g) değerleri sırasıyla; **209, 201, 209 ve 201** olup hepsi canlı alg ve 25°C sıcaklıkta elde edilmiştir. 282.42mg/L alg içeren reaktörlerde ise bu değerler: **53, 52, 53 ve 53**'dür.

pH değerinin adsorpsiyona etkisi *Scenedesmus sp.* mikroalgleri ile yapılan deneylerdeki sonuçlara benzemektedir. Canlı mikroalgler ise hareketli halde oldukları için uranyumun algle buluşma oranı artmaktadır, hem de canlı algler ölü olanlara nazaran adsorpsiyonun yanısıra bioakümülyasyon ile de metalleri bünyesine alabilirler. Yi ve çalışma arkadaşlarına göre, düşük pH değerinde H^+ ionları arttığı için de alglerin negatif yüklü aktif bağlayıcı yüzeyine metal ionlarının yerine yapıştıkları için uranyumun adsorpsiyonunu azaltabilmektedir [147]. Burada da en yüksek adsorpsiyon değeri algin canlı kalmasına en elverişli olan pH 7 ve 5'te elde edilmiştir.

Şekil 6.46'te görüldüğü gibi uranyumun farklı pH değerlerinde *Chlorella sp.* mikroalglerinin üzerine adsorpsiyonu 30 dakikalık süreden sonra fazla değişiklik göstermeden sabit kalmasıyla birlikte en fazla giderim 60 dakika içerisinde gerçekleşmiştir. Bundan dolayı uranyumun bu algler üzerine adsorpsiyonuna burada kullanılan farklı sıcaklık ve pH'ların etkisini görebilmek için q_e (mg/g)'nin bu şartlar altında pH'a göre değişiminin grafikleri çıkartılmıştır (Şekil 6.47). Bu şekillerde hem 71.61mg/L alglerle hem de 282.42mg/L algleriyle yapılan deneylerde bazı istisnai durumları olmakla birlikte tüm pH ve sıcaklıklarda q_e (mg/g)'nin en yüksek değerleri pH 7'de elde edilmiştir. Nötr pH alglerin canlı kalması için en elverişli şarttır. Canlı mikroalglerle uranyumun giderim yüzdesi pH'a göre değişimi: pH 7 > pH 5 > pH 9 > pH 3'dir, ısıyla öldürülmüş mikroalglerle ise: pH 7 > pH 9 = pH 3 > pH 5'dir (Şekil 6.47).



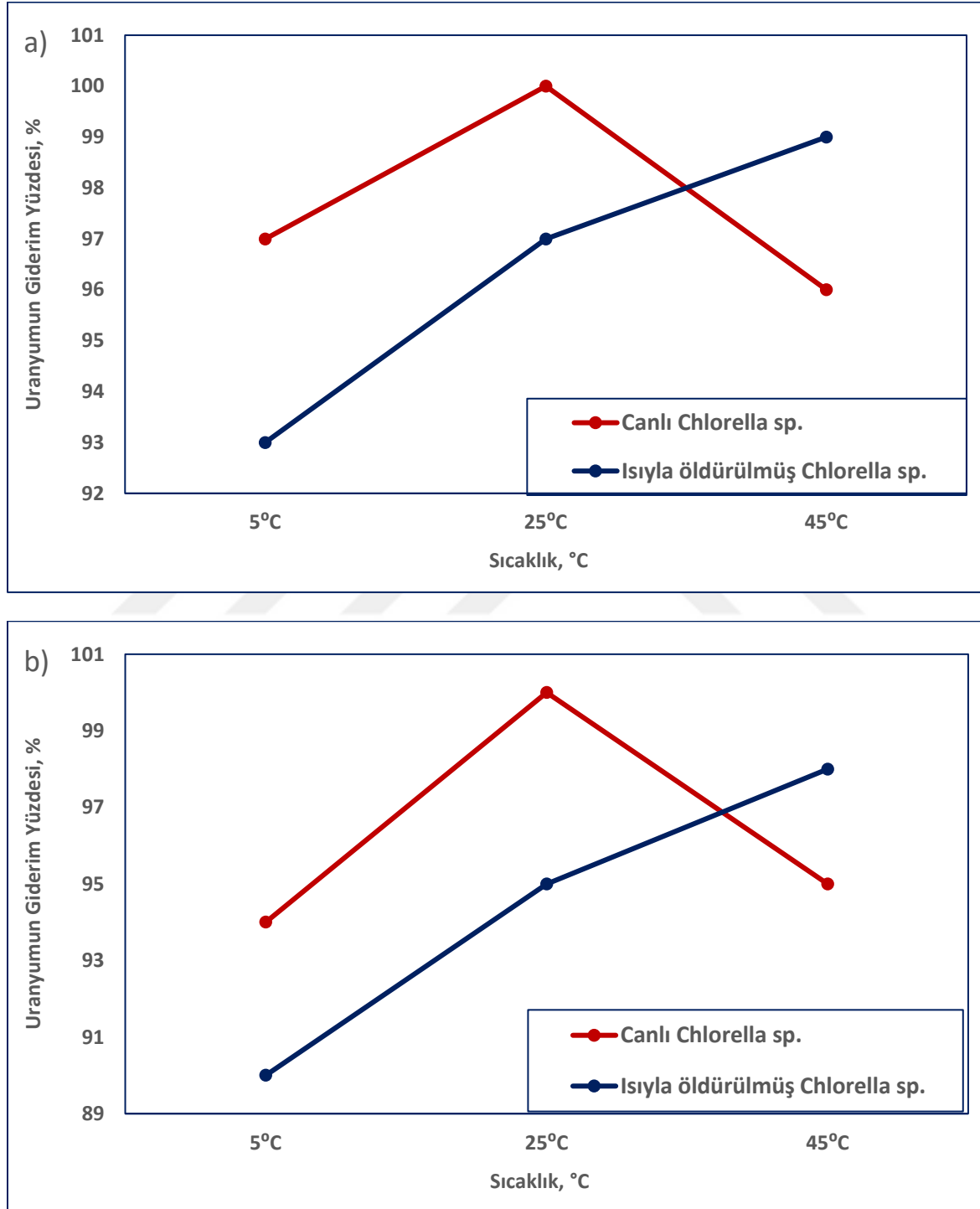
Şekil 6.46. Farklı pH Değerinin Uranyumun *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Giderim Yüzdesine Etkisi (25°C, canlı alg, $C_0=15\text{mgU/L}$): a) 71.61 mg/L alg, b) 282.42 mg/L mikroalg ile



Şekil 6.47. Başlangıç pH'ın Uranyum Konsantrasyonunun *Chlorella sp.* Mikroalgeleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 dakika): a), b) ve c) 71.61mg/L AdsorbanYapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) ise 282.42mg/L Adsorban

6.4.4. Sıcaklığın Etkisi

Sıcaklığın uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleri üzerine biyosorplanmasına olan etkisini incelemek için burada 5, 25 ve 45°C’de çalışmalar yapılmıştır. Sıcaklığa göre, uranyum gideriminin zamana göre değişiminin grafikleri aşağıdaki gibidirler (Şekil 6.49):



Şekil 6.48. Sıcaklığın *Chlorella sp.* ile Uranyumun Giderim Yüzdesine Etkisi (pH 7, canlı mikroalg, $C_0=15\text{mgU/L}$, süre 30 dakika): a) 71,61mg/L Mikroalg, b) 282,42mg/L Mikroalg İçeren Reaktörler İçin

Bu grafiklerden görüldüğü gibi standart şartlarda (pH 7, $C_0=15\text{mgU/L}$, temas süre 30 dakika) mikroalgler canlı iken en yüksek giderim 25°C 'de elde edilmişken, ısıyla öldürülmüş mikroalglerde sıcaklık arttıkça giderim artmıştır ve en yüksek giderim 45°C 'de elde edilmiştir. Kullanılan mikroalg konsantrasyonu daha düşük iken (71.6mg/L) canlı mikroalg ile ölü mikroalg giderim yüzdeleri arasında fark %10 olup canlı alglerle daha fazla giderim olmuştur. Mikroalg konsantrasyonu 282.4mg/L iken ise yine canlı mikroalglerle ölülere nazaran daha yüksek giderim olmasına rağmen arasındaki fark ancak %5'tir. Canlı algler uranyumu ölü olanlara nazaran biyoadsorpsiyonun yanı sıra biyoakümüülasyonla bünyesine alabilmektedir. Burada canlı ile ölü mikroalglerinin giderim yüzdelerinin farklarına bakıldığında biyoakümüülasyonla uranyumun yaklaşık %5-10 giderildiği görülmektedir.

Burada uranyumun *Chlorella sp.* üzerine adsorpsiyonuna sıcaklığın etkisi standart şartlarda (nötr pH, oda sıcaklığı) bakıldığında, canlı mikroalglerle 25°C 'ye ve ölü mikroalglerle sıcaklık arttıkça adsorpsiyonun da sürekli arttığı belirlenmiştir. Termodinamik hesaplama sonuçlarına da bakılırsa, standart şartlarda adsorpsiyon entalpisi pozitif olduğu için endotermiktir (ısı enerjisini tüketen), yani sıcaklığın artmasıyla adsorpsiyon da artmıştır. (Çizelge 6.17). Ancak EK-2'de verildiği gibi, diğer şartlarda, uranyumun *Chlorella sp.* ile adsorpsiyonu sıcaklık arttıkça tersine azalmaktadır yüksek giderim en düşük sıcaklıkta elde edilmiştir. Bu sonuçlar termodinamik hesaplamalara da uymaktadır. Bu şartlarda adsorpsiyon ekzotermik (ısı üreten) olduğu belirlenmiştir. Genel olarak çoğunlukla uranyumun *Chlorella sp.* ile adsorpsiyonu endotermiktir, yani sıcaklık artmasıyla giderim de artmaktadır.

71.61 mg/L *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde. Şekil 6.49a'da 15 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde sıcaklık arttıkça $q_e(\text{mg/g})$ değeri azalmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde ise, nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) $q_e(\text{mg/g})$ değeri 5°C 'den 25°C 'ye kadar artmakta, ama 25°C 'den 45°C 'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da sıcaklık arttıkça $q_e(\text{mg/g})$ sürekli artmaktadır (Şekil 6.49a). Şekil 6.49b'de 10 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde, tüm pH 3 dışında tüm pH değerlerinde $q_e(\text{mg/g})$ değeri 25°C 'ye kadar artıp daha sonra azalmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde de tüm pH değerlerinde $q_e(\text{mg/g})$ değeri 5°C 'den 25°C 'ye kadar artmakta, ama 25°C 'den 45°C 'ye kadar tekrar azalmaktadır (Şekil 6.49b). Şekil 6.39c'de 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve hem canlı hem ısıyla öldürülmüş algler içeren reaktörlerde, nötr pH değerlerinde $q_e(\text{mg/g})$

değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da canlı algler olan reaktörlerde biyosorpsiyon sıcaklık arttıkça azalırken, ısıyla öldürülmüş algleri bulunanlarda ise tüm pH değerlerinde sürekli artmaktadır (Şekil 6.49c).

282.42mg/L *Chlorella* sp. Mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde. Şekil 6.49 d, e ve f'de sırasıyla 15 mg/L, 10 mg/L ve 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. pH 3 ve pH 9'da ise tersine 5°C'den 25°C'ye kadar azalmakta ve 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar artmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde ise, 15mg/L uranyum konsantrasyonu olan reaktörlerde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar artmakta, ama 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar azalmaktadır. 10mg/L uranyum olan reaktörlerde, canlı alglerle deneylerde sıcaklık arttıkça q_e (mg/g) azalmakta ve ısıyla öldürülmüş alglerle deneylerde sıcaklıkla genellikle artmaktadır (Şekil 6.49e). Şekil 6.49f'de 5 mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı algler içeren reaktörlerde, nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7) q_e (mg/g) değeri 25°C'ye kadar artıp daha sonra azalmaktadır, asidik ve bazik Ph değerlerinde de tersine 25°C'ye kadar azalıp sonra artmaktadır. Isıyla öldürülmüş algleri bulunan reaktörlerde pH 3 dışındaki pH değerlerinde q_e (mg/g) değeri sıcaklıkla sürekli artmaktadır (Şekil 6.49d, e ve f).

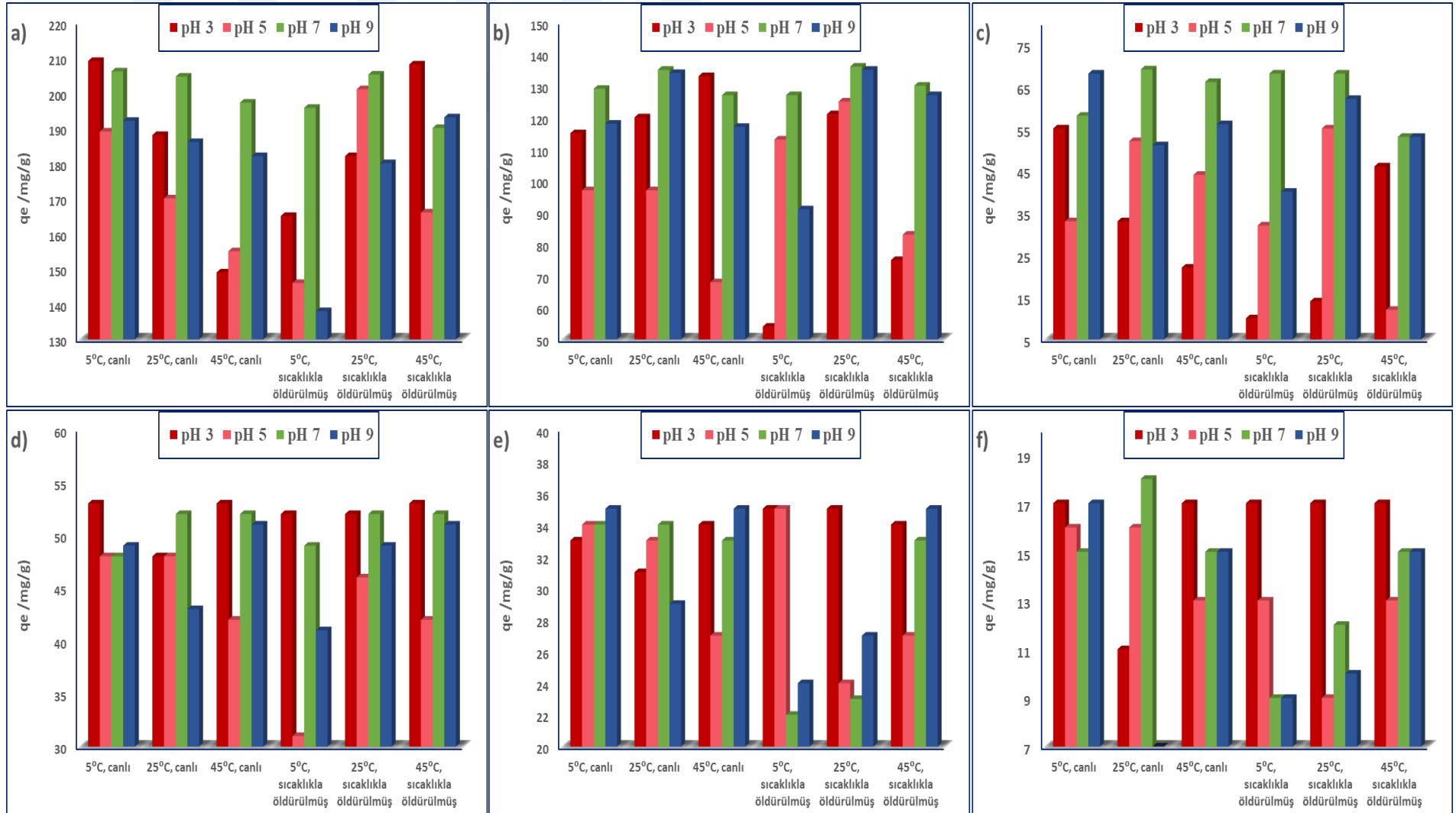
Burada aşağıdaki genel sonuçlar çıkarılabilir: 1) nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7), hem canlı hem ısıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar azalmakta ve 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar artmaktadır, yani en yüksek biyosorbans 25°C'dedir, 2) Asidik (pH 3) ve bazik (pH 9) şartlar altında ise genel olarak canlı algler olan reaktörlerde sıcaklıkla arttıkça q_e (mg/g) değeri azalmakta, ısıyla öldürülmüş algler olan reaktörlerde ise tersine sıcaklık arttıkça sürekli artmaktadır. Bu durum aşağıdaki gibi açıklanabilir: nötr pH değerleri (pH 5 ve 7) alglerin canlı kalabilmesi için en çok elverişli olan şarttır ve bundan dolayı algler çoğunlukla canlı kaldıkları için uranyumun giderimi algler için optimal sıcaklık olan 25°C'de en yüksektir. Canlı algler adsorpsiyonun yanı sıra biyoakümüülasyonla da uranyumu bağlayabilmektedirler.

Buradan görüldüğü gibi farklı şartlar altında uranyumun *Chlorella* sp. algleri üzerine biyosorpsiyonu farklı olarak değişiklik göstermektedir. Ama optimal şartların belirlenmesi için böyle farklı fiziksel ve kimyasal şartlar aynı anda etkisini dikkate alarak optimizasyon yönteminin yardımıyla üç boyutlu grafikleri çıkartılarak analiz edilmelidir.

71.61mg/L alg içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde, 5, 25 ve 45°C sıcaklıklarda canlı alglerle yapılan deneylerde q_{max} (mg/g) değerleri sırasıyla; 209, 205 ve 204'dır. Isıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde ise q_{max} (mg/g) değerleri sırasıyla; 208, 207 ve 208'dir. 282.42mg/L alg içeren reaktörlerde ise bu değerler canlı algler için: 53, 53 ve 53'dür ve ısıyla öldürülmüş algler için ise: 52, 53 ve 53'dür. Canlı alglerin olduğu reaktörlerde adsorban miktarı yüksek iken başlangıçta düşük sıcaklıkta adsorbans daha yüksek olmasına rağmen zaman geçtikçe en yüksek değeri 25°C'de görülmektedir. Yani zaman geçtikçe q_e (mg/g) miktarına değil alglerin canlı ve hareketli kalması için uygun sıcaklığa bağlı olduğu görülmüştür.

Şekil 6.49, a, b ve c'da görüldüğü gibi mikroalg konsantrasyonu daha düşük iken (71.61mg/L), farklı sıcaklıklar, başlangıç uranyum konsantrasyonları ve canlı/ölü mikroalgleri için en yüksek giderim pH 7'de elde edilmiştir. Benzer sonuç Alix ve arkadaşlarının öldürülmüş *Chlorella Vulgaris* mikroalgleriyle uranyumun giderim çalışmalarında görülmektedir. Burada 125mg/L mikroalg kullanarak uranyumun gideriminde pH 3'ten pH 6'ya kadar arttıkça uranyum giderimi yüzdesi de %8.9'dan %87.4'e kadar artmaktadır [189].

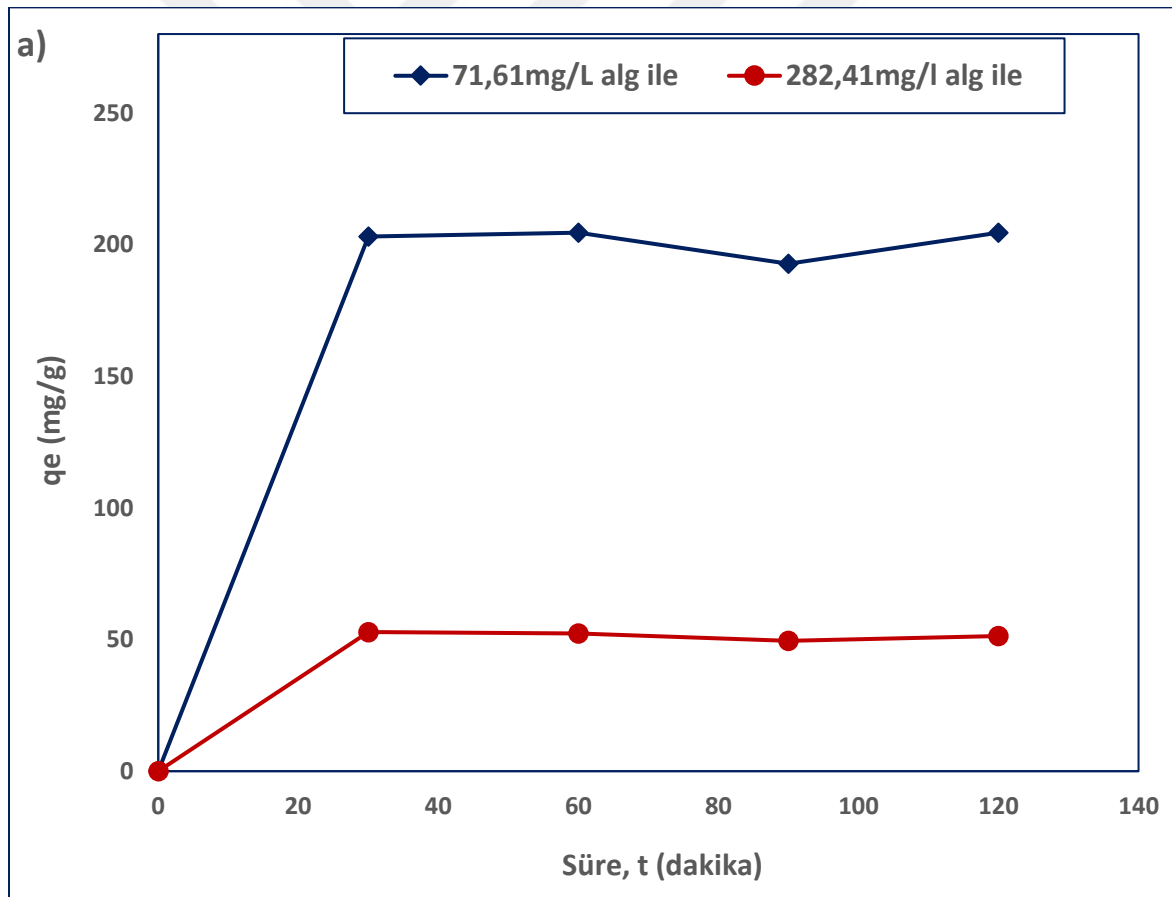
Şekil 6.49, d, e ve f'de ise: mikroalg konsantrasyonu yüksek iken (282.42mg/L) tüm şartlarda (farklı sıcaklıklar, başlangıç uranyum konsantrasyonları ve canlı/ölü mikroalgleri) en yüksek uranyum giderimi pH 4'te olduğu görülmektedir. Buna benzer sonuçlar Erkaya ve arkadaşlarının çalışmalarında elde edilmiştir. Bu çalışmada uranyumun 1000mg/L *Chlamydomonas reinhardtii* mikroalg ile gideriminde en yüksek adsorpsiyon değeri pH 4'te görülmektedir. Burada q_e değeri 70 ila 340 mg/g arası değişmiştir [174]. Vogel ve arkadaşlarının 760mg/L *Chlorella Vulgaris* ile uranyum giderim çalışmalarında en yüksek uranyumun giderimi (%85) ve adsorpsiyon kapasitesi q_e (27mg/g) pH 5.5'te olmuştur [190].

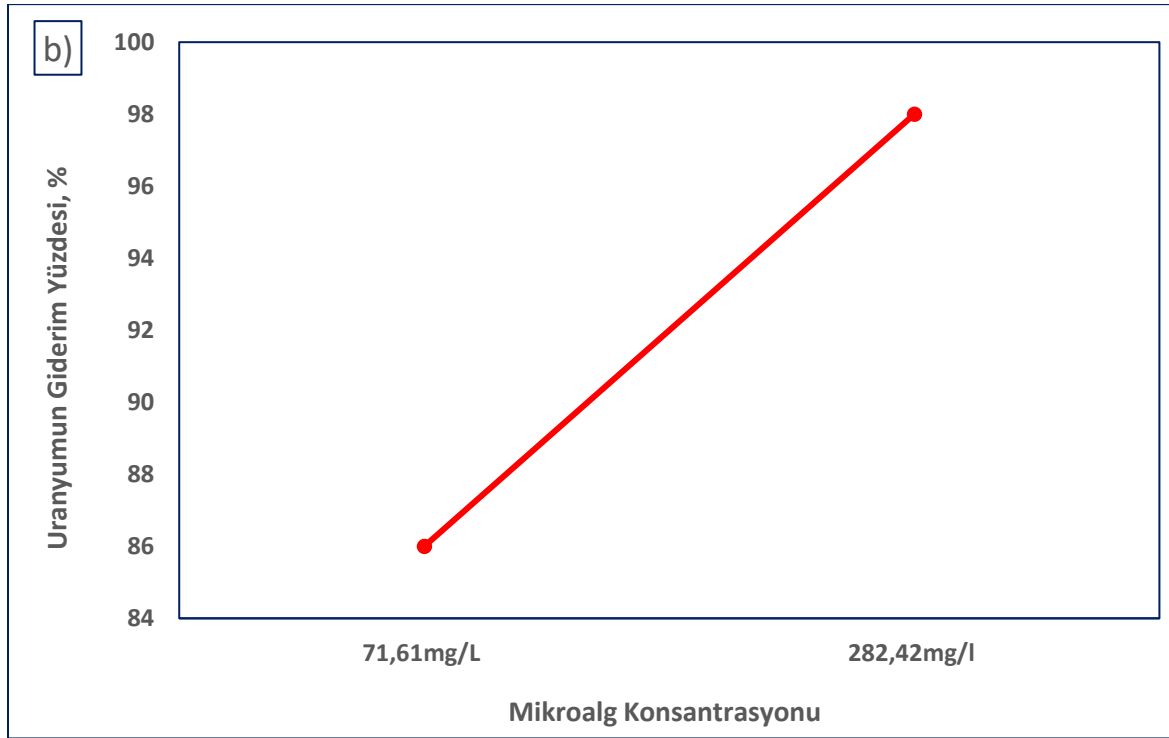


Şekil 6.49. Sıcaklığın Uranyumun *Chlorella sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorplanmasına Etkisi (Süre 60 dakika): a), b) ve c) 71.61mg/L Mikroalg ile Yapılan Deneylerde Sırasıyla 15mgU/L, 10mgU/L ve 5mgU/L Uranyum Konsantrasyonları İçin Grafikleri, d), e) ve f) ise 282.42mg/L Mikroalg

6.4.5. Mikroalg Konsantrasyonunun Etkisi

Uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleri üzerine biyosorplanmasının değişen q_e (mg/g) miktarı değerlerine göre değişimini görebilmek için algin 71.61mg/L ve 282.42mg/L'lik konsantrasyonları, optimal şartlar altında (25°C, pH 7, 15mg/L uranyum konsantrasyonu ve canlı alg türü) kullanılmıştır ve sonuçları Şekil 6.51'de gösterildiği gibidir. q_e (mg/g) değerinin, adsorban miktarı arttıkça azaldığı görülmüştür. Ama giderim yüzdesine karşı değişimine bakılırsa *Chlorella sp.* mikroalglerinin konsantrasyonu daha yüksek olan deneylerde (282.42mg/L) daha yüksek giderim elde edilmiştir. Yani Alglerin konsantrasyonu burada daha yüksek olduğu için birim yüzeyine biyosorplanan uranyum miktarı daha az olsa da daha düşük konsantrasyondaki alglere rağmen daha çok uranyum biyosorplanmıştır. Bu da uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleri üzerine biyosorplama ile gideriminde alg konsantrasyonun 282mg/L olması yeterlidir. (Şekil 6.51 a ve b).





Şekil 6.50. Farklı Alg Konsantrasyonlarında: a) Uranyumun *Chlorella sp.* Mikroalgleri Üzerine Adsorpsiyonunun Değişen Adsorban Miktarı Değerlerine Göre, b) Uranyumun *Chlorella sp.* ile Giderim Yüzdesinin Zamana Göre Değişiminin Grafikleri (25°C, pH 7, 15mg/L uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve canlı alg türü)

Adsorban miktarı arttıkça adsorpsiyon değerindeki azalma süreç içerisinde adsorban yüzeyindeki aktif yerlerin uranyum iyonları tarafından doyurulmadan kalmasına bağlıdır. Bunun sebebi, belirli bir miktar adsorbanın ancak belirli bir miktar uranyumu adsorbe edebilmesi söylenebilir. Bir önceki bölümde bahsedildiği gibi sabit adsorban miktarında, uranyum konsantrasyonu arttırıldığında q_e adsorpsiyon değeri artmaktaydı. Burada ise sabit uranyum konsantrasyonunda adsorban miktarı arttırıldı dolayısıyla bu hareketle ortamdaki adsorban miktarına oranla uranyum konsantrasyonu azalmış oldu. Bu da adsorbanın daha az uranyum iyonları ile teması ve adsorbandaki aktif yerlerin doyurulmadan kalması anlamına gelir. Doğal olarak adsorpsiyon değerinde düşüş yaşanmıştır.

Burada farklı parametrelerin (temas süresi, uranyum konsantrasyonu, pH, sıcaklık, adsorban miktarı) uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleriyle adsorpsiyonuna olan etkileri seçilen şartlar altında ayrı ayrı olarak bakılmıştır. Ancak bu parametrelerin etkilerinin aynı anda göz önünde bulundurarak uranyumun adsorpsiyonuna olan etkilerine bakabilmek için Box-Behnken programının yardımıyla ‘Yanıt Yüzey Metodu (YYM)’ ile optimizasyon yöntemi kullanılmıştır. Sonuçta optimal şartlar belirlenmiştir.

6.4.6. Uranyumun Adsorpsiyonunun Yanıt Yüzey Metodu (YYM) ile Optimizasyonu

6.4.6.1. Model Oluşturulması ve İstatistiksel Analiz

Deneylerde kullanılan değişken parametrelerin (pH, sıcaklık, uranyum konsantrasyonu, alg konsantrasyonu, alglerin ölü yada canlı olması, süre) giderime etkisini izlemek için bu parametrelerin hepsinin bir arada bu etkiye katkısını hesaba katarak en optimal (en verimli) giderim şartların belirlenmesi gerekmektedir. Uygulanan değişken parametrelerin hepsinin etkisini bir arada görebilmek için Box-Behnken istatistiksel-matematiksel grafik analizi kullanılır. Böylece burada Box-Behnken optimizasyon yöntemi kullanılarak farklı parametrelerin farklı değerlerinde (1) pH: 3, 5, 7 ve 9, 2) sıcaklık: 5°C, 25°C ve 45°C, 3) uranyumun başlangıç konsantrasyonu: 5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L, 4) mikroalg konsantrasyonu: 71.61mg/L ve 282.41mg/L, 5) mikroalglerin ölü yada canlı olması) uranyumun gideriminin yüzde grafikleri kıyaslanarak bu parametlerin hangi değerleri sağlandığında en yüksek giderim elde edildiği belirlenerek optimum şartlar belirlenmiştir. Box-Behnken programı kullanılarak toplam 720 analiz gerçekleştirilmiştir. İstatistiksel deneysel tasarımdan elde edilen veriler çoklu lineer regresyon analizi kullanılarak bağımlı değişken Y (giderim yüzdesi, %) ve bağımsız değişkenler: alg konsantrasyonu (X_1), canlı/ölü alg (X_2), sıcaklık (X_3), süre (X_4), pH (X_5), U(VI) ilk konsantrasyonu (X_6) arasındaki bağlantı aşağıdaki gibi üçüncü dereceden polinom denklem ile verilmektedir:

$$\begin{aligned} Y(\text{mg} / \text{g}) = & 92,47 - 1,30X_1 + 1,91X_2 + 1,74X_3 - 6,4X_4 + 16,82X_5 + 7,55X_6 + 1,25X_1X_2 \\ & + 1,06X_1X_3 + 1,03X_1X_4 - 4,94X_1X_5 - 1,86X_1X_6 - 2,19X_2X_3 - 0,3825X_2X_4 \\ & + 0,0174X_2X_5 - 0,8276X_2X_6 + 1,52X_3X_4 + 208X_3X_5 - 0,1664X_3X_6 + 0,9637X_4X_5 \\ & + 3,37X_4X_6 - 1,81X_5X_6 - 1,97X_3^2 - 46,60X_4^2 - 2,84X_5^2 - 2,24X_6^2 - 2,01X_1X_2X_3 \\ & + 1,46X_1X_2X_4 + 2,26X_1X_2X_5 - 0,7078X_1X_2X_6 - 0,2708X_1X_3X_4 + 0,8040X_1X_3X_5 \\ & - 0,5165X_1X_3X_6 - 2,77X_1X_4X_5 - 0,0619X_1X_4X_6 + 4,80X_1X_5X_3 - 1,19X_2X_3X_4 \\ & - 2,26X_2X_3X_5 + 1,16X_2X_3X_6 + 0,3235X_2X_4X_5 + 0,6814X_2X_4X_6 + 0,2071X_2X_5X_6 \\ & + 0,2337X_3X_4X_5 + 0,6272X_3X_4X_6 - 0,7742X_3X_5X_6 - 0,8474X_4X_5X_6 + 4,53X_1X_3^2 \\ & - 2,94X_1X_4^2 + 6,60X_1X_5^2 - 0,5355X_1X_6^2 + 3,10X_2X_3^2 - 2,55X_2X_4^2 - 2,83X_2X_5^2 \\ & + 0,9533X_2X_6^2 - 2,71X_3^2X_4 + 0,9007X_3^2X_5 - 0,7174X_3^2X_6 + 0,2722X_3X_4^2 + 0,2855X_3X_5^2 \\ & - 1,10X_3X_6^2 - 3,55X_4^2X_5 - 2,21X_4X_6^2 + 4,88X_5^2X_6 + 0,3760X_5X_6^2 + 51,99X_4^3 - 15,53X_5^2 \end{aligned}$$

Elde edilen bu regresyon denkleminin istatistik olarak analiz edilmesi için ANOVA model analizi yapılmıştır (Çizelge 6.14). Modelde **F-değerinin** 60,85 olması modelin önemliliğini göstermektedir. **P-değerlerinin** 0,0500'ten düşük olması modeldeki parametrelerin

önemliliğinin göstergesidir. Burada; D, E, F, AB, AE, AF, BC, CE, DF, EF, D², E², F², ABC, ABE, ADE, AEF, BCE, AC², AD², AE², BC², BD², BE², D²F, DE², E²F, D³, E³- önemli model parametreleri olduğu görünmektedir. Bu değerin 0.1000'den daha büyük olması model parametrelerinin önemli olmadığını göstermektedir. Parametrelerin P-değerlerine bakılırsa uranyum giderim yüzdesini en çok etkileyen parametrelerden birinci sırada pH ($p < 0,0001$) ve alg konsantrasyonu gelmektedir, sonra canlı yada ölü olması, daha sonra uranyumun başlangıç konsantrasyonu ve süre ile sıcaklık gelmiştir.

Çizelge 6.14. ANOVA Model Analizi (*Chlorella sp.*)

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-value	p-value	
Model	8.496E+05	67	12681.18	60.85	< 0.0001	significant
A-Alg Konsantrasyonu	152.99	1	152.99	0.7342	0.3919	
B-Canlı yada Ölü Chlorella sp.	330.19	1	330.19	1.58	0.2086	
C-Sıcaklık	242.30	1	242.30	1.16	0.2813	
D-Süre	1011.00	1	1011.00	4.85	0.0280	
E-pH	6251.15	1	6251.15	30.00	< 0.0001	
F-U(VI) konsantrasyonu	4563.96	1	4563.96	21.90	< 0.0001	
AB	1120.40	1	1120.40	5.38	0.0207	
AE	9783.85	1	9783.85	46.95	< 0.0001	
Residual	1.359E+05	652	208.39			
Cor Total	9.855E+05	719				

6.4.6.2. YYM Optimizasyon Sonuç Analizleri

Bağımsız değişken parametrelerin uranyumun giderimine olan etkilerini aynı anda görebilmek ve inceleyebilmek için YYM optimizasyon yöntemiyle elde edilen üç boyutlu yüzey grafikleri kullanılmıştır. Bu grafiklerde her parametrenin giderime etkisine bakılırken, kalan 4 parametre giderim yüzdesi en yüksek değere gelene kadar ayarlanarak optimum sabit değere getirilmiştir. Farklı iki parametre seçilerek her bir parametre için farklı üç boyutlu yüzeysel grafikler oluşturulmuştur. Bu grafikler karşılaştırılarak tüm parametre için optimum (giderim yüzdesi en yüksek değerde olan) değerleri tespit edilmiştir.

pH-Sıcaklık Grafikleri. İstatistiksel analizde gösterildiği gibi, burada kullanılan 6 bağımsız değişkenlerin içinden uranyumun giderimini en çok etkileyen parametre olan pH parametresinin diğer 5 parametreye karşı ayrı ayrı yapılan grafiklere bakılırsa sabit tutulan parametrelerin optimum değerlere getirilip getirilmemesine bağlı olarak giderimde ne kadar büyük fark olduğu görülür (Şekil 6.52). Örneğin, pH ve sıcaklığın değişken olduğu grafiklerde, optimal olarak tespit edilen: 1) süre (54-62,4 dakika), 2) algler canlı, 3) alg

konsantrasyonun 282mg/L ve 4) uranyumun başlangıç konsantrasyonu en yüksek (15mg/L) seçilerek pH-sıcaklık grafiğinin'e bağlı olarak nasıl değiştiği Şekil 6.52a'da görülmektedir. Aynı grafikler, aynı optimal şartlarda, ancak uranyumun konsantrasyonu en düşük olan 5mg/L olduğunda uranyum gideriminin pH-sıcaklık grafikleri Şekil 6.52b'de verilmiştir. Bu şekillerden, optimal uranyumun başlangıç konsantrasyonu (15mg/L) olanlarda ve optimal olmayan başlangıç konsantrasyonu (5mg/L) olana göre büyük fark olduğu görülmektedir. Uranyumun başlangıç konsantrasyonu 5mg/L iken giderim yüzdesi %85-95 arasındayken, bu konsantrasyon 15mg/L'ye çıkartılınca giderim yüzdesi %95'den daha yüksek olduğu da görülmektedir. Yani uranyumun ilk konsantrasyonunun giderim yüzdesine olan etkisi büyük olduğu burada net olarak yansıtılmaktadır.

Tüm şartlarda algler canlı iken sıcaklığa bağlı olmadan nötr pH (pH 6-8 arası) değerlerinde en yüksek giderim yüzdesi vermektedir. Ancak ölü algler kullanıldığında giderim yüzdesi sıcaklık arttıkça hayli artmaktadır, nötr pH değerlerinde giderim biraz daha fazladır.

pH-Alg Ölü/Canlı Grafikleri. Optimal süre (62,4dakika), optimal U(VI) konsantrasyonunda (15mg/L), optimal ve optimal olmayan alg konsantrasyonu ve sıcaklık şartları altında, pH ve alglerin canlı yada ölü olmasına karşı uranyumun giderilmesinin yüzdesinin değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.53'te gösterildiği gibidir. Burada hem optimal hem optimal olmayan şartlarda uranyumun giderilmesi tüm grafiklerde canlı mikroalglerin ölü mikroalglere nazaran daha yüksek uranyum giderimini göstermektedir. Her şartta uranyumun giderilmesinin pH arttıkça da arttığını görebiliriz. Burada belirtilmesi gereken önemli nokta: mikroalg konsantrasyonu yüksek iken (282mg/L) giderim yüzdesi sıcaklığa bağlı olarak önemli derecede değişirken (sıcaklık arttıkça giderim artıyor), alg konsantrasyonu düşük iken (71.61mg/L) giderim yüzdesi sıcaklığa bağlı olarak fazla değişiklik göstermemektedir. Bu durum ANOVA hesaplamasından da görülmektedir: ANOVA'da sıcaklık (C) tek başına önemli parametre olarak gözükmezken alg konsantrasyonu (A) ile aynı zamanda bakıldığında (AC) giderim yüzdesini önemli derecede etkileyen parametreye dönüşmektedir.

pH - Alg Konsantrasyonu Grafikleri. Optimal şartlarda uranyumun *Chlorella sp.* ile giderilmesinin pH ve alg konsantrasyonuna göre değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.54'de verilmiştir. Grafiklerde görüldüğü gibi uranyumun giderimi alg konsantrasyonu ve pH arttıkça artmaktadır (Şekil 6.54).

pH - Süre Grafikleri. Optimal şartlarda pH ve süreye bağlı olarak uranyumun giderilme yüzdesinin değişmesinin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.48’de görülmektedir. Grafiklerde en yüksek giderim 54 dakika ila 62,4 dakika arasında olduğu görülmektedir (Şekil 6.54).

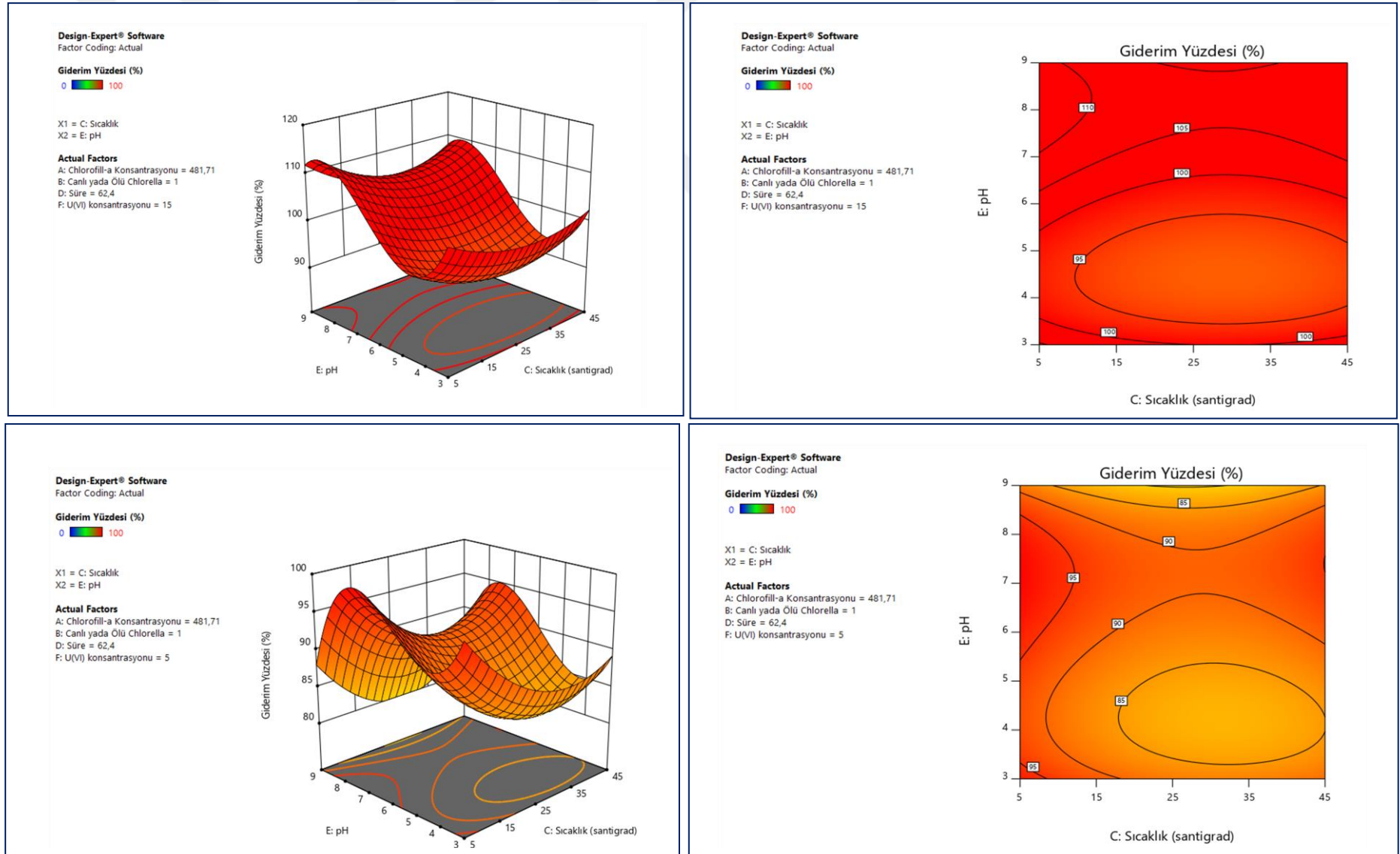
Uranyum Konsantrasyonu – pH Grafikleri. Optimal şartlarda uranyumun konsantrasyonu ve pH’a göre giderim yüzdesinin değişiminin üç boyutlu grafikleri Şekil 6.55’de görülmektedir. Grafiklerde giderim yüzdesi, uranyum konsantrasyonu arttıkça arttığı ve en yüksek giderimin pH 6,5-8 arasında (nötr pH aralığı) olduğu gözlenebilir (Şekil 6.55).

Uranyum - Alg Konsantrasyonu Grafikleri. Hem optimal, hem de optimal olmayan şartlarda uranyumun giderimi uranyum konsantrasyonu ve alg konsantrasyonu arttıkça artmaktadır (Şekil 6.56).

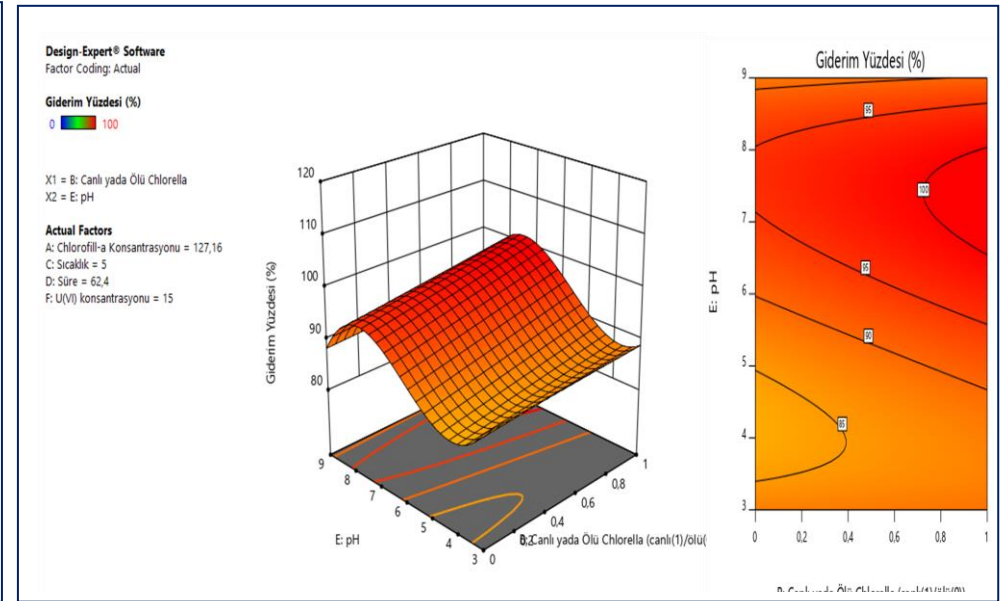
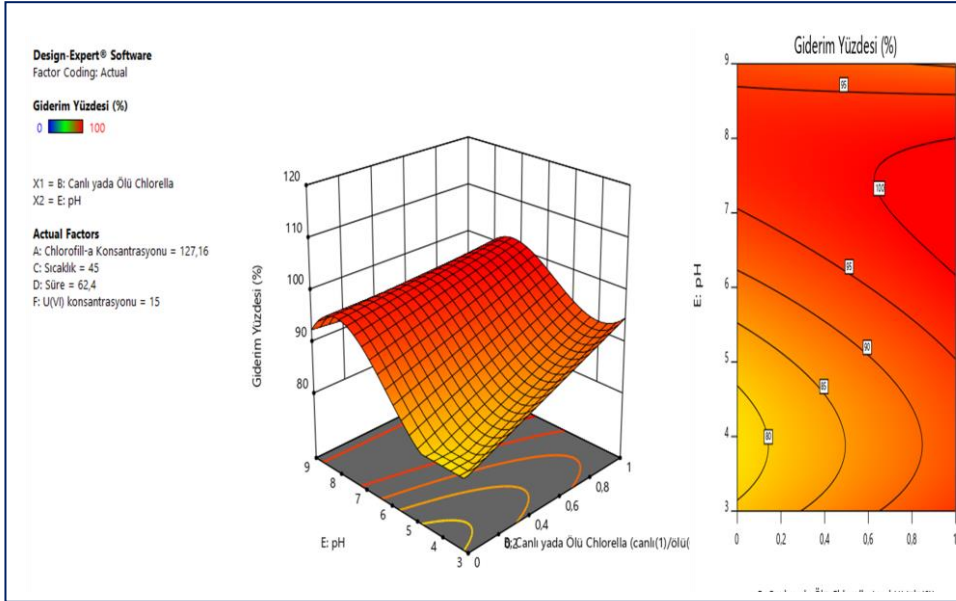
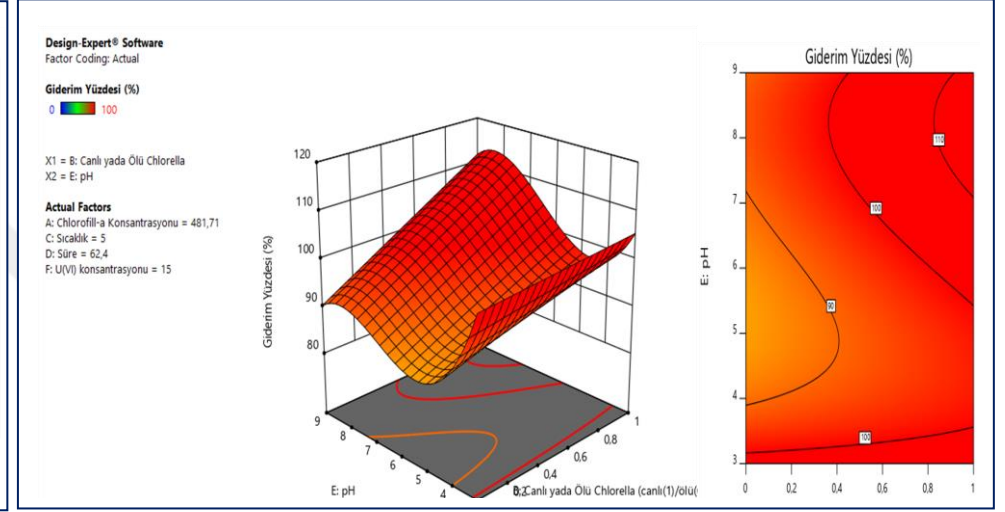
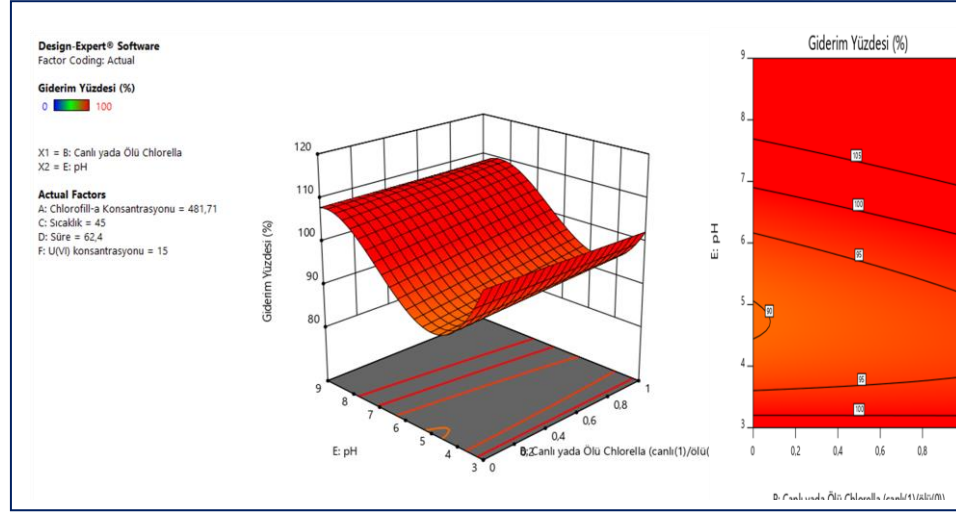
Uranyum Konsantrasyonu - Sıcaklık Grafikleri. Burada alger ölüyken giderim yüzdesi sıcaklık arttıkça sürekli artmaktadır, ama alger canlıyken 25°C’de sıcaklıkta yüksek giderim elde edildi. Hem canlı hem de ölü algerde uranyumun konsantrasyonu arttıkça giderim yüzdesi de artmaktadır (Şekil 6.56).

U(VI) Konsantrasyonu-Süre, Sıcaklık-Alg Konsantrasyonu, Sıcaklık-Canlı/Ölü, Canlı/Ölü-Alg konsantrasyonu grafikleri Şekil 6.50’de verilmektedir. Burada sonuçlar önceki grafiklerden elde edilen sonuçlarla benzer sonuçları vermektedir (Şekil 6.56).

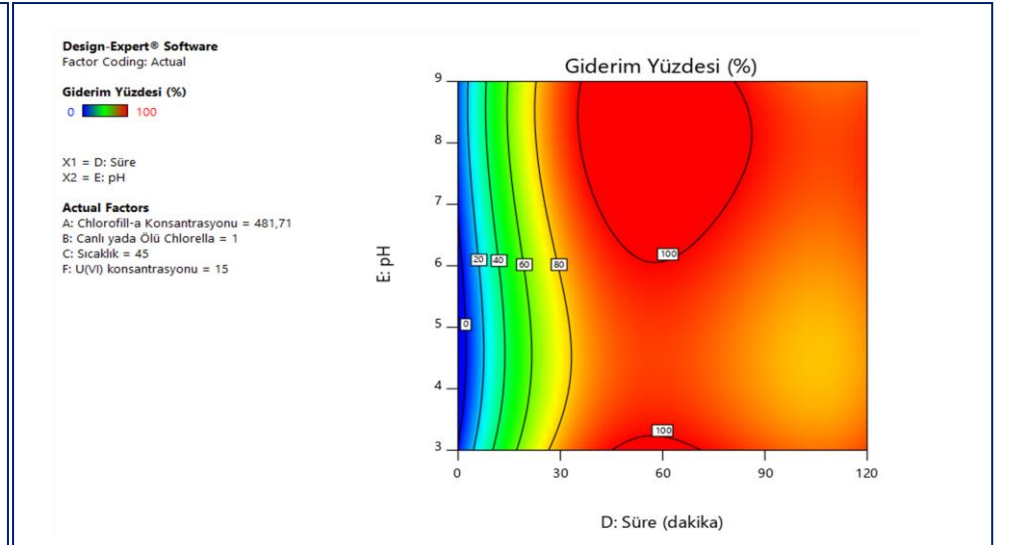
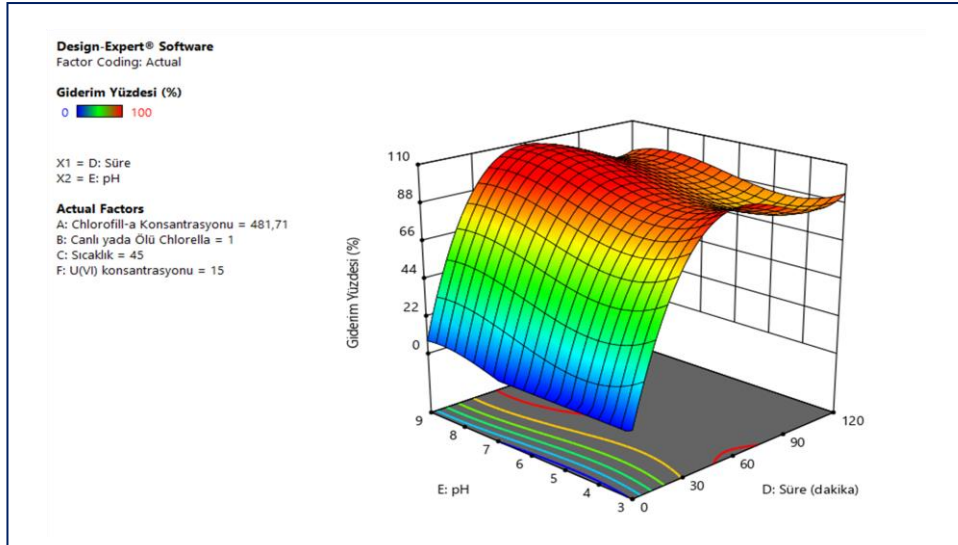
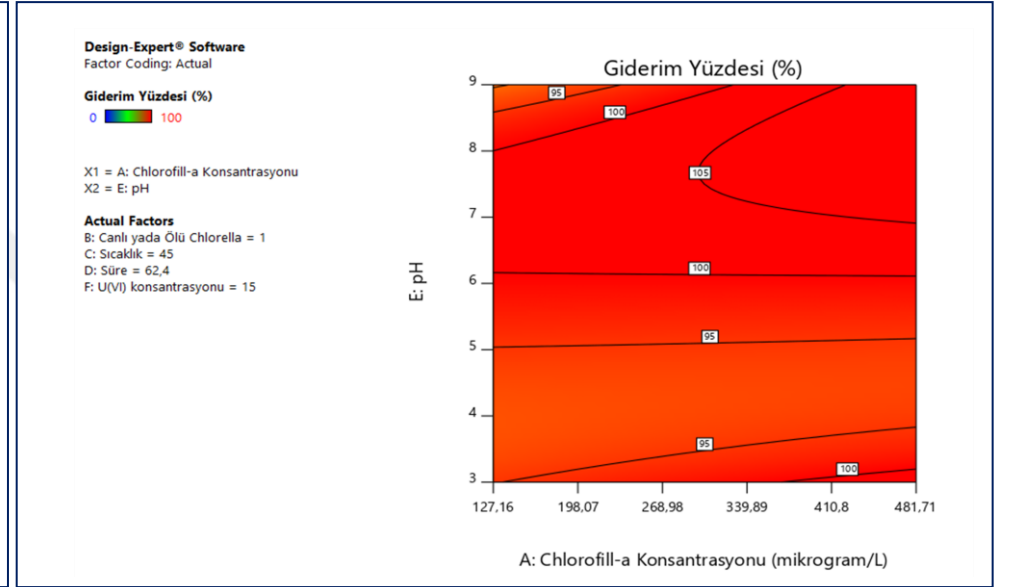
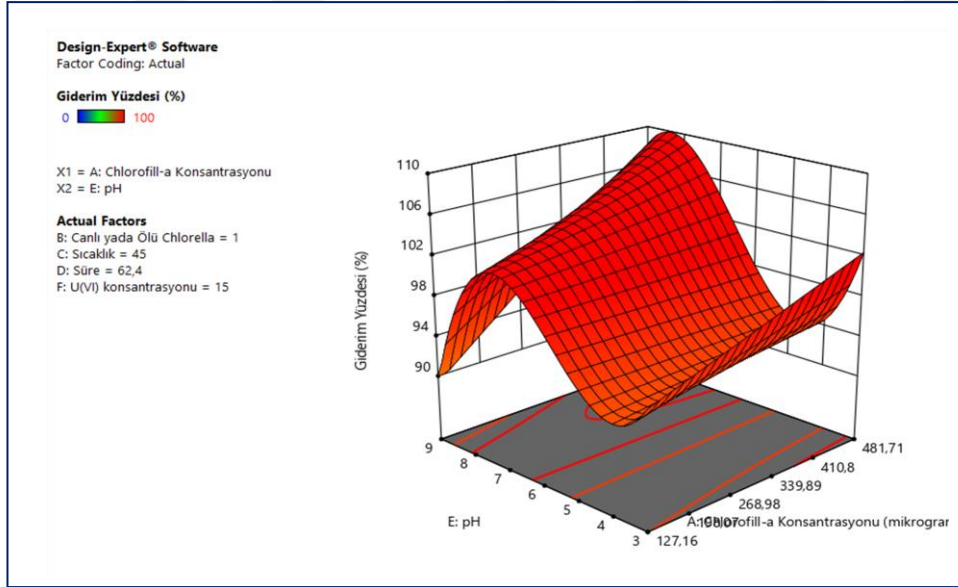
Optimum koşullar aşağıdaki gibi belirlenmiştir: pH 6-8, mikroalg konsantrasyonu 282.42mg/L, canlı mikroalg, 15mg maksimum uranyum konsantrasyonu, 45°C sıcaklık ve temas süresi 62,4 dakika.



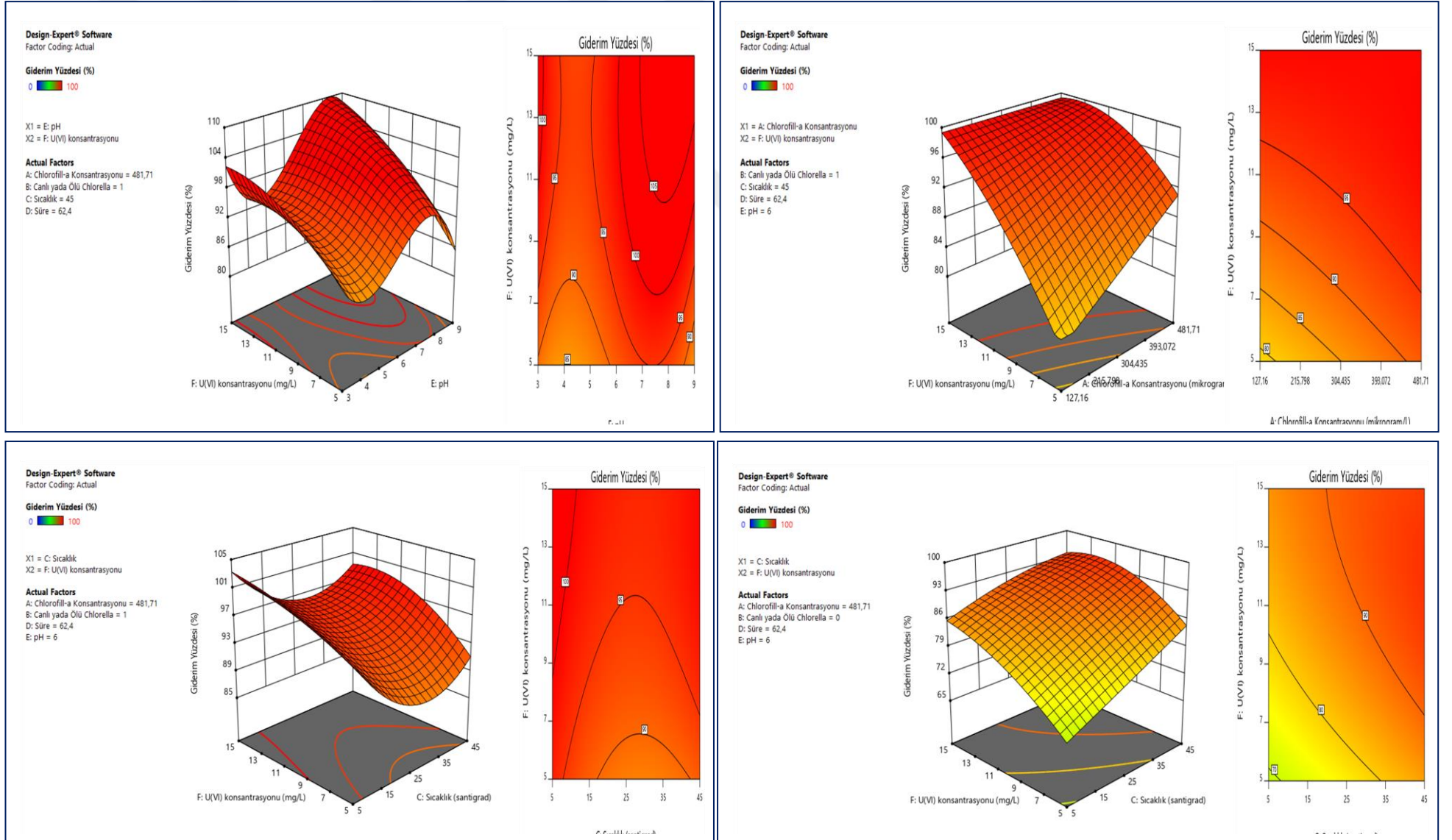
Şekil 6.51. pH-Sıcaklık Parametrelerin U(VI)'un *Chlorella* Algleriyle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-grafikleri



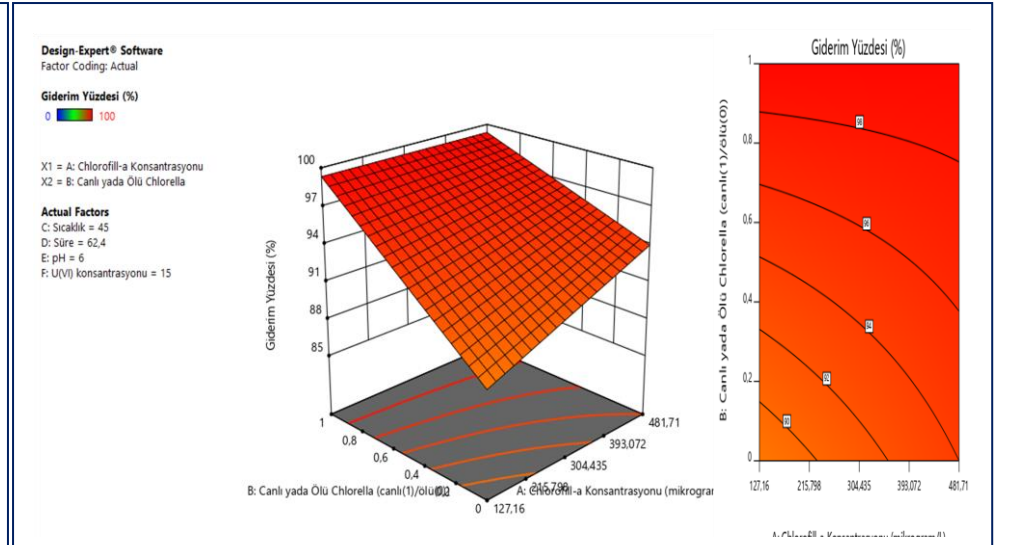
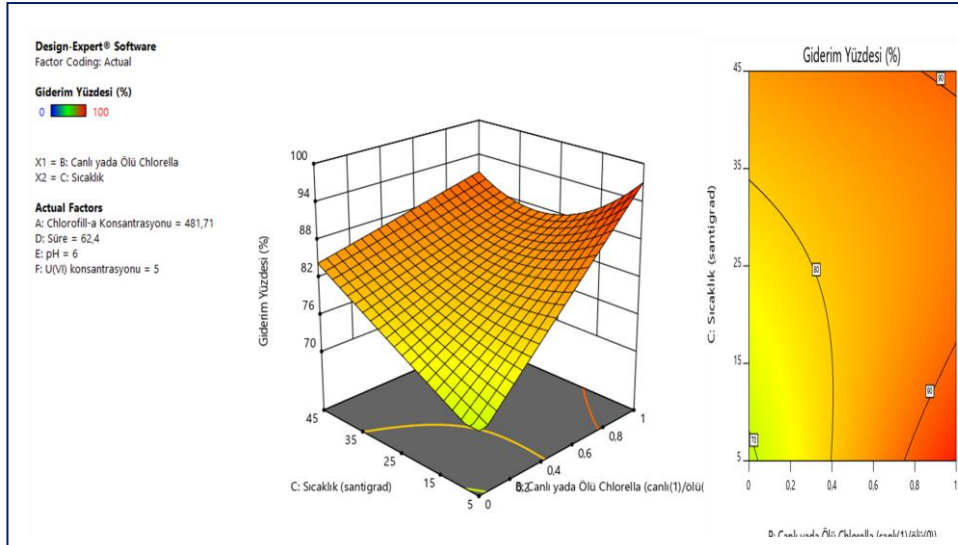
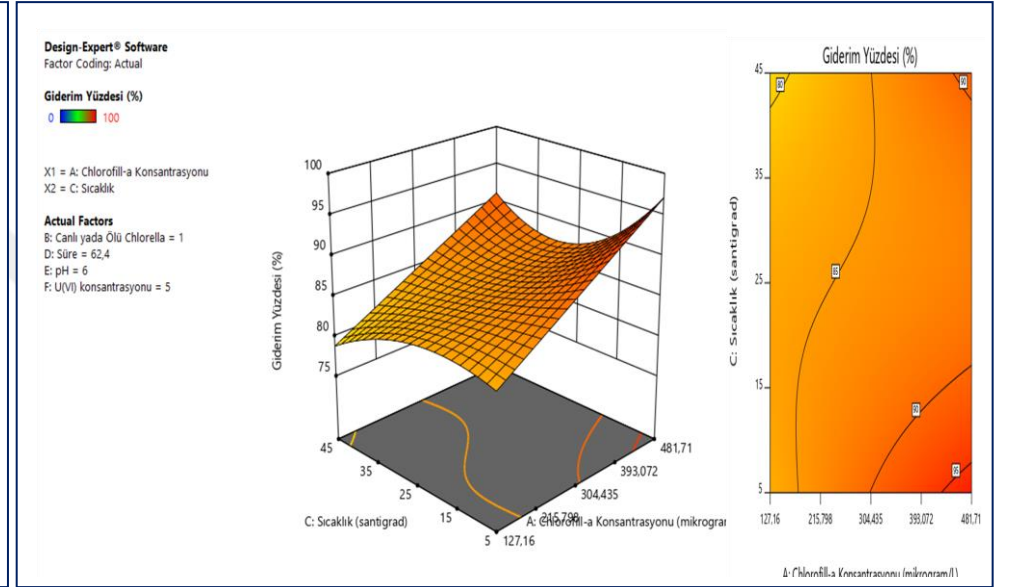
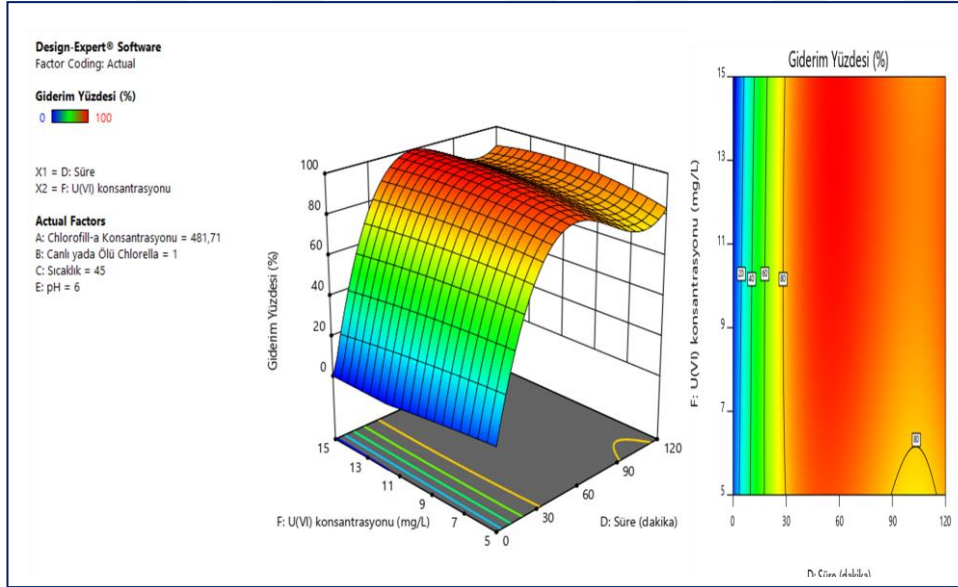
Şekil 6.52. pH-Canlı yada ölü (alg) Parametrelerin U(VI)'un *Chlorella sp.* Algleriyle Giderim Yüzdesine Olan Etkilerinin 3D-grafikleri



Şekil 6.53. pH-Alg konsantrasyonu/pH-Süre parametrelerin sudaki uranyumun Chlorella sp. Algleriyle giderim yüzdesine etkilerini gösteren 3D-



Şekil 6.54. U(VI)-pH/ U(VI)-Alg Konsantrasyonu/ U(VI)-Sıcaklık parametrelerin sudaki uranyumun Chlorella sp. Algleriyle giderim yüzdesine olan etkileri



Şekil 6.55. *Chlorella sp.* Algleriyle U(VI) Konsantrasyonu-Süre,Sıcaklık-Alg Konsantrasyonu, Sıcaklık-Canlı/Ölü, Canlı/Ölü-Alg Konsantrasyonu

6.4.7. Adsorpsiyon İzotermi Hesaplama Sonuçları

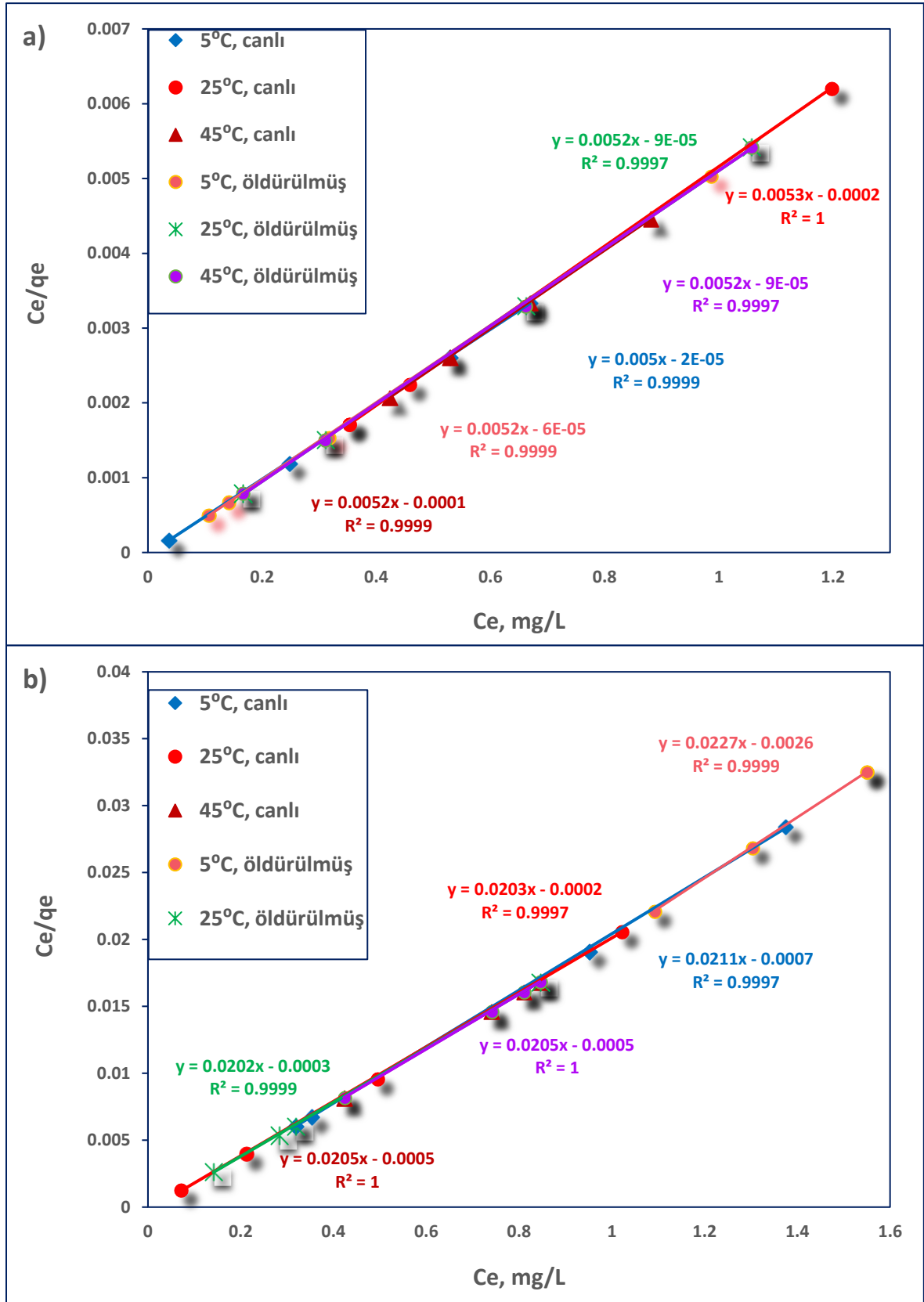
Chlorella sp. mikroalgleriyle yapılan deneylerde farklı pH değerlerinde (pH 3, 5, 7 ve 9), alg konsantrasyonlarında (71.61mg/L ve 282.42mg/L), farklı sıcaklıklar (5°, 25° ve 45°C), uranyum konsantrasyonlarında, canlı ve ölü algler ile, temas süresi boyunca (30, 60, 90 ve 120 dakika) çalışmalar yapılmıştır. Mikroalglerin birim kütlelerine adsorpladığı uranyum miktarlarının sıcaklığa ve pH'a göre değişimi EK-2'de ve belirlenen optimal şartlardakileri ise Çizelge 6.15'de verilmiştir. Çizelgeden görüldüğü gibi, ölü alglerin olduğu reaktörlerde sıcaklık ve uranyum konsantrasyonları arttıkça alglerin adsorpsiyon kapasiteleri de artmaktadır. Ancak, canlı mikroalglerle yapılan çalışmalarda ise sıcaklığa bağlı olmaksızın sadece uranyum konsantrasyonu arttıkça adsorpsiyon kapasitesinin arttığı görülmektedir. Uygulanan tüm pH değerlerinde yüksek adsorpsiyon kapasiteleri görülmektedir. Adsorpsiyon kapasitelerinin uygulanan tüm pH değerlerinde ve sıcaklıklarda canlı alglerde ölü alglere nazaran daha yüksek olduğunu da görebiliriz. Algler canlıyken çoğaldıkları ve hareket halde oldukları için uranyumla birim yüzeyinin buluşma olasılığı daha çok olmaktadır, bu yüzden canlı alglerde ölülerinkine nazaran daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi gözlenmektedir. En yüksek adsorpsiyon kapasitesi pH 7'de elde edilmiştir. Uranyum konsantrasyonu arttıkça algle buluşma olasılığı da yüksek olduğu için daha yüksek konsantrasyonlarda daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi elde edilmektedir.

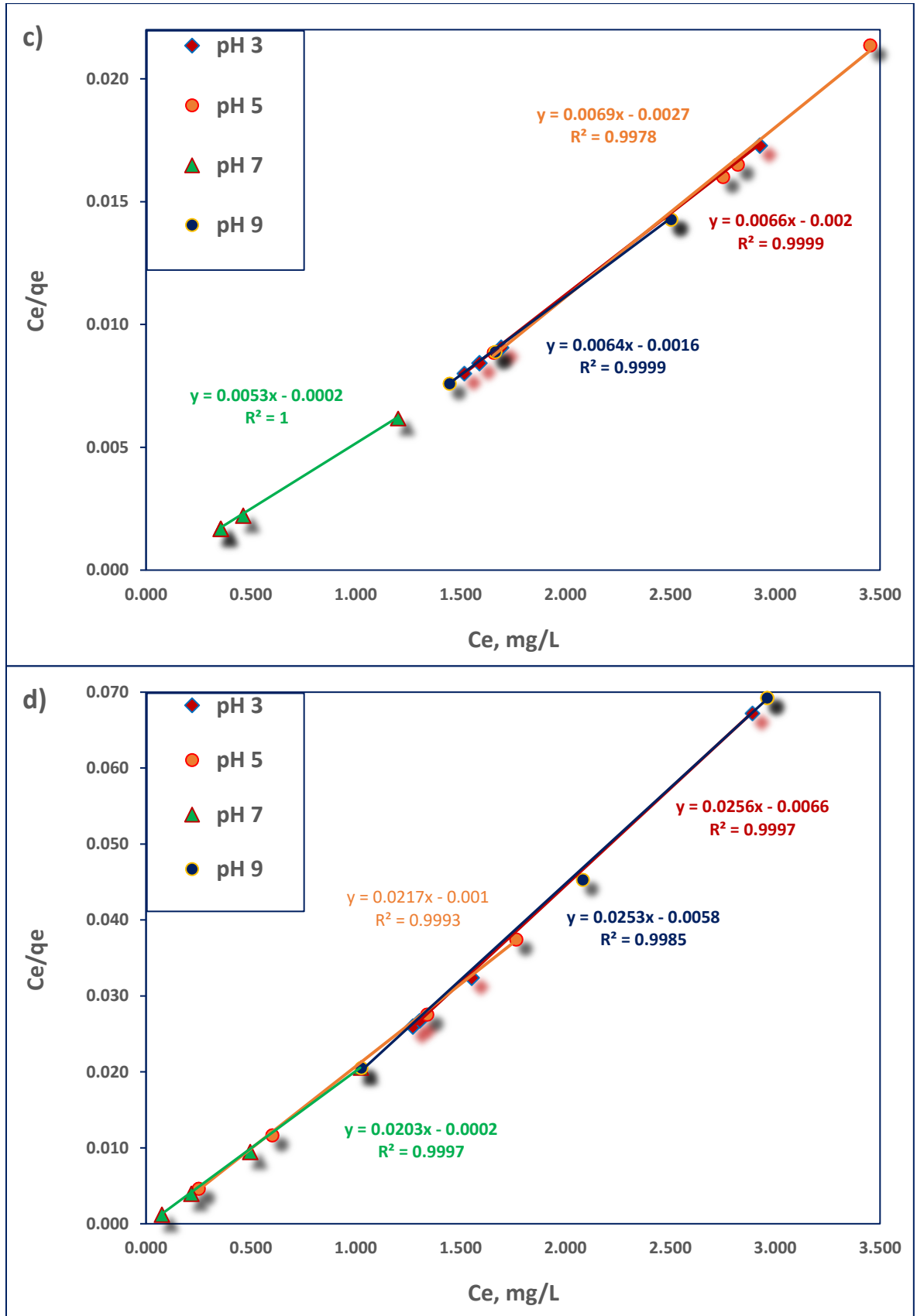
6.4.7.1. Langmuir İzotermi Hesaplama Sonuçları

Farklı reaktörlerdeki Lagmuir İzoterm hesaplama sonuçları Çizelge 6.15 ve Şekil 6.57'de gösterildiği gibidir. Çizelgede görüldüğü gibi adsorbanın (*Chlorella sp.* mikroalgleri) maksimum adsorplama kapasitesini gösteren 'a' sabitinin en yüksek değerlerine, uranyumun en yüksek konsantrasyonunda (15mg/L), pH7'de, canlı alglerde 25°C sıcaklığında ve ölü alglerde 45°C sıcaklığında ulaşılmıştır. 'a' sabitinin en düşük değeri ise tersine ölü alglerin ve en düşük uranyumun (5mg/L), olduğu en düşük sıcaklıkta (5°C) görülmektedir. Adsorpsiyon kuvvetini gösteren 'b' sabitinin en yüksek değeri canlı *Chlorella sp.* mikroalgleri ve 5mg/L uranyum bulunan reaktörde ve en düşük değeri de ölü alglerin ve 15mg/L uranyumun bulunduğu koşullarda elde edilmiştir. Reaktörlerde adsorpsiyonun elverişli olup olmadıklarını belirlemek için 'R' sabitine bakarsak, tüm reaktörlerde bu sabit pozitif olduğu için adsorpsiyonun elverişli olduğunu söyleyebiliriz.

Çizelge 6.15. Deneylerde *Chlorella sp.* Mikroalglerinin $q_e(\text{mg/g})$ ve Lagmuir İzoterm Sabitleri: a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi

a) Optimal Şartlarda (pH 7, süre 60dak., 15mgU/L) SICAKLIĞA GÖRE Lagmuir İzoterm Sabitlerinin Değişimi										
	71.61 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle					282.42 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				
Sıcaklık, canlı/ölü	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2
5°C, canlı	206	200	250.000	0.000	0.9999	48	47	30.143	0.002	0.9997
25°C, canlı	205	189	260.500	0.003	1.0000	52	49	101.500	0.0010	0.9997
45°C, canlı	197	192	52.000	0.001	0.9999	52	49	41.000	0.0020	1.0000
5°C, ısıyla öldürülmüş	196	192	866.667	0.000	0.9999	49	44	8.731	0.0080	0.9999
25°C, ısıyla öldürülmüş	205	192	57.778	0.001	0.9997	52	50	67.333	0.0010	0.9999
45°C, ısıyla öldürülmüş	190	49	41.000	0.002	0.9997	52	49	41.000	0.0020	1.0000
b) Optimal Şartlarda (25°C, canlı alg, süre 60dak, 15mgU/L.) pH'a GÖRE Lagmuir İzoterm Sabitlerinin Değişimi										
	71.61 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle					282.42 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				
Sıcaklık, canlı/ölü	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2	q_e (mg/g)	a (L/g)	b (L/mg)	R_L	R^2
pH 3	188	152	3.300	0.020	0.9999	48	39	3.879	0.017	0.9997
pH 5	170	145	2.556	0.025	0.9978	48	46	21.700	0.003	0.9993
pH 7	205	189	26.500	0.003	1.0000	52	49	101.500	0.001	0.9997
pH 9	186	156	4.000	0.016	0.9999	43	40	4.362	0.015	0.9985





Şekil 6.56. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Deneylerde **Lagmiur İzoterm** Grafikleri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklarda c) ve d) Farklı pH Değerlerinde Sırasıyla 41.54mg/L ve 282.42mg/L Alg ile

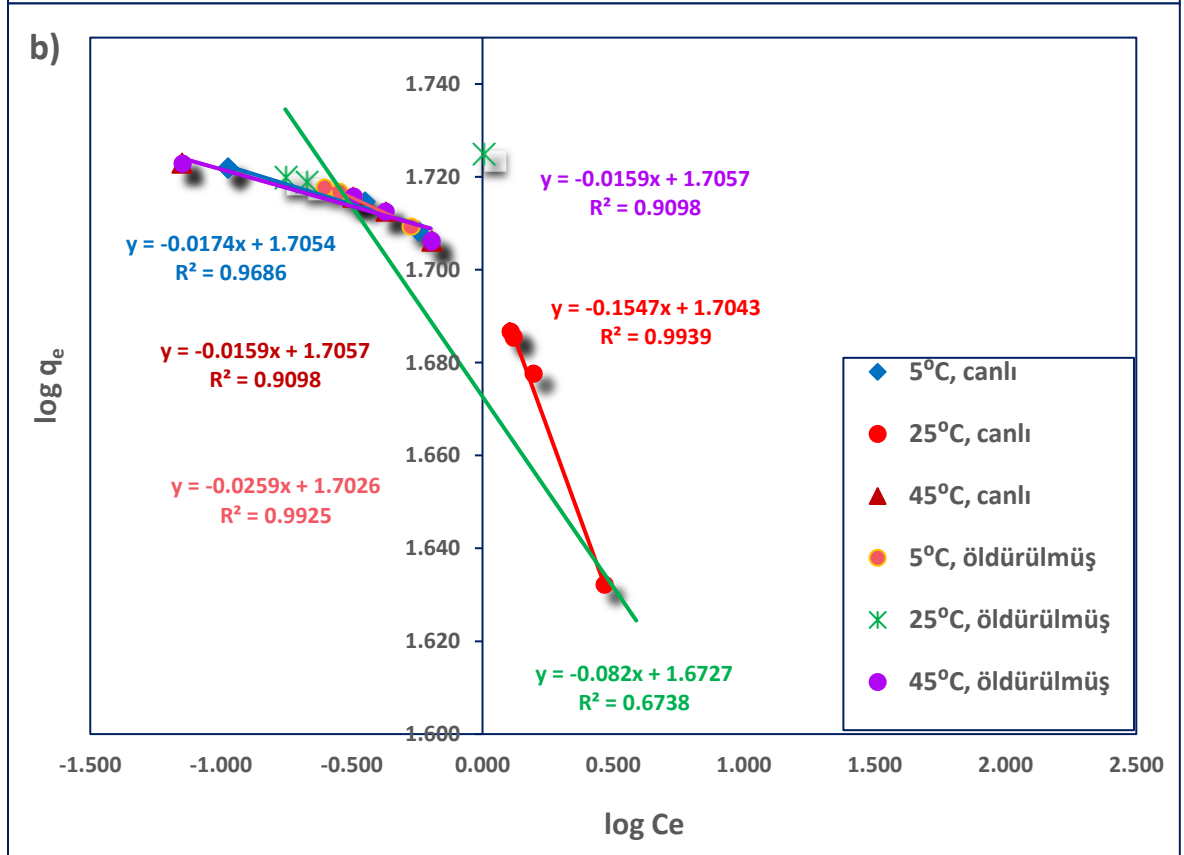
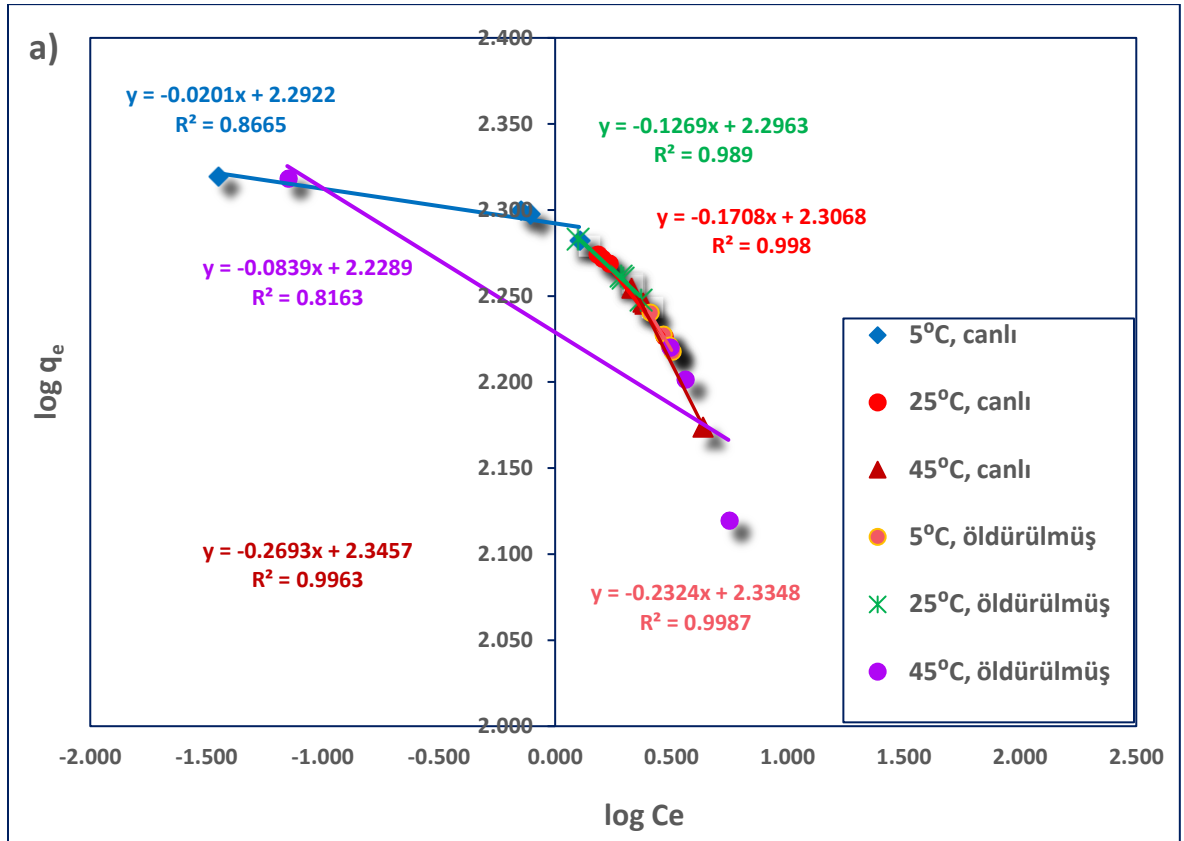
6.4.7.2. Freundlich İzotermi Hesaplama Sonuçları

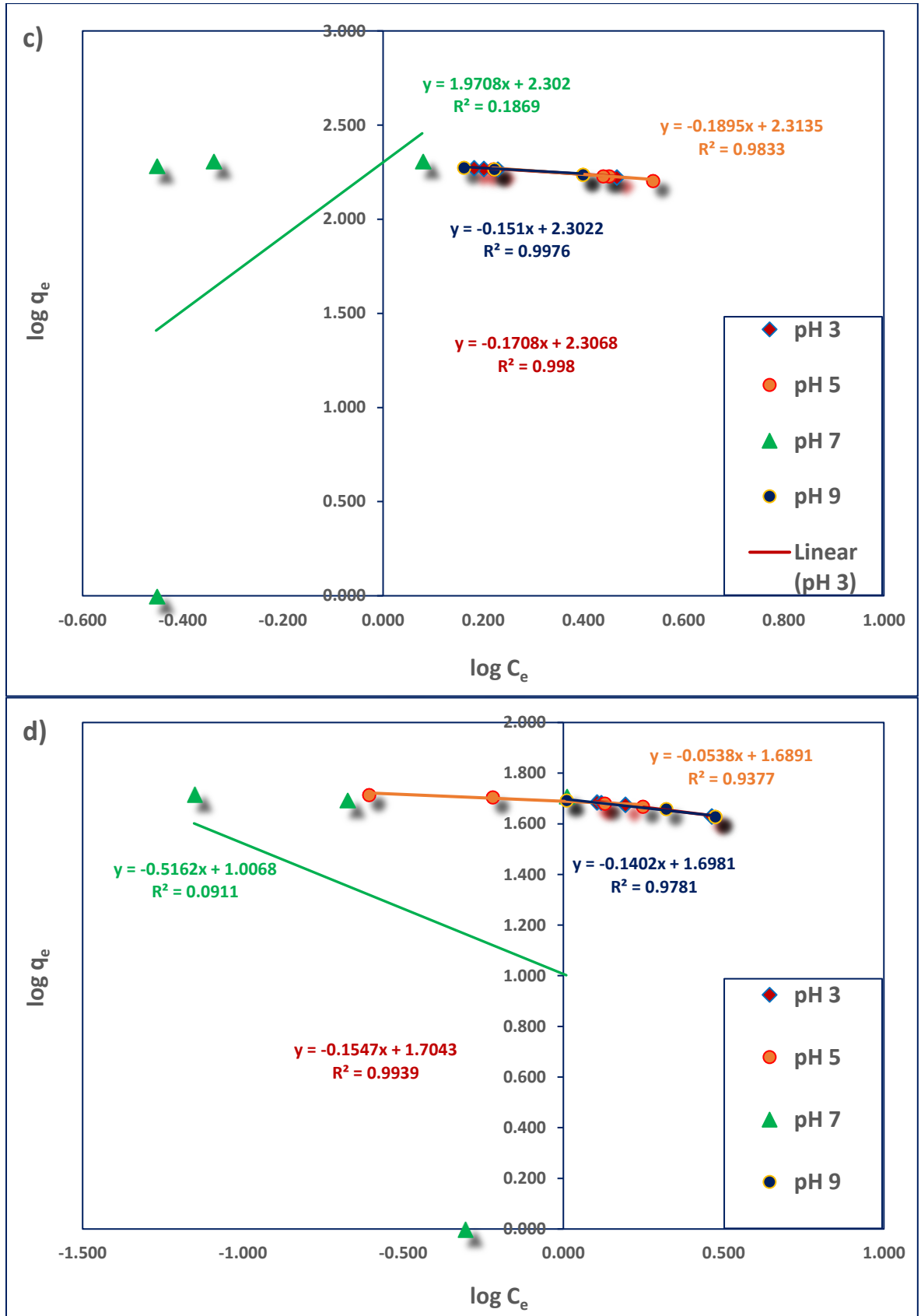
Chlorella sp. ile yapılan çalışmalarda uranyumun giderim Freundlich izotermine uygulanmış ve sonuçları Çizelge 6.16 ve Şekil 6.58’de gösterilmiştir. Adsorpsiyonun yoğunluğunu gösteren n değerlerinin 1-10 arasında olması adsorpsiyonun çok iyi olduğunun bir göstergesidir. Çizelgeden görüldüğü gibi, n sabitine göre iyi adsorpsiyon sonuçları 282.42mg/L adsorban ile yapılan deneylerde 25°C, canlı mikroalg ve pH 7’de elde edilmiştir. Bunun dışında 45°C canlı mikroalglerde yüksek adsorplama kapasitelerine ulaşılmıştır. ‘ K_F ’sabitinin yüksek değerleri adsorban ile adsorplanan maddenin birbirlerine yakınlığının oldukça yüksek olduğunun göstergesidir. Burada çizelgeden görebildiğimiz gibi tüm koşullarda bu sabitin değerleri çok yüksektir. Yani bu reaktörlerde adsorban (*Chlorella sp.* algleri) ve adsorplananın (uranyum) birbirlerine olan yakınlığı oldukça yüksektir (Şekil 6.58, Çizelge 6.16).

R^2 değerlerine bakılırsa pH 7 dışında tüm pH ve sıcaklık değerleri için Freundlich izotermi uygundur. Ancak, Lagmuir İzotermi ile kıyaslandığında R^2 değeri Lagmuir izoterminde daha yüksek olmuştur ($R^2 \geq 0,99$), dolayısıyla bu izoterme daha çok uygundur. Bu da adsorpsiyonun monolayer (tek tabaka) da gerçekleştirdiğini göstermektedir.

Çizelge 6.16. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Deneylerde Freunlich İzoterm Sabitleri (Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L): a) Sıcaklığa Göre Değişimi, b) pH'a Göre Değişimi

a) OPTİMAL ŞARTLARDA (pH 7, süre 60dak.) <u>SICAKLIĞA GÖRE FREUNDLİCH İZOTERMİ SABİTLERİNİN DEĞİŞİMİ</u>								
	71.61 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				282.42 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle			
Sıcaklık, canlı/ölü	q _e (mg/g)	K _F	n	R ²	q _e (mg/g)	K _F	n	R ²
5°C, canlı	206	196	49,751	0,8665	48	51	57,471	0,9686
25°C, canlı	205	203	5,855	0,9980	52	51	6,464	0,9939
45°C, canlı	197	222	3,713	0,9987	52	51	62,893	0,9098
5°C, ısıyla öldürülmüş	196	216	4,303	0,9987	49	50	38,610	0,9925
25°C, ısıyla öldürülmüş	205	198	7,880	0,9890	52	47	12,195	0,6738
45°C, ısıyla öldürülmüş	190	169	11,919	0,8161	52	51	62,893	0,9098
b) OPTİMAL ŞARTLARDA (25°C, canlı alg, süre 60dak.) <u>pH'a GÖRE FREUNDLİCH İZOTERMİ SABİTLERİNİN DEĞİŞİMİ</u>								
	71.61 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle				282.42 mg/L <i>Chlorella sp.</i> Mikroalgleriyle			
pH	q _e (mg/g)	K _F	n	R ²	q _e (mg/g)	K _F	n	R ²
pH 3	152	203	5,855	0,998	48	51	6,464	0,994
pH 5	145	206	5,277	0,983	48	49	18,587	0,938
pH 7	189	200	0,507	0,187	52	10	1,937	0,091
pH 9	156	201	6,623	0,998	43	50	7,133	0,978





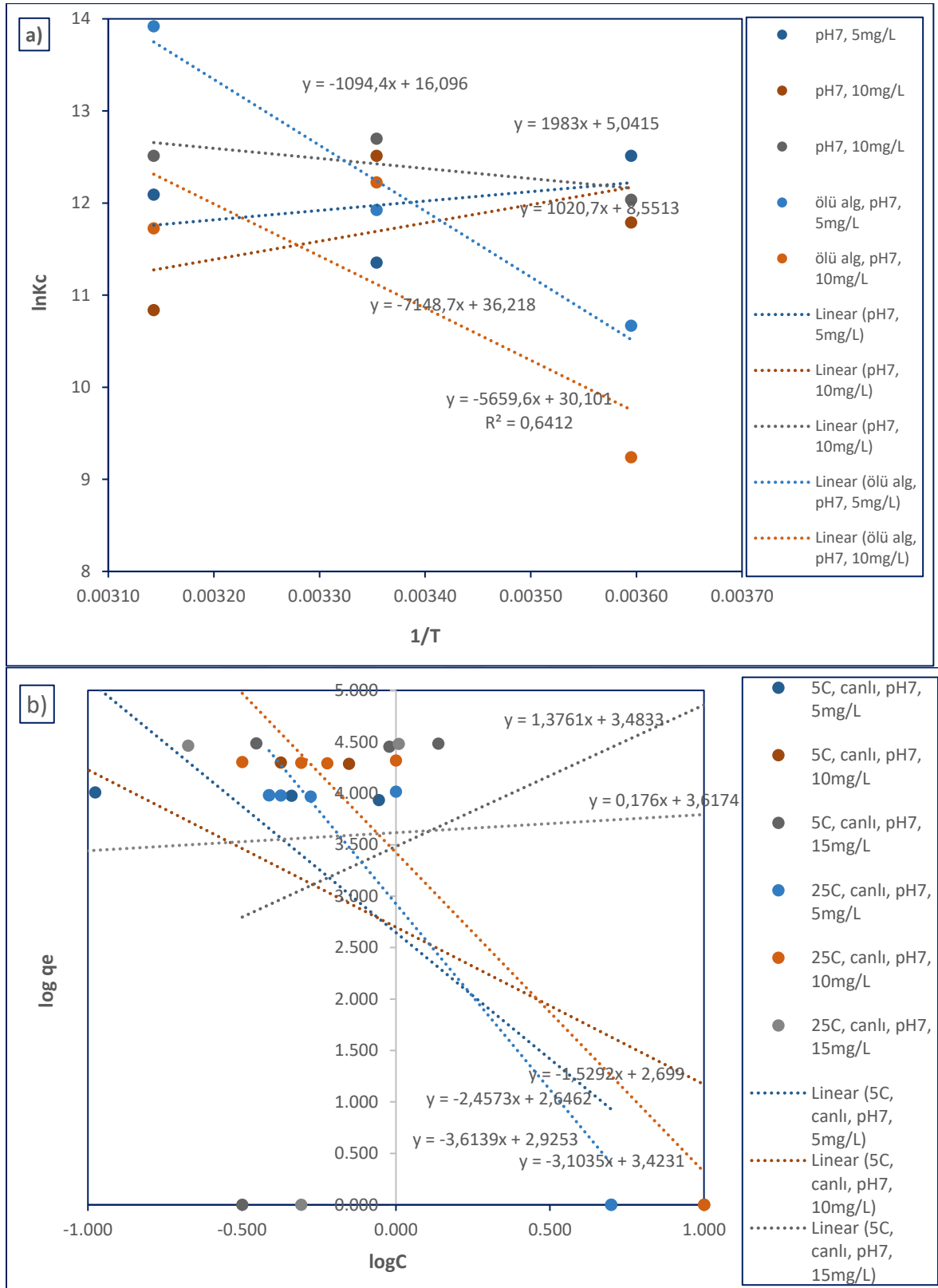
Şekil 6.57. *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Yapılan Deneylerde **Freundlich İzoterm** Eğrileri: a) ve b) Farklı Sıcaklıklar İçin, c) ve d) Farklı pH Değerleri İçin Sırasıyla 41.54mg/L ve 282.42mg/L Alg ile

6.4.8. Termodinamik Hesaplamalar

Chlorella sp. ile yapılan deneylerde termodinamik hesaplamalarda sonuçlarında elde edilen Serbest Gibbs enerjisi, entalpi ve entropi değerleri Çizelge 6.17’de verilmektedir. Buradan görüldüğü gibi, Serbest Gibbs enerji değerleri tüm reaktörler için negatif değerlerdedir. Bu da adsorplama reaksiyonun kendi kendine gerçekleşebildiğini göstermektedir. Entalpi (ΔH°) değerleri parametrelere bağlı olmaksızın bazı durumlarda negatif, yani ekzotermik iken bazı durumlarda ise pozitif, yani endotermik olduğunu görebiliriz. Bu da, uranyumun alglerle adsorpsiyonun hem enerji tüketici hem de enerji üretici olabildiğini göstermektedir. Yani bazı durumlarda sıcaklığın arttırılması giderim yüzdesini artmaktadır. Ancak reaksiyon sırasında enerji tükettildiği (ekzotermik) için sıcaklık arttırılınca giderim de artmaktadır. Burada ΔS° ’nin değerlerinin yüksek olması da çözelti ara yüzeyindeki rastlantısallığın arttığını yansıtmaktadır (Çizelge 6.17, Şekil 6.59).

Çizelge 6.17. *Chlorella* sp. Mikroalgleriyle Deneylerde Termodinamik Hesaplama Sonuçları (Süre 120 Dakika, Uranyum Konsantrasyonu 15mg/L)

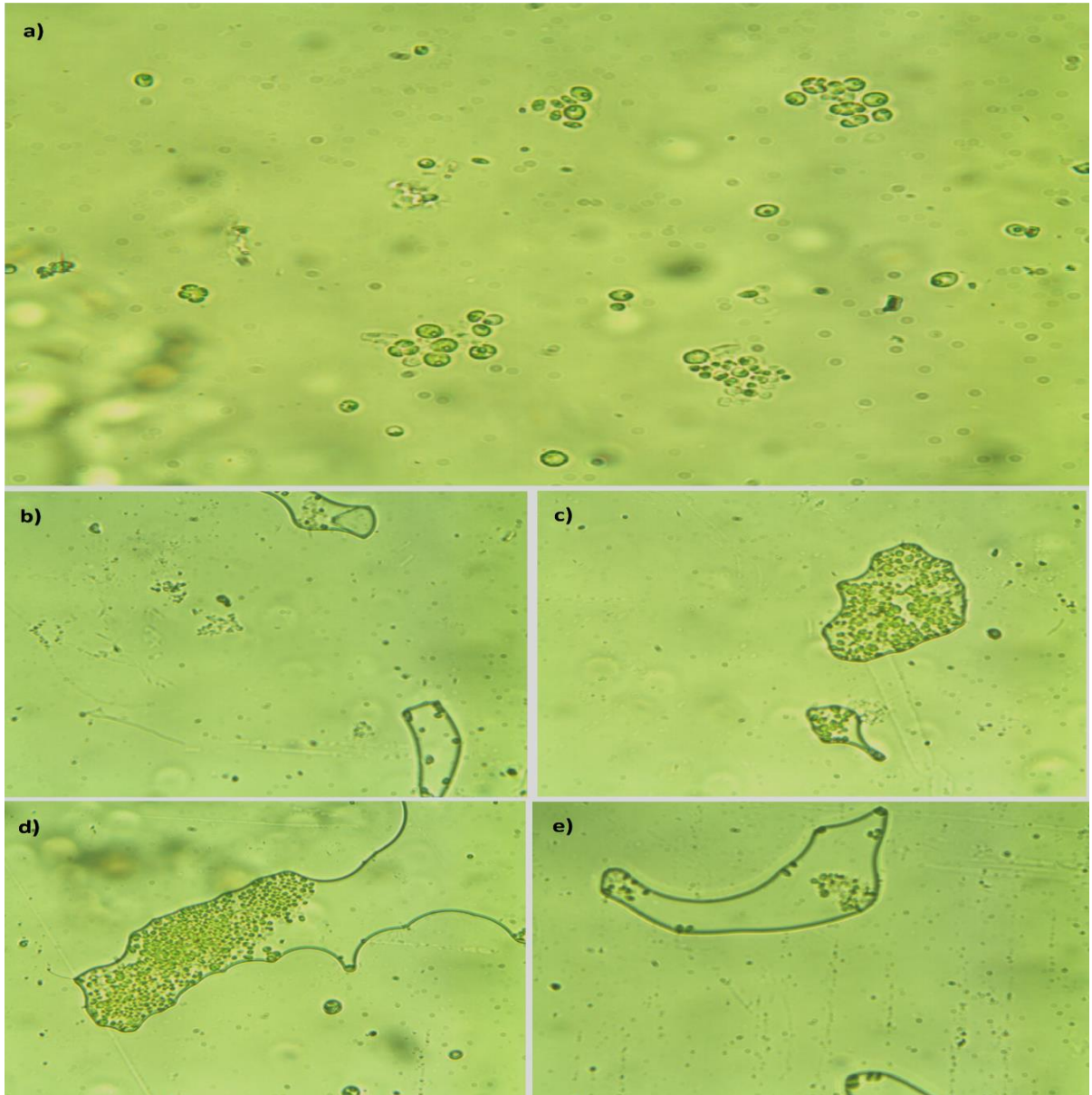
Canlı/ölü Mikroalg	Sabitler	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
		5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L	5mgU/L	10mgU/L	15mgU/L
71.61 mg/L <i>Chlorella</i> sp. Mikroalg ile													
Canlı <i>Chlorella</i> sp.	ΔH°	3666	-12938	2753	-356	-714	-1503	1021	1983	-1094	18404	-1023	2221
	ΔS°	-6	53	2	11	12	15	9	5	16	-56	14	4
	ΔG°	-5655	-6512	-6289	-6057	-6021	-6181	-6593	-6304	-6684	0	-6268	-6374
Ölü <i>Chlorella</i> sp.	ΔH°	18425	-993	911	-2129	3625	1285	-7149	-6	2648	2980	-2636	-10669
	ΔS°	-56	13	7	17	-1	7	36	30	4	2	20	46
	ΔG°	0	-3216	-3526	-3266	-3253	-3646	-5360	-4456	-4370	-4177	-4221	-4268
282.42 mg/L <i>Chlorella</i> sp. Mikroalg ile													
Canlı <i>Chlorella</i> sp.	ΔH°	3666	-883	2753	2777	3111	2608	3511	880	880	5443	4811	-386
	ΔS°	-6	14	2	0	0	1	2	4	4	-9	-6	11
	ΔG°	-2969	-4227	-4310	-2296	-2895	-2538	-2002	-3600	-3811	0	-3490	-3693
Ölü <i>Chlorella</i> sp.	ΔH°	6993	987	-65	-2164	-2079	-2950	-3807	-4068	-1356	-8443	-3061	-550
	ΔS°	-13	7	8	16	16	19	21	23	15	36	20	12
	ΔG°	0	-4227	-4310	-2296	-2895	-2538	-2002	-3600	-3811	-3072	-3490	-3693



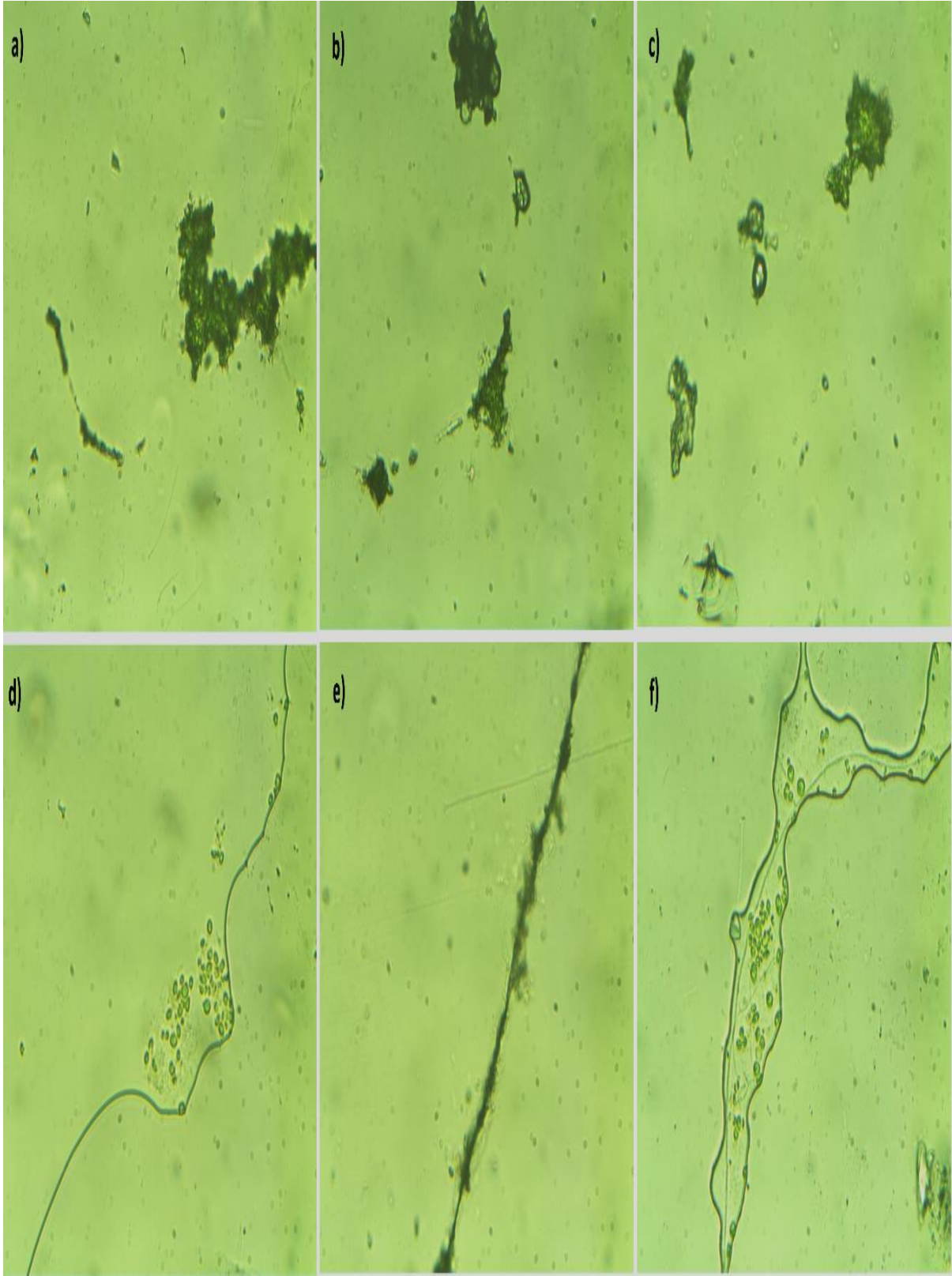
Şekil 6.58. Uranyumun *Chlorella sp.* Mikroalgleriyle Biyosorpsiyonunun Termodinamic Modelleri: a) 41.54mg/L ve b) 282.42mg/L Alg ile

6.4.9. *Chlorella* sp. Mikroalglerin Deneylerde Mikroskop Görüntüleri

Deney sonunda farklı konsantrasyonlarda uranyum (5mg/L, 10mg/L ve 15mg/L) içeren aerobik kesikli reaktörlerden örnek alınarak LEICA DFC280 mikroskobu ile 40x büyütme ile *Chlorella* sp. mikroalglerinin fotoğrafı çekilmiştir (Şekil 6.59 ve 6.60). Şekillerden görüldüğü gibi uranyum bulunmayan, sadece *Chlorella* sp. içeren örnekte algler ayrı ayrı hücreler halindedir. Uranyumun eklenmesi ile örneklerde ise mikroalglerin topaklanmış halde olduğu, uranyum konsantrasyonu arttıkça topaklanma derecesinin de arttığı görülmektedir. Uranyumu adsorplayınca algler ağırlığından dolayı çökelirken birbiriyle topaklama oluşturmaktadırlar.



Şekil 6.59. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli Reaktörlerde *Chlorella* sp. Alglerinin Mikroskop Görüntüleri: a) Uranyum Olmayan Sadece Alg olan örnek, b), c), d) ve e) 5mg/L Uranyum İçeren Örnekler.



Şekil 6.60. Farklı Uranyum Konsantrasyonları İçeren Aerobik Kesikli Reaktörlerde *Chlorella* sp. Alglerinin Mikroskop Görüntüleri: a), b), c) 10mg/L Uranyum İçeren Örnekler, d), e) ve f) 15mg/L Uranyum İçeren Örnekler

6.5. ‘Cytochrome’ Proteini ile Uranyum Giderimi

‘Cytochrome C’ enziminin yardımıyla uranyumun giderimi anaerobik koşullarda gerçekleştirilmiştir. Sudaki uranyumun anaerobik bakterilerle giderme çalışmalarının bazılarında bu bakterilerdeki uranyumun giderilmesine yol açan ana etken madde olan yükseltgenme-indirgenme reaksiyonları için sorumlu protein olan ‘Cytochrome c’ olduğu bildirmektedirler [192]. Bu çalışmalarda ‘Cytochrome C3’ proteini genetik olarak ekstrakte edilmiş mutant S.İ.B. ile bu proteine sahip S.İ.B. arasında uranyum giderimi kıyaslandığında saf ‘Cytochrome C3’ proteinin bulunmasının uranyum giderimine etkisi büyük olduğu görülmüştür. Yani uranyum gideriminde S.İ.B.’de bulunan ‘Cytochrome C3’ proteinin öneminin büyük olduğu gösterilmiştir. ‘Cytochrome C’ 1924 yılında David Keilin tarafından keşfedildiğinden bu yana çok popüler bir protein olmuştur. ‘Cytochrome C’ araştırmalarda kullanılan en yaygın proteindir. Bu proteinin bu kadar popüler olmasının birkaç sebebi vardır: 1) *Cytochrome C*; farklı çevresel aşırı şartlara karşı kararlıdır, 2) elde edilmesi kolay ve büyük miktarlarda saf olarak elde edilebiliyor, 3) protein çok çeşit haberci grupları içerdiği için çok sayıda amino asit ile bağlantı kurabilmekte, dolayısıyla spektroskop ile çok farklı yöntemlerle kolayca ölçülebilecek şekilde değişimi yapabilmekte, 4) Sentezlenen ‘Cytochrome C’ mikroorganizma hücresinin dışında da aynı işlev ve özellikleri taşımaktadır [96]. ‘Cytochrome C’ hücre dışında da hiç değişiklik olmadan indirgenme oksitlenme işlemlerinde aynı işlevleri görebildiği için bu çalışmada mayadan (yeast) sentezlenen ‘Cytochrome C’, ortamda mikroorganizma bulunmadan uranyumun indirgemelerini gerçekleştirip gerçekleştirilemediğini belirlemek için laboratuvar şartlarında anaerobik kesikli reaktörlerde uranyumun giderim deneyleri yapılmıştır. Uranyumun biyoteknolojik olarak arıtılmasıyla ilgili birçok çalışmada bakterilerdeki uranyumun giderilmesine yol açan ana etken madde olan yükseltgenme-indirgenme reaksiyonları için sorumlu proteinin ‘Cytochrome C’ olduğu bildirmektedirler [192]. Bilindiği üzere, bu proteinin sentezlenmesi kolay, yüksek sıcaklık gibi fiziksel şartlara çok dayanıklı, büyük oranda saf şekilde kolayca elde edilebilmekte ve ayrıca sentezlenen ‘Cytochrome C’ mikroorganizma hücresinin dışında da aynı işlev ve özellikleri taşımaktadır. Bu özelliklerinden dolayı bu çalışmada ‘Cytochrome C’ proteini ile hücre dışında sudaki uranyumun giderilmesi için kullanılmıştır. Deneyde kullanılan ‘Cytochrome C’ proteinin sentezi laboratuvar şartlarında gerçekleştirilmiştir.

6.5.1. U(VI) Konsantrasyonunun Değişimi

Uranyum konsantrasyonlarının (mg/L) değişimi Çizelge 6.18’de verilmiştir.

Çizelge 6. 18. U(VI) Konsantrasyonunun ‘*Cytochrome C3*’ ile Deneylerde Değişimi (mg/L)

Tarih	1. örnek	2. örnek	3. örnek	4. örnek	Ultrasaf su
1.gün	86,066	44,426	30,328	7,039	10,164
3. gün	71,803	56,885	37,377	4,832	14,918
6. gün	72,787	46,066	32,787	5,703	8,839
10. gün	54,098	39,836	25,410	6,690	10,058
% giderim	37,143	10,332	16,216	4,950	1,042

6.5.2. İndirgenmiş ve Oksitlenmiş ‘*Cytochrome C*’ Proteininin Konsantrasyonlarının Belirlenmesi

Deney sırasında indirgenmiş ve oksitlenmiş ‘*Cytochrome C*’ konsantrasyonları Çizelge 6.19 ve 6.20’deki gibidir.

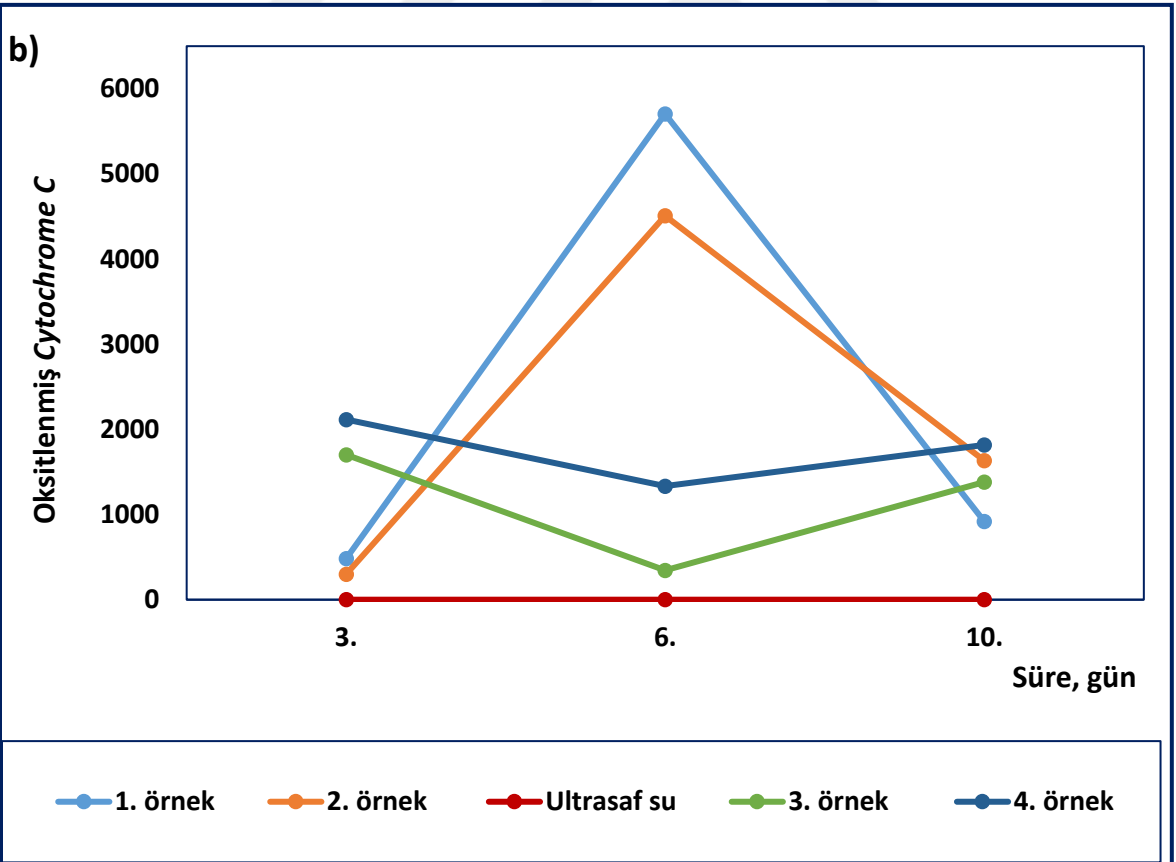
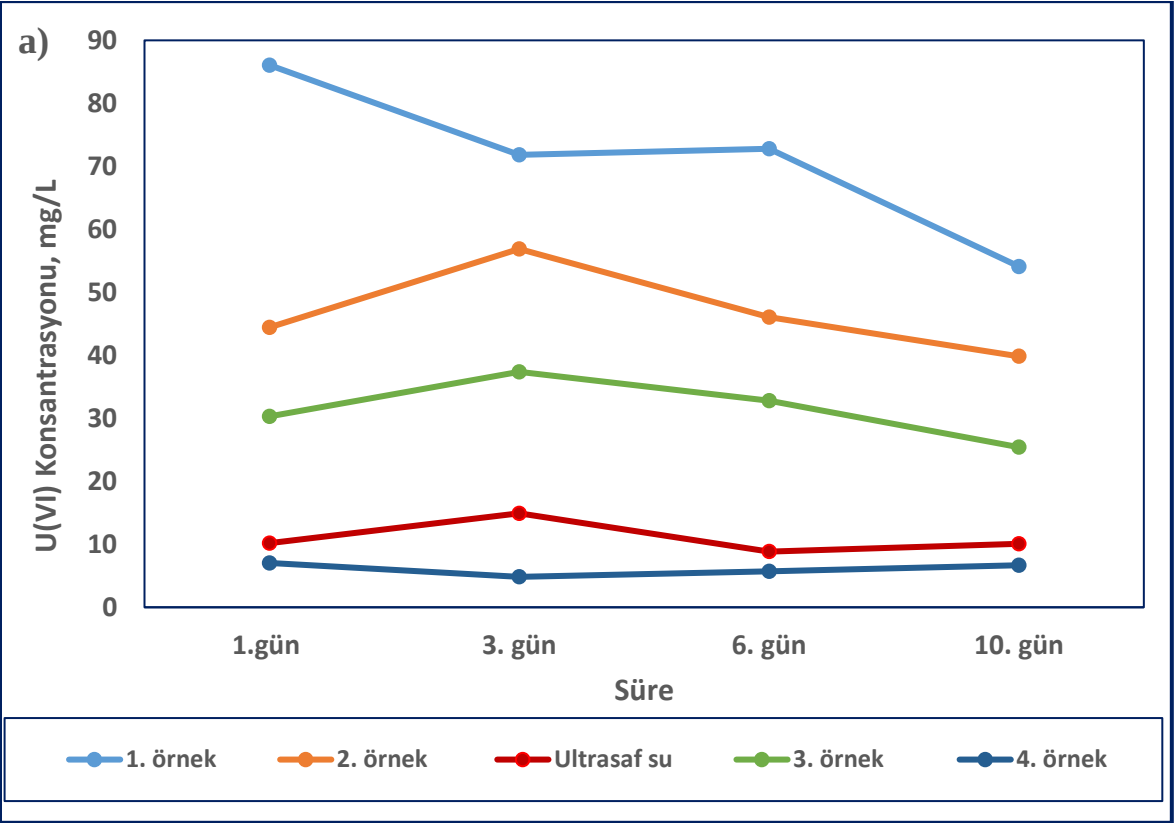
Çizelge 6.19. ‘*Cytochrome C*’ Proteininin Konsantrasyonunun Belirlenmesi, Dalga Boyu (nm)

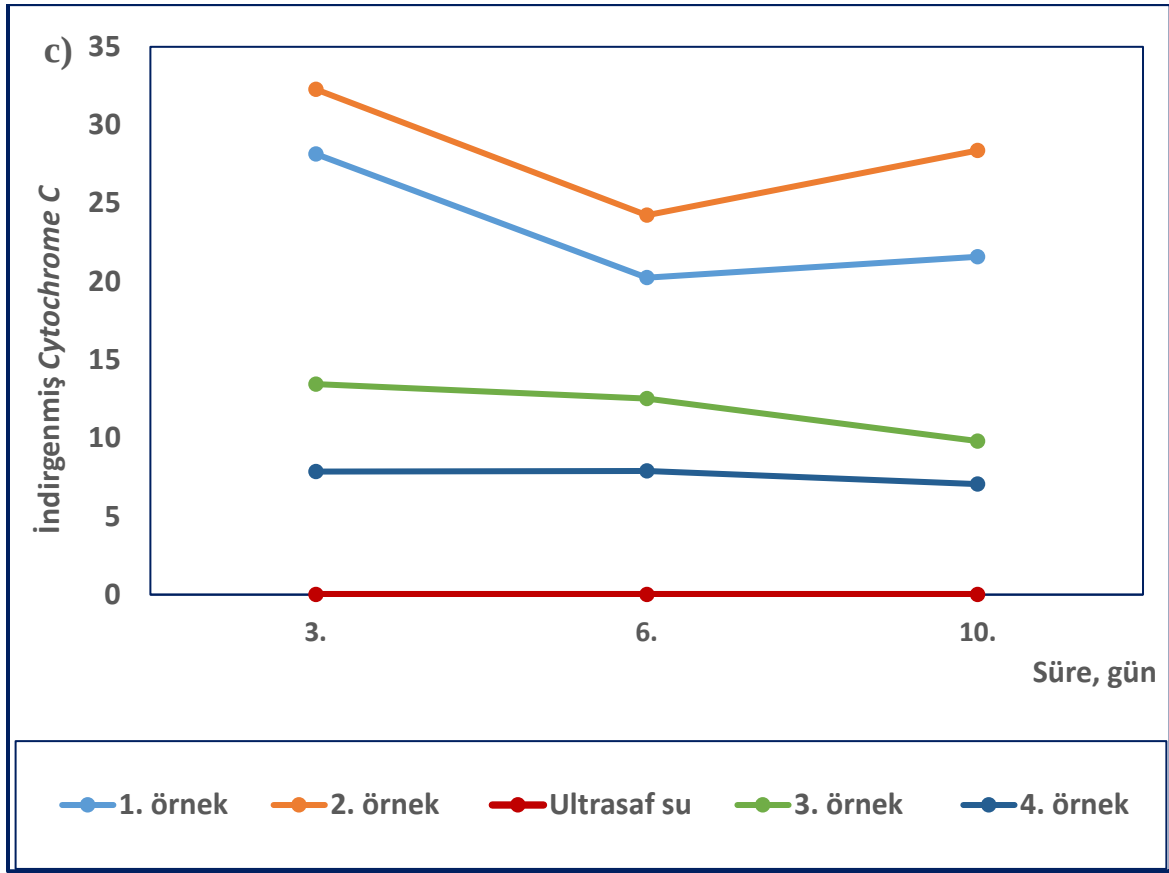
	Dalga Boyu	1. örnek	2. örnek	3. örnek	4. örnek	Ultrasaf su
3. gün	400nm	0,438	0,522	0,394	0,28	0
	490nm	0,459	0,509	0,32	0,188	0
	550nm	0,634	0,727	0,303	0,177	0
6. gün	400nm	0,551	0,5	0,318	0,283	0
	490nm	0,303	0,304	0,303	0,225	0
	550nm	0,456	0,546	0,282	0,178	0
10 ggün	400nm	0,468	0,496	0,357	0,253	0
	490nm	0,508	0,567	0,297	0,174	0
	550nm	0,486	0,639	0,221	0,159	0

Çizelge 6.20. ‘*Cytochrome C*’ Proteininin Konsantrasyonunun Hesaplanması, mg/L

		1. örnek	2. örnek	3. örnek	4. örnek	Ultrasaf su
3. gün	<i>Cytochrome C</i> oksitlenmiş	483,000	299,000	1702,000	2116,000	0,000
	<i>Cytochrome C</i> indirgenmiş	28,152	32,282	13,455	7,860	0,000
6. gün	<i>Cytochrome C</i> oksitlenmiş	5704,000	4508,000	345,000	1334,000	0,000
	<i>Cytochrome C</i> indirgenmiş	20,248	24,245	12,522	7,904	0,000
10.gün	<i>Cytochrome C</i> oksitlenmiş	920,000	-1633,000	1380,000	1817,000	0,000
	<i>Cytochrome C</i> indirgenmiş	21,581	28,374	9,813	7,060	0,000

Çizelge 6.20’de görüldüğü gibi uranyum (VI) konsantrasyonunun azalması ‘*Cytochrome C*’ proteininin oksitlenme derecesinin artmasıyla ve indirgenme derecesinin azalmasıyla hemen hemen aynıdır. Bu da uranyumun indirgenmesinin ‘*Cytochrom C*’nın oksitlenmesiyle gerçekleştiğini, yani elektronların proteinden uranyuma aktarıldığı sonucuna varılabilir. Ayrıca otoklavlanmamış örneklerde ‘*Cytochrom C*’ proteini daha çok oksitlendiğini, indirgenen protein miktarının daha fazla azaldığını ve uranyum (VI) konsatrasyonunun bu örneklerde daha çok azaldığını da görebiliriz.





Şekil 6.61. Sudaki Uranyumun 'Cytochrome C' Proteinini ile Anaerobik Kesikli Reaktörde Giderim Deneylerinde: a) Uranyumun (VI), b) Oksitlenmiş 'Cytochrome C'un, c) İndirgenmiş 'Cytochrome C'un

7. GENEL SONUÇ VE ÖNERİLER

Uranyumun biyoteknolojik yöntemlerle arıtılması ile ilgili çok sayıda araştırma yapılmasına ve başarılı sonuçların elde edilmesine rağmen bu çalışmaların uygulanmasında zorluklar bulunmaktadır. Bu yöntemler maliyeti yüksek olmamakla beraber, uygulamadaki zorluklar, uranyumla kontamine olmuş suların tehlikelik derecesinin bilinmemesi yada önemsenmemesindendir. Böylece sudaki uranyumun arıtılması ile ilgili araştırmaların çok olması ama hayatta uygulanmamasının ana nedeni: onun asıl tehlike derecesinin ancak bilim adamları arasında bilinmesi ve geniş kitlenin bundan haberinin olmayışındandır.

Bu tez çalışmasında uranyum hem anaerobik karışık bakterilerle hem de mikroalglerle arıtımında optimal şartlar altında %90'nın üzerinde giderim elde edilmiştir. Bu yöntemlerin özellikleri ve avantajlı/dezavantajlı yönleri aşağıda verilmiştir.

7.1. Anerobik ve Aerobik Kesikli Reaktör Deneylerinin Sonuçlarının Kıyaslanması

Bu çalışmada uranyumun giderimi 4 çeşit mikroorganizma türleriyle gerçekleştirilmiştir: U.D.K.M., S.İ.B., *Scenedesmus sp.* mikroalgleri ve *Chlorella sp.* mikroalgleriyle. Optimal şartlar sağlandığında tüm çalışmalarda %80-99 arası uranyum giderim yüzdeleri elde edilmiştir. Genel olarak uranyumun giderimi anaerobik bakterilerle ve mikroalglerle olmak üzere 2 farklı yöntemle yapılmıştır. Kullanılan bu yöntemlerin avantajlı ve dezavantajları Çizelge 7.1'de özetlenmiştir.

➤ Anaerobik bakterilerin, insan kullanımı amacıyla agresif asit/bazlarda çözünen U(VI) haline oksitlenen uranyumun doğal çözünmeyen U(IV)'e geri indirgeme kapasitesine sahip oldukları keşfedildiğinden beri uranyumla kontamine olmuş suların anaerobik bakterilerle arıtılmasına olan ilgi da son 20 yılda artmıştır. Bu tez çalışmasında anaerobik çamurdaki karışık anaerobik bakterilerin ve karışık S.İ.B.'lerin uranyumun biyoremedasyonu için kullanılabilirliklerinin değerlendirilmesi üzerinde durulmuştur. Suların in-situ biyoremedasyonu için karışık bakteri kültürleri saf kültürlerle göre avantajlıdır, zira büyük hacimlerde suların biyolojik arıtımında, çevrede mikroorganizmaların çokluğu nedeniyle kültürün saflığını korumak zordur. Bu çalışmada kullanılan U.D.K.M. anaerobik çamurdaki anaerobik bakterilerin 1000mg/L uranyum konsantrasyonuna bile dayanıklı olarak geliştirilmiştir. Hem U.D.K.M. hem de izole edilen S.İ.B.'ler 7 gün içinde hızlı şekilde 25-35mg/L yoğunluklarına ulaşmışlardır. S.İ.B.'ler çoğalma sırasında türlerine özgü olan siyah çökelti ve keskin kokulu H₂S gazı oluşturmuşken, U.D.K.M'ların çoğalmasında herhangi bir çökelti, gaz ve koku oluşmamıştır. Çalışma sırasında sülfat konsantrasyonları S.İ.B.'lerde

uranyum giderimi sırasınca sürekli azalırken, U.D.K.M.'larla yapılan deneylerde sülfat konsantrasyonu tersine artmıştır. Bu da S.İ.B.'lerde uranyumun indirgenmesinin sülfat indirgeyen bakterilerle gerçekleştiğini ve U.D.K.M.'larda ise sülfat indirgeyen bakterilerin bulunmadığını göstermektedir. U.D.K.M.'ların tür belirlenmesi sonucu gram pozitif koklar ve gram pozitif basiller tespit edilmiştir. Hem U.D.K.M.'larla hem de S.İ.B.'lerle yapılan çalışmalarda uranyumun giderimin negatif ORP değerlerinde yani indirgeyici şartlarda daha yüksek olması uranyumun bu bakterilerle indirgenerek giderildiğini göstermektedir. Genel olarak S.İ.B.'ler ve U.D.K.M.'lar için aşağıdaki gibi sonuçlar elde edilmiştir:

1) Anaerobik ve aerobik kesikli reaktör deneylerin sonucunda görüldüğü gibi, sudaki uranyumun en yüksek giderimi S.İ.B. ile yapılan deneylerden elde edilmiştir. Burada giderim %95.4 ila %99,9 arasında gerçekleşmiştir. Bakterilerin izolasyonunun kolay olması izolasyonu ve çoğaltılması için pahalı olmayan basit besi ortamına ihtiyaç duyulması ve bakterilerin hızlı çoğalması burada avantaj olmaktadır. Sudaki uranyumun giderimi 7-10 gün gibi zaman diliminde gerçekleşmektedir. S.İ.B. ile sudaki uranyumun gideriminde optimal şart olarak nötr ve bazik pH ve negatif ORP (-50mV, -100mV) olduğu belirlenmiştir. Dezavantajlı yanı olarak zehirli H₂S gazı ve siyah FeS çökeltisi oluşturması gösterilebilir. Ancak, H₂S gazı ve siyah FeS çökeltisinin oluşması bir yandan dezavantaj iken bir yandan da uranyumun gideriminin artmasına yol açmaktadır. Zira S.İ.B. ile sülfatın indirgenmesi sonucu ortaya çıkan hidrojen sülfür (H₂S) gazı da U(VI)'yı U(IV)'e indirgemektedir. Hem de asidik olan uranyum atık sularındaki sülfatın da bir yandan giderilmesi gerçekleşmektedir. Oluşan siyah FeS çökeltisi ise, S.İ.B. ile uranyumun gideriminde inhibe edici etki yaratan metallerin de çökmesine yol açarak uranyumun inhibe etkisini azaltmaktadır. Termodinamik hesaplama sonuçları uranyumun karışık S.İ.B.'lerle gideriminin enerji açısından elverişli olduğunu göstermektedir (negatif Serbest Gibbs enerji). Kinetik hesaplamalar sonu uranyumun giderim hızının karışık S.İ.B.'lerde ($k = 1,44 - 1,68 \text{ mg U(VI)}/\text{mg S.İ.B.} \cdot \text{saat}$) tek tür S.İ.B.'lere ($k = 4,28 \text{ mg U(VI)}/\text{mg S.İ.B.} \cdot \text{saat}$) nazaran daha düşük olduğu belirlenmiştir.

2) U.D.K.M. ile sudaki uranyumun gideriminde %78.1 ila % 96.3 arasında giderim sonucu elde edilmiştir. Bu mikroorganizmaların da çoğaltılması kolay ve ucuzdur. Giderim 3-8 gün içerisinde sağlanmaktadır. Burada da optimal şart olarak nötr ve bazik pH ve negatif ORP (-50mV, -100mV) olduğu belirlenmiştir. S.İ.B.'lere nazaran H₂S gazı ve siyah çökeltiler oluşturmamaktadır. Bu karışık mikroorganizmalarla sudaki uranyumun yaklaşık %22-33 oranında bioadsorpsiyonla, %5-10 biyoakümülyasyonla ve geride kalan kısmı da enzimatik

indirgemeyle (yaklaşık %70'nin) giderildiği de tespit edilmiştir. En önemli avantajı; uranyumun çok yüksek konsantrasyonlarına da (1000mg/L) dayanıklı oldukları için yüksek konsantrasyonlarda uranyum içeren nükleer santrallerin radyoaktif atıksularının arıtımında da kullanılabilmesidir. Termodinamik hesaplama sonuçları uranyumun U.D.K.M.'larla gideriminin enerji açısından elverişli olduğunu göstermektedir (negatif Serbest Gibbs enerji). Kinetik hesaplamalar sonucu uranyumun giderim hızının U.D.K.M.'lar ($k = 0.011\text{saat}^{-1}$) ile saf tük anaerobik bakterilere ($k = 0,16\text{saat}^{-1}$) göre daha düşüktür. Yani saf kültürler göre oksitleyici faktörlere karşı daha dayanıklıdır.

Uranyumun gideriminde U.D.K.M./S.İ.B.'lerin kullanılması yüksek giderimlerin elde edilmesini sağlamıştır.

➤ Uranyumun mikroalglerle giderimi ile ilgili yapılan çalışmalar sayısı sınırlıdır ve bunların mikroalglerin öldürülmüş kuru yada yaş türleriyle gerçekleştirilmiştir. Bu çalışmanın özelliği, uranyumun gideriminin mikroalglerin hem canlı hem de ısıyla öldürülmüş yaş türleriyle gerçekleştirilmesidir. Yani mikroalglerin doğada in-situ olarak uranyumun gideriminde kullanılıp kullanılmayacağını belirlemek için canlı vve ölü mikroalglerle uranyum giderim çalışmaları yapılmıştır. Sonuçta canlı mikroalgler, ısıyla öldürülmüş mikroalglere nazaran daha yüksek uranyum giderimi sağlamıştır. Canlı alglerle optimal şartlar sağlandığında %97-100 arası giderim elde edilmişken, ısıyla öldürülmüş mikroalglerle bu değer %89-99 olmuştur. Mikroalglerin in-situ olarak doğal sulardaki uranyumun gideriminde kullanılabilirliğini belirlemek için farklı doğal fiziksel-kimyasal şartlar altında çalışmalar yapılmıştır. Burada doğanın kış (5°C), bahar (25°C) ve yaz (45°C) sıcaklıkları, kullanılmıştır. Uranyumla kirli sular uranyumun cevherinden çıkartılması için asit kullanıldığı için genelde asidiktirler ($\text{pH} < 5$), ama bazı durumlarda güçlü bazlar da kullanıldığı için agresif bazik da olabilmektedir ($\text{pH} > 9$) ve uranyumla kirlenmiş bazı doğal sular da nötrdür ($\text{pH} = 6-8$). Bu yüzden bu çalışmada uranyumun giderimi farklı pH'da (pH 3, 5, 7 ve 9) gerçekleştirilmiştir. Hem *Scenedesmus sp.* hem de *Chlorella sp.* mikroalgleriyle yapılan çalışmalarda canlı mikroalglerle ısıyla öldürülmüş mikroalglere nazaran %5 – 20 daha fazla uranyum giderimi olmuştur. Canlı mikroalgler, öldürülmüş olanlara nazaran uranyumu biyosorpsiyonun yanı sıra biyoakümülyasyonla da bünyesine almaktadır. Dolayısıyla burada ısıyla öldürülmüş ve canlı mikroalglerin giderim yüzdelerinin farklarına bakarak uranyumun yaklaşık %5-20'sinin mikroalgler tarafından biyoakümüle edildiği, kalan %80-90 kısmının da biyosorpsiyonla giderildiği sonucu belirlenmiştir. *Scenedesmus*

sp. hem de *Chlorella sp.* mikroalglerin 1 hafta ve 2 hafta sürelerde büyütülen konsantrasyonlarıyla ayrı ayrı giderim çalışmaları yapılmıştır. *Chlorella sp.* mikroalglerinin *Scenedesmus* göre daha hızlı olarak büyüdüğü görülmüştür. 1 ve 2 haftada *Chlorella sp.* 71mg/L ve 282mg/L yoğunluğuna kadar büyümüşken, *Scenedesmus sp.* bu zaman süresince ancak 42mg/L ve 116mg/L yoğunluğuna kadar ulaşabilmiştir. Ancak konsantrasyonu daha düşük olmasına rağmen *Scenedesmus sp.* daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi vermiştir ve en yüksek q_e **360mgU/g**(canlı mikroalg ağırlığı) olmuştur. Giderim yüzdeleri her iki mikroalg türleri için yüksektir. Yani *Scenedesmus sp.* mikroalg türleri *Chlorella sp.* nazaran daha yavaş büyümesine rağmen hemen hemen aynı oranda uranyumu gidermektedir. Dolayısıyla sudaki uranyumun giderimi için her iki mikroalg türlerinin kullanılması uygundur. Her iki mikroalg için de Box-Behnken programı ve ANOVA istatistiksel analizinin yardımıyla aynı optimal şartlar belirlenmiştir: 6-8 pH değeri, canlı mikroalg türleri, 15mg maksimum uranyum konsantrasyonu, sıcaklık canlı mikroalgler için 25°C ve ısıyla öldürülmüş için 45°C'dir ve temas süresi 62,4 dakika. *Chlorella sp.* ve *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle ayrı ayrı yapılan çalışmalar sonucu aşağıdaki sonuçlar elde edilmiştir:

1) *Chlorella sp.* ile mikroalglerin konsantrasyonuna, uranyum konsantrasyonlarına ve alglerin canlı ve ölü olmasına bağlı olarak **%90 - %100'a kadar uranyum giderimi** elde edilmiştir. Adsorpsiyon hızlı olup ilk 30 dakikada tamamlanmıştır, ancak 60 dakikada dengeye ulaşılmıştır. Uranyumun başlangıç konsantrasyonu 5mg/L'den 15mg/L'ye arttıkça uranyumun adsorpsiyon kapasitesi de 60mg/g'dan 200mg/g'a kadar sürekli artmıştır. Canlı mikroalglerle uranyumun giderim yüzdesi pH'a göre değişimi: pH 7 > pH 5 > pH 9 > pH 3'dir, ısıyla öldürülmüş mikroalglerle ise: pH 7 > pH 9 = pH 3 > pH 5 olarak belirlenmiştir. Mikroalgler canlı iken en yüksek giderim 25°C'de elde edilmişken, ısıyla öldürülmüş mikroalglerde sıcaklık arttıkça giderim sürekli artmış ve en yüksek giderim 45°C'de elde edilmiştir. Kullanılan mikroalg konsantrasyonu daha düşük iken (71.61mg/L) canlı mikroalg ile ölü mikroalg giderim yüzdeleri arasında fark %10 olup canlı alglerle daha fazla giderim olmuştur. Mikroalg konsantrasyonu 282.4mg/L iken ise yine canlı mikroalglerle ölülere nazaran daha yüksek giderim olmasına rağmen arasındaki fark ancak %5 arasındadır. Nötr pH değerlerinde (pH 5 ve 7), hem canlı hem ısıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde q_e (mg/g) değeri 5°C'den 25°C'ye kadar azalmakta ve 25°C'den 45°C'ye kadar tekrar artmaktadır, yani en yüksek biyosorbans 25°C'dedir. 71.61mg/L alg içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde, **5, 25 ve 45°C** sıcaklıklarda canlı alglerle yapılan deneylerde **q_{max} (mg/g)** değerleri sırasıyla; **209, 205 ve 204'dır**. Isıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde ise

$q_{\max}$ (mg/g) degerleri sırasıyla; **208, 207 ve 208'dir**. Asidik (pH 3) ve bazik (pH 9) şartlar altında ise genel olarak canlı algler olan reaktörlerde sıcaklıkla arttıkça q_e (mg/g) değeri azalmakta, ısıyla öldürülmüş algler olan reaktörlerde ise tersine sıcaklık arttıkça sürekli artmaktadır. Bu durum aşağıdaki gibi açıklanabilir: nötr pH değerleri (pH 5 ve 7) alglerin canlı kalabilmesi için en çok elverişli olan şarttır ve bundan dolayı algler çoğunlukla canlı kaldıkları için uranyumun giderimi algler için optimal sıcaklık olan 25°C'de en yüksektir. Canlı algler adsorpsiyonun yanı sıra biyoakümüleyasyonla da uranyumu bağlayabilmektedirler. Mikroalg konsantrasyonu daha düşük iken (71.61mg/L), farklı sıcaklıklar, başlangıç uranyum konsantrasyonları ve canlı/ölü mikroalgleri için en yüksek giderim pH 7'de elde edilmiştir. mikroalg konsantrasyonu yüksek iken (282.42mg/L) tüm şartlarda (farklı sıcaklıklar, başlangıç uranyum konsantrasyonları ve canlı/ölü mikroalgleri) en yüksek uranyum giderimi pH 4'te olduğu belirlenmiştir. *Chlorella sp.* mikroalglerinin konsantrasyonu daha yüksek olan deneylerde (282.42mg/L) daha yüksek giderim elde edilmiştir. İzoterm hesaplamalar sonucu da maksimum adsorplama kapasitesini gösteren 'a' sabitinin en yüksek değerlerine, uranyumun en yüksek konsantrasyonunda (15mg/L), pH7'de, canlı alglerde 25°C sıcaklığında ve ölü alglerde 45°C sıcaklığında ulaşılmıştır. 'a' sabitinin en düşük değeri ise tersine ölü alglerin ve en düşük uranyumun (5mg/L), olduğu en düşük sıcaklıkta (5°C) elde edilmiştir. Reaktörlerde adsorpsiyonun elverişli olup olmadıklarını belirlemek için 'R' sabitine bakarsak, tüm reaktörlerde bu sabit pozitif olduğu için adsorpsiyonun elverişli olduğunu söyleyebiliriz. Görüldüğü gibi, alglerle yapılan deneylerde alglerin büyümesi kolay, ucuz besi ortama ihtiyacı olması, anaerobik şartların sağlanmasına gerek olmaması, optimal şartlar sağlandığında anaerobik bakteriler kadar yüksek giderim sağlaması için uranyum gideriminde anaerobik bakterilere iyi alternatiftir. *Chlorella sp.* su canlıları ve insanlar için besi ve zengin mineral ve vitaminler kaynağı olduğu, sadece tatlı sularda yetiştiği ve bundan dolayı suyun temizliğinin indikatörü olabildiği ve sağlık için hiç zararlı gaz ve çökeltilerin oluşmasına yol açmadığı için tatlı su göllerin, barajların ve diğer tatlı su kaynaklarının uranyumdan arıtılmasında sakıncasız olarak kullanılabilir. Adsorpsiyonun yoğunluğunu gösteren n değerlerinin 1-10 arasında olması adsorpsiyonun çok iyi olduğunun bir göstergesidir. Bu çalışmada hemen hemen tüm şartlarda n değerine göre adsorpsiyon çok iyidir. Uranyumun mikroalglerle gideriminin daha uygun olduğu belirlenmiştir. Termodinamik hesaplamalar sonucu uranyumun *Chlorella sp.* mikroalgleri tarafında adsorpsiyonunun dış etkene gerek kalmadan kendi kendinden gerçekleştiği Serbest Gibbs enerjilerin tüm şartlarda negatif olarak gerçekleştiği

görülmüştür. Adsorpsiyon bazı durumlarda entalpi negatif olduğu için ekzotermiktir (enerji açığa çıkarıyor), bazı durumlarda ise endotermiktir (enerji tüketiyor). Bu da, uranyumun alglerle adsorpsiyonun hem enerji tüketici hem de enerji üretici olabildiğini göstermektedir. Ancak genelde endotermik bir reaksiyon olduğu sonucuna varılmıştır.

3) *Scenedesmus sp.* mikroalgleriyle ile uranyumun giderilmesinde alglerin/uranyumun konsantrasyonuna, optimal şartların sağlanıp sağlanmamasına bağlı olarak %99'a kadar giderimler elde edilmiştir. Canlı ve yüksek konsantrasyonlarda mikroalg kullanıldığında >%90'luk yüksek verim elde edilmektedir. Biyosorpsiyon hızının yüksek olduğu ve 30 dakikada tamamlandığı görülmüştür. Uranyumun *Scenedesmus sp.* mikroalglerle adsorpsiyonunda farklı parametrelerin etkileri *Chlorella sp.* ile hemen hemen aynıdır. Uranyumun başlangıç konsantrasyonu arttıkça q_{max} (mg/g) 120mg/g'dan 36mg/g'a kadar artmaktadır. 41.54mg/L alg içeren reaktörlerde tüm pH değerlerinde, 5, 25 ve 45°C sıcaklıklarda canlı alglerle yapılan deneylerde q_{max} (mg/g) değerleri sırasıyla; 359, 360 ve 353'dir. Isıyla öldürülmüş alglerle yapılan deneylerde ise q_{max} (mg/g) değerleri sırasıyla; 353, 355 ve 359'dir. 115.94mg/Lalg içeren reaktörlerde ise bu değerler canlı algler için: 127, 129 ve 122'dir ve ısıyla öldürülmüş algler için ise: 122, 123 ve 129'dür. Canlı alglerin olduğu reaktörlerde adsorban miktarı yüksek iken başlangıçta düşük sıcaklıkta adsorbans daha yüksek olmasına rağmen zaman geçtikçe en yüksek değeri 25°C'de görülmektedir. Adsorpsiyon tüm şartlarda enerji açısından elverişlidir. Reaksiyonlar hem ekzotermik hem de endotermik olmakla beraber çoğunlukla ısı tüketicidir, yani endotermiktir. Dolayısıyla sıcaklık arttıkça uranyumun giderimi de artmaktadır. Bu tür algler içme sularının uranyumla giderilmesinde tercih edilmesi, sağlığa karşı zararlı etkisinin olmayışı, zararlı gazları ve renkli çökeltiler oluşturmaması açısından daha çok avantajlıdır.

➤ 'Cytochrome C' proteini ile yapılan anaerobik kesikli reaktör deneylerinde bu protein hücre dışında da indirgeme işlevi görebildiği sonucu elde edildi. Uranyum giderimi bakterilerle yapılan arıtım kadar yüksek olmasa da, proteinin nanoboyuta sahip olması, etkileşim alanının daha yüksek olması, veriminin de yüksek olmasını sağlamıştır. Farklı fiziksel kimyasal şartları araştırılarak hücre dışında da protein ile arıtım mümkün olabilecektir.

Çizelge 7.1. Sudaki Uranyumun Gideriminde Kullanılan Biyoteknolojik Yöntemlerin Kıyaslanması ve Avantajlı / Dezavantajlı Yanların

	U.D.K.M.	S.İ.B.	<i>Scenedesmus sp.</i> mikroalgleri	<i>Chlorella sp.</i> mikroalgleri	<i>Cytochrome C3'</i> <i>Proteini</i>
Sudaki Uranyumun Giderim Yüzdesi (%)	1) Standart şartlarda sıcaklıkla öldürülmüş U.D.K.M. olan örneklerde % 24 – 78 ve canlı U.D.K.M. 'da ise % 40 – 79 uranyum giderimi elde edilmiştir. 2) Farklı ORP/pH'da <u>%78.1 ile % 96.3</u> arasında uranyum giderimi sağlanmıştır ve en çok giderim ORP -50 ve pH 7'de gerçekleşmiştir. 3) Ultra safsu ortamında uranyumun U.D.K.M. ile giderimi %0.33 – 53 arasında olmuştur	Yüksek uranyum giderim yüzdeleri - <u>%95.36 - %99.9</u> elde edilmiştir. En yüksek giderim negatif (-50mV ve -100mV) redoks potansiyellerinde olup uranyumun 100mg/L başlangıç konsantrasyonundan 0,777mg/L (-50mV için) ve 0,115mg/L (-100mV için) kadar azaldığı belirlenmiştir.	Optimum koşullar (pH 6-8 arası, sıcaklık 45°C, algler canlı, algin en yüksek konsantrasyonu, süre 55-62,4 dakika) sağlandığında <u>%90 - 100</u> aralığında giderim elde edilmiştir	Optimal şartlar sağlandığında (pH 6-8 arası, sıcaklık 45°C, algler canlı, algin en yüksek konsantrasyonu, süre 55-62,4 dakika) <u>%95 üzeri</u> giderim elde edilmiştir.	<u>%1 - 37</u> giderim elde edilmiştir
AVANTAJLARI	1) Sudaki uranyumun 1000mg/L kadar yüksek konsantrasyonlarına dayanıklıdır, dolayısıyla yüksek konsantrasyonlarda uranyum içeren radyoaktif sıvı atıkların arıtımında da kullanılabilirler	1) Sülfat, nitrat gibi daha güçlü elektron alıcıların varlığı U(VI)'nın sülfat indirgeyen bakteriler tarafından indirgenmesine 5000mg/l gibi yüksek konsantrasyonlarda bile engel olmadığı, sülfat ve uranyumun böyle bakterilerle aynı zamanda indirgendiği; ancak bakırın, demirin (III) ve organik ligantların uranyumun indirgenmesinde inhibe etkisi gözlenmiştir [78], [80]. Ortaya çıkan sülfür Mn^{2+}, Zn^{2+}, Pb^{2+} ve Fe^{2+} gibi ağır metallerle birleşince çökelti oluşturduğu için bunların toksik etkileri de ortadan kaldırmaktadır [81].	1) Uranyumun arıtımı sonucu siyah çökelti oluşturmamaktadır	1) Sadece tatlı sularda bulunan <i>Chlorella sp.</i> mikroalgleri eski zamanlardan beri besi olarak kullanılmaktadır. Ayrıca bu tür algler sadece vücudun gereksinim duyduğu besinleri en üst seviyede sağlamakla kalmaz aynı zamanda vücudu zararlı maddelerden de temizlemektedir [18]. Bundan dolayı <i>Chlorella sp.</i> mikroalgleri içme suların uranyumdan arıtımında en iyi seçenek olabilir.	1) 'Cytochrome C' proteini; küçük ve farklı çevresel kritik şartlara karşı kararlıdır,

DEZAVANTAJLARI	2) Uranyumu indirgeyerek giderdiği için karbonat kompleksleri oluşturmuş doğal sulardaki uranyumun arıtımında da etkilidir	2) Alkalinitesi yüksek sularda uranyl ionları (UO ₂ ²⁺) sudaki karbonatlarla çok güçlü kompleksler oluşturarak U(VI)'nın sorpsiyonuna veya çökmesine inhibe edici etki yaratmaktadır. Bu yüzden radyoaktif suların arıtımında uranyumun indirgenerek giderimi iyi bir seçenektir [Competition between enzymatic...].	2) Uranyumun arıtımında zararlı ve keskin kokulu gazların oluşumuna yol açmamaktadır	2) Uranyumun arıtımı sonucu siyah çökelti oluşturmamaktadır	2) elde edilmesi kolay ve büyük miktarlarda saf şeklinde elde edilebiliyor,
	3) Anaerobik olduğu için oksijenin olmadığı yeraltı sulrın arıtımında kullanılabilir	3) S.İ.B.'lerde ise tersine uranyumun indirgenmesi sulfatın (SO ₄ ²⁻) indirgenmesine nazaran 4 kere daha fazla enerji sağladığı için, elektron alıcı olarak sulfata göre daha üstündür. Bundan dolayı sulfatın 4000mg/L kadar çok yüksek konsantrasyonları bile uranyumun S.İ.B.'lerle indirgenmesine etki etmemektedir [107]	3) Genellikle temiz sularda bulunup sağlık için tehlikesi olmadığı için içme suların arıtımında da kullanılabilir	3) Uranyumun arıtımında zararlı ve keskin kokulu gazların oluşumuna yol açmamaktadır	3) proteyin çok çeşit haberci grupları içerdiği için bir sürü amino asitler ile bağlantı kurabiliyor, dolayısıyla spektroskop ile çok farklı yöntemlerle kolayca ölçülebilecek şekilde değişimi yapabiliyor,
	4) Zararlı ve keskin kokulu gazların ve siyah çökeltilerin oluşunua neden olmamaktadır	4) Sulfatın S.İ.B.'lerle indirgenmesi sonucu oluşan hidrojen sulfid gazı (H ₂ S) da U (VI)'yı U (IV)'e abiotik olarak indirgemektedir, dolayısıyla demir indirgeyen bakterilere nazaran daha fazla uranyum atomunun indirgenmesine yol açmaktadır [108], [109], [110].			4) Sentezlenen 'Cytochrome C' proteini mikroorganizma hücresinin dışında da aynı işlev ve özellikleri taşımaktadır [20]. 'Cytochrome C' hücre dışında da hiç değişiklik olmadan indirgenme oksitlenme işlemlerde aynı işlevleri görebildiği için
	1) İndirgenerek çökeltilen U(IV) oksijenin ve nitratin varlığında tekrar U(VI)'ya oksitleyerek uranyumun gideriminie engel yaratmaktadır.	1) Doğada bulunan indirgeyici bileşenler (ağır metaller, diğer elektron alıcılar) ve indirgenen uranyumu tekrar yükseltgeyebilecek faktörler (oksitleyiciler, nitratlar, nitritler v.s.).	1) İyi araştırılmamış olması	1) İyi araştırılmamış olması	1) Daha önce iyi araştırılmamış olması

	2) Yüzey suların in-situ arıtımında anaerobik şartlarının sağlanmasının zor olması	2) Sülfat indirgeyen bakteriler (S.İ.B.) yavaş çoğalmasından dolayı nadiren izole edilmektedir. Dolayısıyla bu bakterilerin izolasyonu için özel ve seçkin bir besin ortamı gerekmektedir.			2) İnhibe edici faktörlerinin olup olmadığının belli olmaması
		3) Sİ.B. bir terminal elektron alıcısı olarak nitratı nadiren kullanabilmektedir, bu yüzden nitrat S.İ.B.'lerin aktivitesinin güçlü bir inhibitörüdür (Wang et al., 2005)			
		4) Doğal sularda uranil-karbonat ve organik uranyum komplekslerinin oluşması sülfat indirgeyen bakteriler için bazı sınırlar oluşturabilmektedir (Ganesh, 1997, Suzuki, 2006, Wall, 2006)			

7.2. Öneriler

Böylece farklı uranyumla kirli suların, biyoteknolojik yöntemler kullanılarak farklı mikroorganizmaların yardımıyla etkili bir şekilde arıtılması mümkündür. Ama böyle uranyumla kirli suların arıtılmasında günümüzdeki en önemli engel; problemin büyüklüğünün geniş kütlelerce benimsenmemiş olmasındadır. Meselenin çözümünde öncelikle sorunun büyüklüğünün kavranması çok önemlidir. Uranyum meselesinde de tehlikesi çok büyük olduğu için kullanılması yasaklanabileceği endişesinden dolayı, uranyum ile ilgili gerçek bilgiler gizlenmeye, her türlü hilekarlıklarla tehlikesi az gösterilmeye çalışılacağı için arıtımı da gözardı edilegelmiştir. Bu yüzden sulardaki uranyumun biyoteknolojik olarak etkili bir şekilde arıtılması için öncelikle aşağıdaki gibi işlerin yapılması doğru görülmektedir:

- Algler doğal sularda kolay yetiştiği ve hiç zararlı etkileri olmadığı için doğal suların uranyumla arıtılmasında direkt olarak in-vivo kullanılabilir.
- Az dozdaki uranyumun sağlığa olan etkileri ile ilgili standartların yeniden belirlenmesi,
- Suların uranyumla kirlenme derecelerinin ve sağlığa olan gerçek tehlike düzeyleri hakkında geniş kütleler tarafından bilinmesi,
- Uranyumun gerçek tehlike boyutunun benimsenmesi,
- Sudaki uranyumun arıtımının önemsenmesi,
- Uranyumla kirlenmiş farklı suların arıtımı için uygun mikroorganizmanın seçilmesi,
- Biyoteknolojik yöntemlerle sudaki uranyumla arıtımının hayata geçirilmesi.
- N.E.S.'lerin çevreye olan radyoaktif atıklarının gerçek boyutlarının açık bildirmeleri,
- N.E.S.'lerin radyoaktif atıklarının kirlenmeyi kontrol eden prensibine göre değil tarafsız çevreciler tarafından kontrolün ele alınması,

EK-1. *Scenedesmus* sp. ve *Chlorella* sp. Algleriyle Deneylerde Sudaki Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)

a) 41.54 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
41,5435	279,752	5°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	5,000	2,852	0,282	0,176	0,880	3,697	0,915	1,373	0,458	1,303	0,317	0,035
			60	0,951	1,056	1,373	0,282	0,704	3,451	0,352	0,070	0,352	1,268	0,387	1,373
			90	5,000	3,204	0,141	0,246	0,317	1,655	0,423	0,282	1,197	0,035	0,599	1,092
			120	5,000	2,711	0,106	0,106	0,528	2,535	0,106	0,599	0,458	1,092	0,493	1,901
		25°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	3,310	2,958	4,824	0,880	1,796	0,317	0,141	0,141	0,211	3,486	2,148	3,380
			60	5,000	3,134	7,077	0,739	1,092	0,704	0,317	0,141	0,458	1,901	3,697	5,035
			90	3,310	3,662	5,493	0,528	1,549	0,423	0,528	1,092	0,070	3,063	0,370	4,014
			120	3,838	4,613	5,176	0,458	0,775	0,704	0,035	0,211	1,021	3,345	3,204	7,535
		45°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	5,000	3,063	0,563	3,028	3,275	2,535	5,000	1,690	1,655	4,155	0,387	0,493
			60	1,866	2,289	0,528	0,141	0,951	1,232	1,514	1,092	2,183	0,951	1,268	0,352
			90	1,690	1,444	0,775	0,669	0,528	2,676	1,056	2,077	2,077	1,092	0,458	0,458
			120	2,711	0,915	0,951	0,387	1,338	0,915	0,669	0,352	1,655	0,634	0,845	0,599
41,5435	279,752	5°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	2,465	1,444	3,345	0,141	3,028	2,077	2,359	1,761	1,901	2,782	0,211	2,606
			60	3,169	1,268	0,951	0,352	2,430	2,746	2,183	1,901	1,585	2,711	2,817	1,761
			90	3,099	1,901	2,077	0,704	2,852	2,535	2,394	2,077	2,042	2,500	1,901	2,500
			120	3,803	1,514	4,437	0,493	3,415	3,345	2,218	1,972	2,042	2,676	1,549	0,352
		25°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,866	0,810	1,479	0,880	1,232	4,613	1,972	1,796	2,077	3,415	2,465	0,423
			60	1,338	0,246	1,831	0,352	0,951	4,789	0,599	2,535	2,289	2,641	2,465	0,880
			90	1,725	1,655	3,134	0,282	0,211	3,063	0,528	1,655	1,937	2,183	1,901	2,641
			120	2,676	0,352	0,810	0,493	1,127	3,979	0,634	1,655	1,831	1,338	0,775	3,063
		45°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,106	0,634	0,951	1,761	2,359	0,070	0,528	0,810	0,246	0,986	0,528
			60	0,317	0,493	0,070	1,197	2,254	3,028	0,810	0,704	0,423	0,845	0,070	0,528
			90	0,493	0,739	0,423	1,056	1,162	2,430	0,458	0,423	0,845	1,479	0,211	0,070
			120	0,704	0,246	0,317	1,232	1,514	3,099	1,479	0,669	0,739	0,634	0,775	0,880

b) 115.94 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofill-a, µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
115.94	724,064	5°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,796	1,796	2,289	1,866	2,852	3,204	1,725	0,387	0,317	0,528	1,197	2,324
			60	0,211	0,352	0,880	1,655	1,655	1,444	0,352	0,493	0,634	0,352	1,127	3,944
			90	0,915	1,162	1,303	2,042	1,937	2,148	0,493	0,704	1,268	1,655	1,127	2,042
			120	0,915	1,796	1,338	1,373	4,331	7,641	0,739	0,810	2,148	1,761	2,570	2,746
		25°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	5,000	2,359	1,937	1,937	6,056	2,218	0,810	0,493	4,965	0,915	1,127	4,120
			60	0,599	2,923	1,937	3,310	0,704	1,197	0,599	0,704	1,514	1,162	4,648	2,254
			90	1,514	1,479	1,901	1,338	1,338	1,796	1,373	0,563	0,282	0,634	2,570	1,444
			120	2,535	1,620	1,585	1,338	0,669	1,549	0,000	0,000	0,282	2,641	1,162	1,338
		45°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	0,845	0,880	0,176	0,317	1,620	3,380	1,690	0,211	2,007	0,634	5,317	0,423
			60	2,218	0,141	0,387	0,915	0,880	3,697	0,423	1,338	1,268	0,915	0,106	0,141
			90	0,035	0,528	1,162	0,845	1,373	2,606	0,141	0,669	1,021	0,423	0,669	0,775
			120	0,423	0,246	2,535	0,563	0,986	2,641	0,423	0,880	0,387	0,176	2,042	0,070
115.94	724,064	5°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,937	5,423	8,768	3,556	4,296	7,077	1,972	1,972	1,408	0,915	0,810	1,725
			60	2,535	5,317	7,465	2,993	4,894	5,423	1,796	0,810	1,444	1,197	0,634	0,810
			90	2,394	4,120	4,965	3,310	4,859	7,887	1,303	2,148	1,444	1,338	0,845	1,162
			120	2,817	3,732	5,176	2,430	4,472	7,359	1,479	1,479	1,268	2,817	0,880	1,232
		25°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	0,739	4,331	5,423	2,430	6,232	7,570	2,113	3,239	2,183	1,725	3,063	1,092
			60	0,951	3,310	4,366	3,310	4,894	8,134	2,254	1,620	1,585	1,479	2,817	2,254
			90	0,317	4,930	5,000	2,606	4,683	6,972	1,197	1,937	2,148	1,831	1,972	2,113
			120	0,810	3,380	6,937	2,570	3,768	7,993	1,690	2,077	2,042	1,373	1,268	0,845
		45°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,106	0,634	0,951	1,761	2,359	0,070	0,528	0,810	0,246	0,986	0,528
			60	0,317	0,493	0,070	1,197	2,254	3,028	0,810	0,704	0,423	0,845	0,070	0,528
			90	0,493	0,739	0,423	1,056	1,162	2,430	0,458	0,423	0,845	1,479	0,211	0,070
			120	0,704	0,246	0,317	1,232	1,514	3,099	1,479	0,669	0,739	0,634	0,775	0,880

c) 71.61mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofill-a, µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
71,6075	127,16	5°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,282	0,775	1,127	9,718	3,380	1,373	0,070	0,035	1,444	0,915	1,373
			60	1,092	1,771	0,035	2,641	3,028	1,444	0,845	0,775	0,246	0,141	1,585	1,232
			90	1,296	7,993	1,268	0,563	4,577	1,585	0,775	2,148	0,528	3,099	5,704	1,021
			120	1,585	9,542	0,704	1,549	3,768	4,930	0,141	0,563	0,669	2,958	2,183	0,634
		25°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,901	2,042	1,585	2,183	2,042	3,451	0,352	0,563	0,458	2,852	4,085	1,444
			60	2,641	1,408	1,514	1,303	3,063	2,817	0,070	0,352	0,352	1,338	0,377	1,662
			90	2,676	1,831	1,690	0,986	1,338	1,655	0,035	0,246	1,197	1,514	3,099	2,500
			120	5,000	2,077	2,923	0,493	1,232	2,746	0,423	0,282	0,352	0,986	1,373	2,500
		45°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	2,289	1,092	2,394	2,606	4,225	4,683	0,739	0,775	0,528	1,408	2,782	1,268
			60	3,451	0,493	4,296	1,866	5,141	3,908	0,246	0,915	0,880	0,986	1,620	1,972
			90	4,190	0,880	2,359	1,479	2,746	3,873	1,197	0,880	0,669	1,373	2,359	0,915
			120	3,099	0,599	2,113	1,444	3,169	3,028	0,211	1,338	0,423	5,000	1,514	1,549
71,6075	127,16	5°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	4,120	2,359	2,887	3,345	1,303	2,359	0,458	1,021	0,141	3,310	1,690	2,570
			60	4,296	6,127	3,169	2,711	1,937	4,542	0,141	0,880	0,986	2,113	3,451	5,141
			90	3,239	3,803	3,063	2,254	0,528	1,866	0,951	0,704	0,106	0,563	0,634	3,415
			120	3,028	4,120	2,535	2,641	0,739	1,866	0,775	4,331	0,317	0,141	2,394	13,662
		25°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	4,190	4,542	2,324	1,232	2,324	1,514	3,204	0,458	1,056	0,739	0,845	2,113
			60	3,967	1,343	1,942	1,095	1,033	0,599	0,165	0,269	0,310	0,558	0,331	2,107
			90	2,913	1,612	1,240	0,930	0,888	0,579	0,351	0,227	0,661	0,930	0,785	1,467
			120	2,707	1,074	1,901	0,930	0,186	1,136	0,248	0,372	0,165	0,413	0,496	0,847
		45°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	3,627	9,648	5,563	2,782	2,817	1,796	0,352	0,352	0,493	1,761	1,021	4,190
			60	1,690	4,648	0,070	4,162	4,085	3,099	1,232	0,718	1,373	1,232	0,915	1,162
			90	2,359	2,430	3,099	2,887	3,310	2,218	0,246	0,070	0,176	1,232	1,479	1,620
			120	5,000	3,239	3,592	1,549	3,134	3,134	0,035	0,599	1,056	0,493	0,915	1,268

c) 71.61mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Alglar Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
71,6075	127,16	5°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,282	0,775	1,127	9,718	3,380	1,373	0,070	0,035	1,444	0,915	1,373
			60	1,092	1,771	0,035	2,641	3,028	1,444	0,845	0,775	0,246	0,141	1,585	1,232
			90	1,296	7,993	1,268	0,563	4,577	1,585	0,775	2,148	0,528	3,099	5,704	1,021
			120	1,585	9,542	0,704	1,549	3,768	4,930	0,141	0,563	0,669	2,958	2,183	0,634
		25°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,901	2,042	1,585	2,183	2,042	3,451	0,352	0,563	0,458	2,852	4,085	1,444
			60	2,641	1,408	1,514	1,303	3,063	2,817	0,070	0,352	0,352	1,338	0,377	1,662
			90	2,676	1,831	1,690	0,986	1,338	1,655	0,035	0,246	1,197	1,514	3,099	2,500
			120	5,000	2,077	2,923	0,493	1,232	2,746	0,423	0,282	0,352	0,986	1,373	2,500
		45°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	2,289	1,092	2,394	2,606	4,225	4,683	0,739	0,775	0,528	1,408	2,782	1,268
			60	3,451	0,493	4,296	1,866	5,141	3,908	0,246	0,915	0,880	0,986	1,620	1,972
			90	4,190	0,880	2,359	1,479	2,746	3,873	1,197	0,880	0,669	1,373	2,359	0,915
			120	3,099	0,599	2,113	1,444	3,169	3,028	0,211	1,338	0,423	5,000	1,514	1,549
71,6075	127,16	5°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	4,120	2,359	2,887	3,345	1,303	2,359	0,458	1,021	0,141	3,310	1,690	2,570
			60	4,296	6,127	3,169	2,711	1,937	4,542	0,141	0,880	0,986	2,113	3,451	5,141
			90	3,239	3,803	3,063	2,254	0,528	1,866	0,951	0,704	0,106	0,563	0,634	3,415
			120	3,028	4,120	2,535	2,641	0,739	1,866	0,775	4,331	0,317	0,141	2,394	13,662
		25°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	4,190	4,542	2,324	1,232	2,324	1,514	3,204	0,458	1,056	0,739	0,845	2,113
			60	3,967	1,343	1,942	1,095	1,033	0,599	0,165	0,269	0,310	0,558	0,331	2,107
			90	2,913	1,612	1,240	0,930	0,888	0,579	0,351	0,227	0,661	0,930	0,785	1,467
			120	2,707	1,074	1,901	0,930	0,186	1,136	0,248	0,372	0,165	0,413	0,496	0,847
		45°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	3,627	9,648	5,563	2,782	2,817	1,796	0,352	0,352	0,493	1,761	1,021	4,190
			60	1,690	4,648	0,070	4,162	4,085	3,099	1,232	0,718	1,373	1,232	0,915	1,162
			90	2,359	2,430	3,099	2,887	3,310	2,218	0,246	0,070	0,176	1,232	1,479	1,620
			120	5,000	3,239	3,592	1,549	3,134	3,134	0,035	0,599	1,056	0,493	0,915	1,268

d) 282.42mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Konsantrasyonunun Değişimi, Ce (mgU/L)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
282,419	481,712	5°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	0,070	0,106	0,352	0,070	1,092	1,197	0,106	0,035	0,951	0,246	0,915	0,423
			60	0,246	0,739	0,106	0,528	0,493	1,408	0,880	0,423	1,373	0,070	0,176	1,268
			90	1,056	0,106	0,563	0,000	1,761	2,641	0,458	0,035	0,352	0,176	0,634	0,282
			120	0,951	0,387	0,106	0,423	0,423	1,056	0,387	0,704	0,317	0,070	0,106	1,092
		25°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	2,746	1,092	1,268	0,739	0,141	0,246	0,387	0,493	0,070	0,599	1,690	1,021
			60	1,866	1,232	1,549	0,563	0,810	1,338	0,000	0,317	0,211	2,993	1,866	2,958
			90	2,324	1,479	1,303	0,599	0,810	1,761	0,423	0,599	1,021	2,746	4,049	2,077
			120	1,127	1,268	2,887	0,634	1,021	0,599	0,528	0,000	0,493	2,746	2,887	2,958
		45°C, canlı	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,106	0,634	0,951	1,761	2,359	0,070	0,528	0,810	0,246	0,986	0,528
			60	0,317	0,493	0,070	1,197	2,254	3,028	0,810	0,704	0,423	0,845	0,070	0,528
			90	0,493	0,739	0,423	1,056	1,162	2,430	0,458	0,423	0,845	1,479	0,211	0,070
			120	0,704	0,246	0,317	1,232	1,514	3,099	1,479	0,669	0,739	0,634	0,775	0,880
282,419	481,712	5°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	0,176	0,106	0,246	1,866	4,085	6,338	2,500	3,768	1,549	2,923	2,359	1,725
			60	0,070	0,141	0,317	1,444	3,662	6,232	2,394	3,134	1,092	2,430	2,148	3,310
			90	0,141	0,035	0,282	1,127	3,239	5,423	4,754	4,577	1,549	2,500	1,866	1,373
			120	0,035	0,176	0,528	2,324	3,169	7,324	3,451	3,063	1,303	4,331	2,430	1,127
		25°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	0,106	0,070	0,211	2,042	3,556	2,958	1,232	2,183	0,282	2,148	2,993	1,444
			60	0,282	0,000	0,176	2,430	3,239	1,972	1,725	3,415	0,317	2,042	2,289	1,232
			90	0,035	0,176	3,873	2,113	0,035	3,239	1,162	1,585	0,141	1,373	0,775	1,127
			120	0,282	1,796	0,000	1,655	2,852	2,676	1,092	0,951	0,845	1,796	0,563	1,373
		45°C, öldürülmüş	0	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000	5,000	10,000	15,000
			30	1,268	0,106	0,634	0,951	1,761	2,359	0,070	0,528	0,810	0,246	0,986	0,528
			60	0,317	0,493	0,070	1,197	2,254	3,028	0,810	0,704	0,423	0,845	0,070	0,528
			90	0,493	0,739	0,423	1,056	1,162	2,430	0,458	0,423	0,845	1,479	0,211	0,070
			120	0,704	0,246	0,317	1,232	1,514	3,099	1,479	0,669	0,739	0,634	0,775	0,880

EK-2. *Scenedesmus* sp. ve *Chlorella* sp. Algleriyle Deneylerde Sudaki Uranyumun Giderim Yüzdeleri, (%)

a) 41.54 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Gideriminin Yüzdeleri (%)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorophyll-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
41,5435	279,752	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	71	98	96	91	75	82	86	97	74	97	100
			60	81	89	91	94	93	77	93	99	98	75	96	91
			90	0	68	99	95	97	89	92	97	92	99	94	93
			120	0	73	99	98	95	83	98	94	97	78	95	87
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	34	70	68	82	82	98	97	99	99	30	79	77
			60	0	69	53	85	89	95	94	99	97	62	63	66
			90	34	63	63	89	85	97	89	89	100	39	96	73
			120	23	54	65	91	92	95	99	98	93	33	68	50
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	69	96	39	67	83	0	83	89	17	96	97
			60	63	77	96	97	90	92	70	89	85	81	87	98
			90	66	86	95	87	95	82	79	79	86	78	95	97
			120	46	91	94	92	87	94	87	96	89	87	92	96
41,5435	279,752	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	51	86	78	97	70	86	53	82	87	44	98	83
			60	37	87	94	93	76	82	56	81	89	46	72	88
			90	38	81	86	86	71	83	52	79	86	50	81	83
			120	24	85	70	90	66	78	56	80	86	46	85	98
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	63	92	90	82	88	69	61	82	86	32	75	97
			60	73	98	88	93	90	68	88	75	85	47	75	94
			90	65	83	79	94	98	80	89	83	87	56	81	82
			120	46	96	95	90	89	73	87	83	88	73	92	80
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	99	96	81	82	84	99	95	95	95	90	96
			60	94	95	100	76	77	80	84	93	97	83	99	96
			90	90	93	97	79	88	84	91	96	94	70	98	100
			120	86	98	98	75	85	79	70	93	95	87	92	94

b) 115.94 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Gideriminin Yüzdeleri (%)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofil-a , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
115,94	724,064	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	64	82	85	63	71	79	65	96	67	89	88	85
			60	96	96	94	67	83	90	93	95	96	93	89	74
			90	82	88	91	59	81	86	90	93	92	67	89	86
			120	82	82	91	73	57	49	85	92	86	65	74	82
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	76	87	61	39	85	84	95	98	82	89	73
			60	88	71	87	34	93	92	88	93	90	77	54	85
			90	70	85	87	73	87	88	73	94	98	87	74	90
			120	49	84	89	73	93	90	100	100	98	47	88	91
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	83	91	99	94	84	77	66	98	87	87	47	97
			60	56	99	97	82	91	75	92	87	92	82	99	99
			90	99	95	92	83	86	83	97	93	93	92	93	95
			120	92	98	83	89	90	82	92	91	97	96	80	100
116,94	724,064	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	61	46	42	29	57	53	61	80	85	82	92	88
			60	49	47	50	40	51	64	64	92	90	76	94	95
			90	52	59	67	34	51	47	74	79	90	73	92	92
			120	44	63	65	51	55	51	70	85	92	44	91	92
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	85	57	64	51	38	50	58	68	91	65	69	93
			60	81	67	71	34	51	46	55	84	89	70	72	85
			90	94	51	67	48	53	54	76	81	86	63	80	86
			120	84	66	54	49	62	47	66	79	86	73	87	94
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	99	96	81	82	84	99	95	95	95	90	96
			60	94	95	100	76	77	80	84	93	97	83	99	96
			90	90	93	97	79	88	84	91	96	94	70	98	100
			120	86	98	98	75	85	79	70	93	95	87	92	94

c) 71.61mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Uranyumun Giderimi (%)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofil-a , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
71,6075	127,16	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	97	95	77	3	77	73	99	97	71	91	91
			60	78	82	100	47	70	90	83	92	98	97	84	92
			90	74	20	92	89	54	89	85	79	96	38	43	93
			120	68	5	95	69	62	67	97	94	96	41	78	96
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	62	80	89	56	80	77	93	94	100	43	59	90
			60	47	86	90	74	69	81	99	96	98	73	96	89
			90	46	82	89	80	87	89	99	98	92	70	69	83
			120	0	79	81	90	88	82	92	97	98	80	86	83
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	54	89	84	48	58	69	85	92	96	72	72	92
			60	31	95	71	63	49	74	95	91	94	80	84	87
			90	16	91	84	70	73	74	76	91	96	73	76	94
			120	38	94	86	71	68	80	96	87	97	0	85	90
71,6075	127,16	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	18	76	81	33	87	84	91	90	93	34	83	83
			60	14	39	79	46	81	70	97	91	93	58	65	66
			90	35	62	80	55	95	88	81	93	99	89	94	77
			120	39	59	83	47	93	88	85	57	98	97	76	9
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	16	55	85	75	77	90	36	95	97	85	92	86
			60	21	87	87	78	90	96	97	97	98	89	97	86
			90	42	84	92	81	91	96	93	98	96	81	92	90
			120	46	89	87	81	98	92	95	96	99	92	95	94
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	27	4	63	44	72	88	93	96	99	65	90	72
			60	66	54	100	17	59	79	75	93	91	75	91	92
			90	53	76	79	42	67	85	95	99	99	75	85	89
			120	0	68	76	69	69	79	99	94	93	90	91	92

d) 282.42 mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Uranyumun Giderimi (%)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
282,419	481,712	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	99	99	98	99	89	92	98	100	94	95	91	97
			60	95	93	99	89	95	91	82	96	91	99	98	92
			90	79	99	96	100	82	82	91	100	98	96	94	98
			120	81	96	99	92	96	93	92	93	98	99	99	93
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	45	89	92	85	99	98	92	95	100	88	83	93
			60	63	88	90	89	92	91	100	97	99	40	81	80
			90	54	85	91	88	92	88	92	94	93	45	60	86
			120	77	87	81	87	90	96	89	100	97	45	71	80
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	99	96	81	82	84	99	95	95	95	90	96
			60	94	95	100	76	77	80	84	93	97	83	99	96
			90	90	93	97	79	88	84	91	96	94	70	98	100
			120	86	98	98	75	85	79	70	93	95	87	92	94
282,419	481,712	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	96	99	98	63	59	58	50	62	90	42	76	88
			60	99	99	98	71	63	58	52	69	93	51	79	78
			90	97	100	98	77	68	64	5	54	90	50	81	91
			120	99	98	96	54	68	51	31	69	91	13	76	92
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	98	99	99	59	64	80	75	78	98	57	70	90
			60	94	100	99	51	68	87	65	66	98	59	77	92
			90	99	98	74	58	100	78	77	84	99	73	92	92
			120	94	82	100	67	71	82	78	90	94	64	94	91
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	99	96	81	82	84	99	95	95	95	90	96
			60	94	95	100	76	77	80	84	93	97	83	99	96
			90	90	93	97	79	88	84	91	96	94	70	98	100
			120	86	98	98	75	85	79	70	93	95	87	92	94

EK-3. *Scenedesmus sp.* ve *Chlorella sp.* Algleriyle Deneylerde Sudaki Uranyumun Biyosorpsiyonun Değişimi, q_e (mg/g)

a) 41.54 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Biyosorplanması, q_e (mg/g)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
41,54	279,752	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	172	354	116	220	272	98	208	350	89	233	360
			60	97	215	328	114	224	278	112	239	353	90	231	328
			90	0	164	358	114	233	321	110	234	332	120	226	335
			120	0	175	359	118	228	300	118	226	350	94	229	315
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	41	170	245	99	197	353	117	237	356	36	189	280
			60	0	165	191	103	214	344	113	237	350	75	152	240
			90	41	153	229	108	203	351	108	214	359	47	232	264
			120	28	130	236	109	222	344	120	236	336	40	164	180
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	167	348	47	162	300	0	200	321	20	231	349
			60	75	186	348	117	218	331	84	214	309	97	210	353
			90	80	206	342	104	228	297	95	191	311	94	230	350
			120	55	219	338	111	209	339	104	232	321	105	220	347
42,54	279,752	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	61	206	281	117	168	311	64	198	315	53	236	298
			60	44	210	338	112	182	295	68	195	323	55	173	319
			90	46	195	311	103	172	300	63	191	312	60	195	301
			120	29	204	254	108	158	281	67	193	312	56	203	353
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	75	221	325	99	211	250	73	197	311	38	181	351
			60	88	235	317	112	218	246	106	180	306	57	181	340
			90	79	201	286	114	236	287	108	201	314	68	195	297
			120	56	232	342	108	214	265	105	201	317	88	222	287
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	90	238	346	97	198	304	119	228	342	114	217	348
			60	113	229	359	92	186	288	101	224	351	100	239	348
			90	108	223	351	95	213	303	109	231	341	85	236	359
			120	103	235	353	91	204	286	85	225	343	105	222	340

b) 115.94 mg/L <i>Scenedesmus</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Biyosorplanması, q _e (mg/g)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofill-a , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
115,942	724,064	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	28	71	110	27	62	102	28	83	127	39	76	109
			60	41	83	122	29	72	117	40	82	124	40	77	95
			90	35	76	118	26	70	111	39	80	118	29	77	112
			120	35	71	118	31	49	63	37	79	111	28	64	106
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	0	66	113	26	34	110	36	82	87	35	77	94
			60	38	61	113	15	80	119	38	80	116	33	46	110
			90	30	73	113	32	75	114	31	81	127	38	64	117
			120	21	72	116	32	80	116	43	86	127	20	76	118
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	36	79	128	40	72	100	29	84	112	38	40	126
			60	24	85	126	35	79	97	39	75	118	35	85	128
			90	43	82	119	36	74	107	42	80	121	39	80	123
			120	39	84	108	38	78	107	39	79	126	42	69	129
115,942	724,064	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	26	39	54	12	49	68	26	69	117	35	79	114
			60	21	40	65	17	44	83	28	79	117	33	81	122
			90	22	51	87	15	44	61	32	68	117	32	79	119
			120	19	54	85	22	48	66	30	73	118	19	79	119
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	37	49	83	22	32	64	25	58	111	28	60	120
			60	35	58	92	15	44	59	24	72	116	30	62	110
			90	40	44	86	21	46	69	33	70	111	27	69	111
			120	36	57	70	21	54	60	29	68	112	31	75	122
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	32	85	124	35	71	109	43	82	122	41	78	125
			60	40	82	129	33	67	103	36	80	126	36	86	125
			90	39	80	126	34	76	108	39	83	122	30	84	129
			120	37	84	127	32	73	103	30	80	123	38	80	122

c) 71.61 mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Biyosorplanması, q _e (mg/g)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	<i>Chlorofill-a</i> , µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
71,6075	127,16	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	52	136	199	54	4	162	51	139	209	50	127	190
			60	55	115	209	33	97	189	58	129	206	68	118	192
			90	52	28	192	62	76	187	59	110	202	27	60	195
			120	48	6	200	48	87	141	68	132	200	29	109	201
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	43	111	187	39	111	161	65	132	203	30	83	189
			60	33	120	188	52	97	170	69	135	205	51	134	186
			90	32	114	186	56	121	186	69	136	193	49	96	175
			120	0	111	169	63	122	171	64	136	205	56	120	175
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	38	124	176	33	81	144	59	129	202	50	101	192
			60	22	133	149	44	68	155	66	127	197	56	117	182
			90	11	127	177	49	101	155	53	127	200	51	107	197
			120	27	131	180	50	95	167	67	121	204	0	119	188
71,6075	127,16	5°C, sıcaklıkla öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	12	107	169	23	121	177	63	125	208	24	116	174
			60	10	54	165	32	113	146	68	127	196	40	91	138
			90	25	87	167	38	132	183	57	130	208	62	131	162
			120	28	82	174	33	129	183	59	79	205	68	106	19
		25°C, sıcaklıkla öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	11	76	177	53	107	188	25	133	195	59	128	180
			60	14	121	182	55	125	201	68	136	205	62	135	180
			90	29	117	192	57	127	201	65	136	200	57	129	189
			120	32	125	183	57	137	194	66	134	207	64	133	198
		45°C, sıcaklıkla öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	19	5	132	31	100	184	65	135	203	45	125	151
			60	46	75	208	12	83	166	53	130	190	53	127	193
			90	37	106	166	30	93	178	66	139	207	53	119	187
			120	0	94	159	48	96	166	69	131	195	63	127	192

d) 282.42 mg/L <i>Chlorella</i> Algleriyle Deneylerde Uranyumun Biyosorplanması, q _e (mg/g)															
Alg Konsantrasyonu		Sıcaklık, Algler Canlı/ Sıcaklıkla Öldürülmüş	Süre, dakika	pH 3			pH 5			pH 7			pH 9		
Ağırlık, mg/l	Chlorofill-a, µg/L			5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L	5 mgU/L	10 mgU/L	15 mgU/L
282,419	481,712	5°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	17	35	52	17	32	49	17	35	50	17	32	52
			60	17	33	53	16	34	48	15	34	48	17	35	49
			90	14	35	51	18	29	44	16	35	52	17	33	52
			120	14	34	53	16	34	49	16	33	52	17	35	49
		25°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	8	32	49	15	35	52	16	34	53	16	29	49
			60	11	31	48	16	33	48	18	34	52	7	29	43
			90	9	30	48	16	33	47	16	33	49	8	21	46
			120	14	31	43	15	32	51	16	35	51	8	25	43
		45°C, canlı	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	13	35	51	14	29	45	17	34	50	17	32	51
			60	17	34	53	13	27	42	15	33	52	15	35	51
			90	16	33	52	14	31	45	16	34	50	12	35	53
			120	15	35	52	13	30	42	12	33	50	15	33	50
282,419	481,712	5°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	17	35	52	11	21	31	9	22	48	7	27	47
			60	17	35	52	13	22	31	9	24	49	9	28	41
			90	17	35	52	14	24	34	1	19	48	9	29	48
			120	18	35	51	9	24	27	5	25	48	2	27	49
		25°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	17	35	52	10	23	43	13	28	52	10	25	48
			60	17	35	52	9	24	46	12	23	52	10	27	49
			90	18	35	39	10	35	42	14	30	53	13	33	49
			120	17	29	53	12	25	44	14	32	50	11	33	48
		45°C, öldürülmüş	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			30	13	35	51	14	29	45	17	34	50	17	32	51
			60	17	34	53	13	27	42	15	33	52	15	35	51
			90	16	33	52	14	31	45	16	34	50	12	35	53
			120	15	35	52	13	30	42	12	33	50	15	33	50

KAYNAKLAR

- [1] Manson B., Thomas H.P., Hans W.L. Nuclear Chemical Engineering. New York. Chicago. San Francisco. Athens. London. Madrid. Mexico City. Milan. New Delhi. Singapore. Sydney. Toronto: McGraw-Hill Education. **1981.**
- [2] Tananayev, İ. G. Уран (Uranyum). Moskova: Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (Milli Araştırma Atom Enerjisi Üniversitesi). **2011.** pp. 9. 19. 11. 76.
- [3] Jabo, V. V. Охрана окружающей среды на ТЭС и АЭС (. Moskova: Energoatomizdat. **1992.**
- [4] Nesmeyanov, A. N. Радиоактивные элементы и их применение (Radioactive elements and their application). Moskova: Военное издательство Министерства Обороны Союза (Soviyetler Birliği Milli Savunma Bakanlığının askeri yayını. **1955.**
- [5] Bibudhendra, S. Heavy Metals In The Environment. New-York: CRC Press. **2002.** p. 712.
- [6] Katz J.J., Rabinowitch E. The Chemistry of Uranium. London: Mc-Graw-Hill Book Company. **1951.**
- [7] Yablokov, A. V., Чудище обло. озорно. огромно. стозевно и лайя.... İrkutsk: Baykal Çevreciler Ağımı. **2009.** p. 136.
- [8] Yong-Guan Z., Bao-Dong Ch., Principles and Technologies for Remediation of Uranium - Contaminated Environment. cilt 8. Beijing. Haidian: Radioactivity in the Environment. **2009.**
- [9] World Health Organization. «Uranium in Drinking-water (Background document for development of WHO Guideline for Drinking-water Quality).» **2004.**

- [10] Campbell, K. M., Radionuclides in Surface Water and Groundwater. Handbook of Water Purity and Quality. vol. 10. Menlo Park: U.S. Geological Survey. **2009**. pp. 213-236.
- [11] Junghans. M., Hellinh C., Historical mining. uranium tailings and waste disposal at one site-can it be managed? A hydrogeological analysis.. Colorado: Fort Collins. **1998**. pp. 117-126.
- [12] Gongalsky, K.B., Impact of Pollution Caused by Uranium Production on Soil Macrofauna. Moskova: Environmental Monitoring and Assessment 89. **2003**. p. 197–219.
- [13] Yablokov, A. V., Миф о безопасности малых доз радиации: Атомная мифология (Az dozdaki radyasyonun zararsızlığı efsanesi). Moskova: Центр экологической политики России. **2002**. p. 145.
- [14] Gould, J. M., The Enemy Within: The High Cost of Living Near Nuclear Reactors. New-York. London: Da Capo Press. **1996**. p. 282.
- [15] Mossman, K. L., *Cold War Hot Nukes (Legacy of an Era)*. cilt Volume 109. Aleksandriya. **2001**. pp. 162-169.
- [16] Rihvanov, L. P., Радиоактивные элементы в окружающей среде и проблемы (Çevredeki Radyoaktif Elementler ve Sorunları). cilt 10. Tomsk: Rusya Federasyonu'nun Eğitim ve Bilim Bakanlığı. **2009**. p. 430.
- [17] Sternglass, E., «Cancer: Relation of prenatal radiation to Development of the disease in childhood.» *Science* 140. pp. 1102-1104. 7 June **1963**.
- [18] Kogall, Dj., Биологические эффекты радиации (Radyasyonun Biyolojik Etkileri). Moskova: Enorgoatomizdat. **1986**.
- [19] Kuzin, A.M., Kauşanskiy D.A., Прикладная радиобиология (Radyobiyoloji). Moskova. **1981**.

- [20] Hei, T.K., Mutagenic Effect of a Single and an Exact Number of Alpha Particles in Mammalian Cells.. cilt 94. Proc. Nat. Acad Sci.. **1997**. pp. 3765-3770.
- [21] «Риски, связанные с ликвидацией ядерных боеприпасов (Nükleer Silahlarının Elemesiyle İlgili Riskler),» 2001.
- [22] Danby, G., «THORP and the nuclear fuel cycle..» cilt 93. no. 20. p. 20. **1993**.
- [23] Ryabuhin, Y. S., Низкие уровни ионизирующего излучения и здоровье: системный подход (Аналитический обзор). (Düşük Dozdaki İyonlaştırıcı Radyasyon ve Sağlık: sistematir bir yaklaşım (Analitik Bakış)). cilt 45. Tıbbi Radyolojik ve Radyasyon Güvenliği. **2000**. pp. 5-45.
- [24] Kolışkin A.E., Ribalskiy N.G., Радиационная безопасность: Что должен знать о ней каждый человек (Radyasyon güvenliği: Bunun hakkında herkes ne bilmeli). Moskova: "РЭФИА" (REFİA). **1995**. p. 47.
- [25] Moskalev Y., Streltsov V., «Отдаленные последствия радиационного поражения: Неопухолевые формы (Radyasyon Hasarının Uzun Vadeli Etkileri: Tümör Olmayan Formlar.» %1 içinde ""Итоги науки и техники. Радиационная биология" ("Bilim ve Teknoloji. Radyasyon Biyolojisi Sonuçları"). Moskova. ВИНТИ (VİNİTİ). **1987**. p. 214.
- [26] Uşakov, İ.B., Karpov, V.N., Мозг и радиация (к столетию радионейробиологии) (Beyin ve Radyasyon (Radyoneyrobiyolojinin 100. Yılına). Moskova: ГНИИИ авиационная и космическая медицина (GNİİİ Havacılık ve Kozmos Tıbbı). **1997**. p. 76.
- [27] Volpe P., Parasassi T., Sapor O., «Influence of low doses of radiation on the DNA double.» *Int. J. Rad. Med.*.. cilt 1. pp. 79-89. **1999**.
- [28] Ron, E., Modan, B., Preston, D., «Radiation results.» pp. 516-531. **1989**.
- [29] Neta, R., «Radiation Effects on Immune System.» %1 içinde "*Immunological Encyclopedia*". London. **1992**. pp. 1298-1301.

- [30] Melnov, S. B., «Экологическая генетика человека в постчернобыльский период (Çernobil Sonrası İnsanın Ekolojik Genetiği).» %1 içinde *"Post-Çernobil Döneminde İnsan Ekolojisi" VIII. Uluslararası Bilimse-Pratik Konferans*. Minsk. **2001**.
- [31] Radiation. «Radiation and health. Radiation sick N.E.S.s in South Korean village.» WISE News Communiqué. **1989**.
- [32] Carter, R. L., «Low doses leukemogenic effects of A bomb irradiation.» Radiation Effect Research Foundation. Hiroshima. **1993**.
- [33] Moskalev Y.L., Streltsov V., «Отдаленные последствия радиационного поражения: Неопухолевые формы.,» %1 içinde *"Итоги науки и техники, Радиационная биология" ('Bilim ve Teknoloji Sonuçları, Radyasyon Biyolojisi')*., Moskova, VİNİTİ, **1987**, p. 214.
- [34] Shevchenko, V. A., «Действие радиации и генетический груз в популяциях человека (Radyasyonun Etkisi ve İnsan Populasyonuna Genetik Yük).» %1 içinde *"Жизнь в атомном и химическом мире" (Nükleer ve limya Dünyasında Hayat)*. Moskova. **1999**.
- [35] Schull, W. J., «Future studies of the prenatal exposed survivors.» 'J. Radiat. Res.'. pp. 385-393. **1991**.
- [36] Principles.... «Principles for intervention for protection of the public in a radiological emergency..» 'Ann. Int. Comm. Rad. Protect.'. cilt 22. **1993**.
- [37] Edward, D., Body Language — The Leaf Bugs Speak Out. cilt 29. Sweden: Ecologist. **1999**. p. 411.
- [38] Hosse-Honegger, C. H., The Beautiful and the Other or Images of a Metating World. . Zurich–Berlin–New York: Scalo Publishers. **2001**.
- [39] Akleev, A., Fonotov, M., «Радиация: риск рака. (Radyasyon: Kanser Riski).» "Челябинский рабочий" ("Çelyabinskiy raboçiy"). Çelyabinsk. **1995**.

- [40] Bertel, R., «No immediate danger: Prognosis for a Radioactive Earth.» "Women press". London. **1985**.
- [41] Bertel, R., «Comments on the History of Permissible Doze Standards.» **2000**.
- [42] Yablokov, A. V., «No Immediate Danger: Prognosis for a Radioactive Earth».. London: The Women's Press. **1985**.
- [43] Busby, Ch., Cato, M.S., «Increases in Leukemia in Infants in Wales and Scotland following Chernobyl: evidence for errors in statutory risk estimates and dose response assumptions.» %1 içinde *3rd International Conferance 'Health Effect of the Chernobyl Accident: Results of the 15-year Follow-Up Studies'*. Kiev. Ukraine. **2001**.
- [44] Chasnikov, İ. Y., Эхо ядерных взрывов (Atom Bombasının Patlatılmasının Yankıları). Almata. **1996**. p. 98.
- [45] Busby, A. L., Radioactive Fallout from Atmospheric Nuclear Weapons Testing and its Association with Infant Mortality in England and Wales from 1958-1970. Manchester: Imperial College. **1993**.
- [46] Busby, C. C., «Low Level Radiation from the Nuclear Industry.» %1 içinde *The Biological Conferance "Green Audit"*. Aberystwyth. **1992**.
- [47] Kovalyeva, N. V., «Генетические эффекты малых доз (Düşük Dozların Genetik Etkileri).» %1 içinde *Материалы Российско-Американских слушаний «Перспективы развития безопасной энергетики в Ростовской области»*. Rostov-na-Donu. **2000**.
- [48] Lloyd, J., «Bioremediation of radioactive waste: radionuclide-microbe interactions in laboratoryand field-scale studies.» *Current Opinion in Biotechnology*. pp. 254-260. **2005**.
- [49] Rufyikiri, G., Thiry, Y., Declerck, S., «Uptake and translocation of uranium by arbuscular mycorrhizal fungi under monoxenic culture conditions.» *Biogeochemistry of Trace Elements in the Rhizosphere*. pp. 431-455. **2005**.

- [50] Bayramoğlu, G., Çelik., G., «Studies on accumulation of uranyum by fungus *Lentinus sajor-caju*.» *Journal of Hazardous Material*. pp. 345-353. **2005**.
- [51] Genç, Ö., Yalçinkaya, Y., «Uranium recovery by immobilization and dried powdered biomass: characterization and comparison.» *International Geologic Mineralization Process*. pp. 93-107. **2003**.
- [52] Jing-Song, W., Xin-jiaing Hu, «Biosorption of uranium (VI) by immobilized *Aspergillus fumigatus* beads.» *Journal of Environmental Radioactivity*. pp. 504-508. **2010**.
- [53] Jing, B., Huijun, F., «Biosorption of uranium by chemically modified *Rhodotorula glutinis*.» *Journal of Environmental Radioactivity*. pp. 969-973. **2010**.
- [54] Jing, B., Xiaolei, F., «Biosorption of uranyum by magnetically modified *Rhodotorula glutinis*.» *Enzyme and Microbial Technology*. pp. 382-387. **2012**.
- [55] Jinbai, Y., Bohumil, V., «Biosorption of uranium on *Sargassum* biomass.» *Elsevier Science Ltd.* pp. 3357-3363. **1999**.
- [56] Macaskie, L.E., Lloyd, J.R., «Microbial interactions with radioactive wastes and potential applications.» *Elsevier Science Ltd.* pp. 343-380. **2002**.
- [57] Appakuttan, D., Seetharam, Ch., «PhoN-expressing. liophilized. recombinant *Deinococcus radiodurans* cells for uranyum bioprecipitation.» *Journal of Biotechnology*. pp. 285-290. **2011**.
- [58] Simonoff, M., Sergeant, C., «Microorganisms and migration of radionuclides in environment.» *Comptes Rendus Chimie*. pp. 1092-1107. **2007**.
- [59] Miranda, J.K., Francis, R.L., «Microbial interactions with radionuclides – summary and future perspectives.» *Elsevier Science Ltd.* pp. 383-390. **2002**.
- [60] Suzuki, Y., Kelly, Sh. D., Kemner, K.M. Banfield, J.F., «Microbial Populations Stimulated for Hexavalent Uranium Reduction in Uranium Mine Sediment.» *Applied and Environmental Microbiology*. cilt 3. pp. 1337-1346. **2003**.

- [61] Dawn, E.H., Kevin, T.F., «Enrichment of Members of the Family with Stimulation of Dissimilatory Metal Reduction in Uranyum-Contaminated Aquifer Sediments.» *Applied Environmental Microbiology*. cilt 5. pp. 2300-2306. **2002**.
- [62] Robert, T.A., Helen, A.V., «Stimulating In Situ Activity of Geobacter Species To Remove Uranyum from the Groundwater-Contaminated Aquifer.» *Applied Environmental Microbiology*. cilt 10. pp. 5884-5891. **2003**.
- [63] Lovley, D.R., Philips, E.J., «Reduction of uranyum by Desulfovibrio desulfuricans.» *Applied Environmental Microbiology*. cilt 3. pp. 850-856. **1992**.
- [64] Rajagopalan, G., Kevin, G.R., «Reductive precipitation of Uranyum by Desulfovibrio Desulfuricans: evolution of cocontaminant effect and selective removal.» *Elsevier Science Ltd.* cilt 16. pp. 3447-3458. **1999**.
- [65] Paine, R.B., Gentry, D.M., «Uranium Reduction by Desulfovibrio desulfuricans Strain G20 and Cytochrome c3 Mutant.» *Applied Environmental Microbiology*. cilt 6. pp. 3129-3132. **2002**.
- [66] Zhengji, Yi., «Microbial removal of uranyl by sulfate reducing bacteria in the presence of Fe(III) (hydr)oxides.» *Journal of Environmetal Radioactivity*. pp. 700-705. **2010**.
- [67] Wang, Q., Dong, D., «Removal of SO₄²⁻, uranium and other heavy metal ions from simulated solution by sulfate reducing bacteria.» *Transaction of Nonferous Metals of China*. pp. 1529-1532. **2008**.
- [68] Rizlan, B., Williams, S.M., «Global Transcriptional Profiling of Shewenella oneidensis MR-1 during Cr(VI) and U(VI) Reduction.» *Applied Environmental Microbiology*. pp. 7453-7460. **2005**.
- [69] Robert, T.A., Lovley, D.R., Microbial redox interactions with uranium: an environmental perspective. *Interactions of Microorganisms with radioonuclides*. Chapter 7. **2002**. pp. 205-223.

- [70] Cason, E.D., Pieteer, L.A., «Reduction of U(VI) by the deep subsurface bacterium. *Thermus scotoductus* SA-01. and the involvement of the ABC transporter protein.» *Chemosphere*. pp. 572-577. **2012**.
- [71] Sani, R.K., Peyton, B.M., «Dissimilatory reduction of Cr(VI). Fe(III). and U(VI) by *Cellulomonas* isolates.» *Applied Microbial Biotechnology*. cilt 60. pp. 192-199. **2002**.
- [72] Siphwe, Ch., Evans, M.N.Ch., «Removal of uranyum (VI) under aerobic and anaerobic conditions using an indigenous mine consortium.» *Minerals Engineering*. cilt 23. pp. 526-531. **2010**.
- [73] Yong-Guan, Z., Bao-Dong, Ch., «Principles and Technologies for Remediation of Uranium - Contaminated Environment..» cilt 8. **2009**.
- [74] Mackie, L.E., Dean, A.C., «Waste from Nuclear Plants.» *Advanced Biotechnological Procedures*. cilt 12. pp. 159-201. **1989**.
- [75] Sangeeta, Ch., Pinaki, S., «Uranium biomineralization by a metal resistant *Pseudomonas aeruginosa* strain isolated from contaminated mine waste.» *Journal of Hazardous Material*. cilt 186. pp. 336-343. **2011**.
- [76] Sufia, K.K., D'Souza, S.F., Pinaki, S., «Uranium and Thorium sequestration by a *Pseudo-monas* sp.: Mechanism and chemical characterization.» *Journal of Hazardous Materials*. pp. 65-72. **2009**.
- [77] Polman, K., Raff, J., «Metal binding by bacteria from uranium mining waste piles and its technological applications.» *Biotechnology Advances*. cilt 7. no. 13. pp. 58-68. **2005**.
- [78] Denny, A.C., Yelena, P.K., Leonel, E.L., «The effect of aqueous bicarbonate and calcium ions on uranium biosorption by *Arthrobacter* G975 strain..» *Chemical geology*. Cilt 330-331. pp. 51-59. **2012**.

- [79] Rutchadaporn, S., Makoto, H., «A novel bioremediation system for heavy metals using the symbiosis between leguminous plant and genetically engineered rhizobia.» *Journal of Biotechnology*. cilt 99. pp. 279-293. **2002**.
- [80] Martins, M., Falero, M.L., «Mechanism of uranyum (VI) removal by two anaerobic bacterial communities.» *Journal of Hazardous Materials*. cilt 184. pp. 89-96. **2010**.
- [81] Shuibo X., Jing Y., «Study of biosorption kinetics and thermodynamics of uranym by *Citrobacter freudii*.» *Journal of Environmental Radioactivity*. cilt 99. pp. 126-133.
- [82] Ronald, M. A., Handbook of Microbiological Media. New York: CRC Press. **2010**.
- [83] Miller, T.L., Wolin, M.J., «A Serum Bottle Modification of the Hungate Technique for Cultivating Obligate Anaerobes.» *Applied Microbiology*. cilt 5. no. 27. pp. 985-987. **1974**.
- [84] Golmohammadi, H., Rashidi, A., Safdari, S.J., «Simple and Rapid Spectrophotometric Method for Determination of Uranium (VI) in Low Grade Uranium Ores Using Arsenazo (III).» *Chemistry and Chemical Technology*. cilt 6. **2012**.
- [85] Kolmert, A., Wikström, P., Hallberg, K.B., «A fast and simple turbidimetric method for the determination of sulfate in sulfate-reducing bacterial cultures.» *Journal of Microbiological Methods*. cilt 41. no. 41. p. 179–184. **2000**.
- [86] Kai-Uwe, Ulrich, «Speciation-Dependent Kinetics of Uranium(VI) Bioreduction.» *Geomicrobiology Journal*. cilt 28. no. 5-6. pp. 396-409. 26 Temmuz **2011**.
- [87] Ghazy, E. A., Mahmoud, M.G., Asker, M. S., «Cultivation and detection of sulfate reducing bacteria (SRB) in sea water.» *Journal of American Science*. cilt 7. no. 2. **2011**.
- [88] Elizabeth, A.G., Kenneth, S.J., Kenneth, H.C., «Direct Ultraviolet Spectrophotometric Determination of Total Sulfide and Iodide in Natural Waters.» *Analitical Chemistry*. cilt 73. pp. pp.3481-3487. **2001**.

- [89] Connon, R. «<http://www.biosci.rdg.ac.uk/Research/eb/daphnia.htm>.» Daphnia Research Group (University of Reading). 1 Temmuz **2007**. [Çevrimiçi].
- [90] Youngman. «Fitoplankton Biyolojik Kütlesinin (Biomass) Pigment Analizi ile Ölçümü (klorofil a).» **1978**.
- [91] «<http://biyokure.org/adsorpsiyon-izotermeleri/6499/>.» Biyoküre. 28 Ekim **2017**. [Çevrimiçi].
- [92] «<http://www.selcuk.edu.tr/dosyalar/files/046016/Adsorpsiyon.pdf>.» Selçuk Üniversitesi. Kimya Mühendisliği Bölümü. [Çevrimiçi].
- [93] Kayacan, S., *Kömür ve Koklarla Sulu Çözeltilerden Boyar Maddelerin Uzaklaştırılması*. Ankara. **2007**.
- [94] Uysal, Y., «Adsorpsiyon.» Ankara. **2016**.
- [95] Eroğlu, H., Yapıcı, S., Nuhoglu, Ç., Varoğlu, E., «An Environmental friendly process; Adsorption of radionuclide Tl-201 on fibrous waste tea.» *Journal of Hazardous Materials*. pp. 607-617. **2009**.
- [96] Keilin, D., «Cytochrome and Intracellular Oxidase,» **1930**.
- [97] Selivanov, E.A., Hmylov, G.A., Belyaeva, İ.S. Slepnyeva, L.V., Sidorova, N.D., «Способ количественного определения Цитохрома С в препаратах, содержащих коллаген (Kolagen İçeren ilaçlarda Cytochrome C'nin Kantitatif Belirlenmesi)». Rusya Federasyonu Patent: 2084869. 20 Temmuz **1997**.
- [98] Fredrickson , J. K., Zachara, J. M., Kennedy, D. W., Duff, M. C., Gorby, Y. A., Li, S. W., & Krupka, K. M., «Reduction of U(VI) in goethite (α-FeOOH) suspensions by a dissimilatory,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 64(18), pp. 3085-3098, **2000**.
- [99] Langmuir, D., «Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 42, pp. 547-569, **1978**.

- [100] Abdelouas, A., «Uranium mill tailings: Geochemistry, mineralogy, and environmental impact,» *Elements*, cilt 2, no. 6, pp. 335-341, **2006**.
- [101] Campbell, K. M., Gallegos, T. J., & Landa, E. R., «Biogeochemical aspects of uranium mineralization, mining, milling and remediation,» *Applied Geochemistry*, cilt 57, pp. 206-235, **2015**.
- [102] Tapia-Rodriguez, A., Luna-Velasco, A., Field, J. A., & Sierra-Alvarez, R., «Anaerobic bioremediation of hexavalent uranium in,» *Water Research*, cilt 44, pp. 2153-2162, **2010**.
- [103] Belli, K. M., & Taillefert, M., «Geochemical controls of the microbially mediated redox cycling of uranium and iron,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 235, pp. 413-449, **2018**.
- [104] Waite, T. D., Davis, J. A., Payne, T. E., Waychunas, G. A., & Xu, N., «Uranium (VI) adsorption to ferrihydrite: Application of surface complexation model,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 58, pp. 5465-5478, **1994**.
- [105] Ulrich, K. U., Veeramin, H., Bernier-Latmani, R., & Giammar, D. E., «Speciation-dependent kinetics of uranium (VI) bioreduction,» *Geomicrobial Journal*, cilt 28, pp. 396-409, **2011**.
- [106] Belli, K. M., DiChristina, T. J., Cappellen, P. V., & Taillefert, M., «Effects of aqueous uranyl speciation on the kinetics of microbial uranium reduction,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 157, pp. 109-124, **2015**.
- [107] Nilgiriwala, K. S., Alahari, A., Rao, A. S., & Apte, S. K., «Cloning and overexpression of Alkaline Phosphatase PhoK from *Sphingomonas* sp. strain BSAR-1 for bioprecipitation of uranium from alkaline solutions,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 74, no. 17, pp. 5516-5523, **2008**.
- [108] Behrends, T., & Cappellen, P. V., «Competition between enzymatic and abiotic reduction of uranium (VI) under iron reducing conditions,» *Chemical Geology*, cilt 220, pp. 315-327, **2005**.

- [109] Hua, B., Xu, H., Terry, J., & Deng, B., «Kinetics of uranium (VI) reduction by hydrogen sulfide in anoxic aqueous system,» *Environmental Science and Technology*, cilt 40, pp. 4666-4671, **2006**.
- [110] Merroun, M. L., & Selenska-Pobell, S., «Bacterial interactions with uranium: An environmental perspective,» *Journal of Contaminant Hydrology*, cilt 102, no. 3-4, pp. 285-295, **2008**.
- [111] Lovley, D. R., Philips, E. P., Gorby, Y. A., & Landa, E. R., «Microbial reduction of uranium,» *Nature*, cilt 59, no. 11, pp. 413-416, **1991**.
- [112] Suzuki, Y., & Suko, T., «Geomicrobiological factors that control uranium mobility in the environment: update on recent advances in the bioremediation of uranium-contaminated sites,» *Journal of Mineral Petrol Science*, cilt 101, no. 6, pp. 299-307, **2006**.
- [113] Wall, J. D., & Krumholz, L. R., «Uranium reduction,» *The Annual Review of Microbiology*, cilt 60, pp. 149-166, **2006**.
- [114] Francis, A. J., Dodge, C. J., Lu, F., Halada, G. P., & Clayton, C. R., «XPS and XANES studies of uranium reduction by *Clostridium* sp.,» *Environmental Science Technology*, cilt 48, pp. 275-289, **1994**.
- [115] Lloyd, J. R., Chesnes, J., Glasauer, S., Bunker, D. J., Livens, F. R., & Lovley, D. R., «Reduction of actinides and fission products by Fe(III)-reducing bacteria,» *Geomicrobiological Journal*, cilt 19, pp. 103-120, **2002**.
- [116] Lovley, D. R., Widman, P. K., Woodward, J. C., & Philips, E. P., «Reduction of uranium by cytochrome c3 of *Desulfovibrio vulgaris*,» *Applied Environmental Microbiology*, cilt 59, pp. 3572-3576, **1993**.
- [117] Shelobolina, E. S., Sullivan, S. A., O'Neill, K. R., & Lovley, D. R., «Isolation, characterization, and U(VI)-reducing potential of a facultatively anaerobic, acid-resistant bacterium from low-pH, nitrate- and U(VI)-contaminated subsurface sediment and description of *Salmonella subterranea* sp.,» *Applied Environmental Microbiology*, cilt 70, pp. 2959-2965, **2004**.

- [118] Sima Sariaslan, Geoffrey Michael Gadd. *Advances in Applied Microbiology*. Delaware. USA: Zoe Kruze. **2017**. p. 115.
- [119] Robert, A. S., *Cytochrome C: A multidisciplinary approach*. Sausalito University Science. **1996**.
- [120] Liu, J.-x., Xie, S.-b., Wang, Y.-h., & Liu, Y.-j., «U(VI) reduction by *Shewanella oneidensis* mediated by anthraquinone-2-sulfonate,» *Transaction of Nonferrous Metals Society of China*, cilt 25, pp. 4144-4150, **2015**.
- [121] Senko, J. M., Kelly, S. D., Dohnalkova, A. C., Mc.Donough, J. T., Kemner, M. K., & Burgos, W. D., «The effect of U(VI) bioreduction kinetics on subsequent reoxidation of biogenic U(IV),» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 71, pp. 4644-4654, **2007**.
- [122] Li, X., Ding, C., Liao, J., & Du, L., «Microbial reduction of uranium U(VI) by *Bacillus* sp. dwc-2: A microscopic and spectroscopic study,» *Journal of Environmental Science*, cilt 9, p. 15, **2017**.
- [123] Sani, R. K., Peyton, B. M., Smith, W. A., Apel, W. A. ve Petersen, J. N., «Dissimilatory reduction of Cr(VI), Fe(III), and U(VI) by *Cellulomonas* isolates,» *Applied Microbial Biotechnology*, cilt 60, pp. 192-199, **2002**.
- [124] Mtimunye, P. J., & Chirwa, E. M., «Characterization of the biochemical-pathway of uranium (VI) reduction in facultative anaerobic bacteria,» *Chemosphere*, cilt 113, pp. 22-29, **2014**.
- [125] Lee, S. Y., & Baik, M. H., «Biological Immobilization of Dissolved Uranium - 11578,» %1 içinde *WM2011 Conference*, Daejeon, Korea, **2011**.
- [126] Mtimunye, P., & Chirwa, E., «Biological reduction of radionuclides under facultative anaerobic conditions using radiation tolerant consortium,» *WEFTEC*, **2013**.
- [127] Wu, Q., Sanford, R. A., & Löffler, F. E., «Uranium (VI) Reduction by *Anaeromixobacter dehalogenans* Strain 2CP-C,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 72, no. 5, pp. 3608-3614, **2006**.

- [128] Khijniak, T. V., Slobodkin, A. I., Renshaw, J. S., Coker, V., & Livens, F. R., «Reduction of Uranium (VI) Phosphate during Growth of the Thermophilic Bacterium *Thermoterrabacterium ferrireducens*,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 71, no. 10, pp. 6423-6426, **2005**.
- [129] Chabalala, S., & Chirwa, E. M., «Uranium (VI) reduction and removal by hng performing perified anaerobic cultures from mine soil,» *Chemosphere*, cilt 78, pp. 52-55, **2010**.
- [130] Abdelouas, A., Lutze, W., Gong, W., Nuttall, E. H., Strietelmeier, B. A., & Travis, B. J., «Biological reduction of uranium on groundwater and subsurface soil,» *The Science of the Total Environment*, cilt 250, pp. 21-35, **2000**.
- [131] Gargarello, R. M., Gregorio, D. D., Huck, H., Niello, J. F., & Curutchet, G. «Reduction of uranium (VI) by *Acidithiobacillus thiooxidans* and *Acidithiobacillus ferrooxidans*,» *Hydrometallurgy*, cilt 104, pp. 529-532, **2010**.
- [132] Ray, A. E., Bargar, J. R., Sivaswamy, V., Dohnalkova, A. C., & Fujita, Y., «Evidence for multiple modes of uranium immobilization by an anaerobic bacterium,» *Geochemica et Cosmochimica Acta*, cilt 75, pp. 2684-2695, **2011**.
- [133] Roden, E. E., & Scheibe, T. D.e, «Conceptual and numerical model of uranium (VI) reductive immobilization in fractured subsurface sediments,» *Chemosphere*, cilt 59, pp. 617-628, **2005**.
- [134] Mullen, L., Klepac, V., Pharino, C., Czerwinski, K., & Polz, M., «Cell density dependent reduction kinetics of hexavalent uranium bu *Shewanella oneidensis*,» *Materials Research Society symposia proceedings*, p. 757, **2002**.
- [135] Shelobolina, E. S., Coppi, M. V., Korenevsky, A. A., & DiDonato, L. N., «Importance of c-type cytochromes for U(VI) reduction by *Geobacter sulfurreducens*,» *BMC Microbiology*, cilt 7, p. 16, **2007**.
- [136] Gorby, Y. A., & Lovley, D. R., «Enzymatic uranium precipitation,» *Environmental Science Technology*, cilt 26, pp. 205-207, **1992**.

- [137] Fletcher, K. E., Boyanov, M. I., Thomas, S. H., Wu, Q., Kemner, K. M., & Löffler, F. E., «U(VI) reduction to mononuclear U(IV) by *Desulfitobacterium* species,» *Environmental Science Technology*, cilt 44, pp. 4705-4709, **2010**.
- [138] Sanford, R. A., Wu, Q., Sung, Y., Thomas, S. H., Amos, B. K., Prince, E. K., & Löffler, F. E., «Hexavalent uranium supports growth of *Anaeromixobacter dehalogenans* and *Geobacter* spp. with lower than predicted biomass yields,» *Environmental Microbiology*, cilt 9, pp. 2885-2893, **2007**.
- [139] Dargent, M., Truche, L., Dubessy, J., Bessaque, G., & Marmier, H., «Reduction kinetics of aqueous U(VI) in acidic chloride brines to uraninite by methane, hydrogen or C-graphite under hydrothermal conditions: Implications for the genesis of unconformity-related uranium ore deposits,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 167, pp. 11-26, **2015**.
- [140] Sawyer C.N., M. P., Chemistry for Environmental Engineering and Science, 5 dü., New York: McGraw-Hill, **2003**, p. 763.
- [141] Guillaumont R., F. T., Update on the chemical thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium., Amsterdam: Elsevier, **2003**, p. 959.
- [142] Bender, J., Duff, M. C., Philips, P., & Hill, M., «Bioremediation and Bioreduction of Dissolved U(VI) by Microbial Mat Consortium Supported on Silica Gel Particles,» *Environmental Science and Technology*, cilt 34, pp. 3235-3241, **2000**.
- [143] Finneran, K. T., Anderson, R. T., Nevin, K. P., & Lovley, D. R., «Potential for bioremediation of uranium contaminated aquifers with microbial U(VI) reduction,» *Soil and Sediment Contamination*, cilt 11, pp. 339-357, **2002**.
- [144] Yohey, S., Shelly, D. K., Kenneth, M. K., & Jillian, F. B., «Direct microbial reduction and subsequent preservation of uranium in near surface sediment,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 71, pp. 1790-1797, **2005**.
- [145] Craig, D. K., «Chemical and radiological toxicity of uranium and its compounds. WSRC-TR,» Westinghouse Savannah River Company, Aiken, **2001**.

- [146] Wielinga, B., Bostick, B., Hansel, C., Rosenzweig, R., & Fendorf, S., «Inhibition of bacterially promoted uranium reduction: Ferric (hydr)oxide as competitive electron acceptors,» *Environmental Science Technology*, cilt 34, pp. 2190-2195, **2000**.
- [147] Zheng-Ji, K.-X. T., «Influence of Environmental factors on reductive bioprecipitation of uranium by sulfate reducing bacteria,» *International Biodeterioration and Biodegradation*, cilt 60, pp. 258-266, **2007**.
- [148] O'Loughlin, E. J., Kelly, S. D., Cook, R. E., Csencsits, R., & Kemner, K. M., «Reduction of uranium (VI) by mixed iron(II)/iron(III) hydroxide (green rust): formation of UO₂ nanoparticles,» *Environmental Science and Technology*, cilt 37, pp. 721-727, **2003**.
- [149] Boonchayaanant, B., Gu, B., Wang, W., Ortiz, M. E., & Criddle, C. S., «Microbially-generated hydrogen sulfide can account for the rates of U(VI) reduction by sulfate reducing bacteria,» *Biodegradation Journal*, **2009**.
- [150] Roy, W. J., & Thomas, J. D., «Isolation of U(VI) reduction-deficient mutant of *Shewanella putrefaciens*,» *FEMS Microbiology Letters*, cilt 184, pp. 143-148, **2000**.
- [151] Chang, Y., Peacock, A. D., Long, P., Stephen, J. R., McKinley, J. P., & e.t.c., «Diversity and characterization of sulfate-reducing bacteria in groundwater at a uranium mill tailing site,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 67, pp. 3149-3160, **2001**.
- [152] Holems, D. E., Finneran, K. T., O'Neil, R. A., & Lovley, D. R., «Enrichment of members of the family Geobacteraceae associated with stimulation of dissimilatory metal reduction in uranium-contaminated aquifer sediments,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 68, pp. 2300-2306, **2002**.
- [153] Elias, D. A., Suflita, J. M., & McInerney, J. M., «Periplasmic cytochrome c₃ of *Desulfovibrio vulgaris* is directly involved in H₂-mediated metal but not sulfate reduction,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 70, pp. 413-420, **2004**.
- [154] Nadia, N. N., Sherry, L. D., Lainie, P., Jonathan, D. I., David, L. B., & Joel, E. K., «Change in bacterial community structure during in-situ biostimulation of subsurface

- sediment cocontaminated with uranium and nitrate,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 70, pp. 4911-4920, **2004**.
- [155] Yi, Z.-J., Tan, K.-X., Tan, A.-L., Yu, Z.-X., & Wang, S.-Q., «Influence of environmental factors on reductive bioprecipitation of uranium by sulfate reducing bacteria,» *International Biodeterioration and Biodegradation*, cilt 60, pp. 258-266, **2007**.
- [156] Scott, C. B., James, K. F., Sue, L. C., David, W. K., & e.t.c., «Inhibition of bacterial U(VI) reduction by calcium,» *Environmental Science and Technology*, cilt 37, pp. 1850-1858, **2003**.
- [157] Sani, R. K., Peyton, B. M., Amonette, J. E., & Geesey, G. G., «Reduction of U(VI) under sulfate-reducing conditions in the presence of Fe(III) (hydr)oxides,» *Geochimica et Cosmochimica Acta*, cilt 68, pp. 2639-2648, **2004**.
- [158] Payne, R. B., Gentry, D. M., RappGiles, B. J., Casalot, L., & Wall, J. D., «Uranium reduction by *Desulfovibrio desulfuricans* strain G20 and cytochrome c3 mutant,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 69, pp. 5884-5891, **2002**.
- [159] Haluk, B., Rajesh, K. S., Brent, M. P., Alice, C. D., James, E. A., & Zbigniew, L., «Uranium immobilization by sulfate reducing biofilms,» *Environmental Science and Technology*, cilt 38, pp. 2067-2074, **2004**.
- [160] Sani, R. K., Parton, B. M., Dohnalkova, A., & Amonette, J. E., «Reoxidation of reduced uranium with Fe (III) (hydr)oxide under sulfate-reducing conditions,» *Environmental Science and Technology*, cilt 39, pp. 2059-2066, **2005**.
- [161] Hu, N., Ding, D.-x., Li, S.-M., Tan, X., Li, G.-y., Wang, Y.-d., & Xu, F., «Bioreduction of U(VI) and stability of immobilized uranium under suboxic conditions,» *Journal of Environmental Radioactivity*, cilt 157, pp. 60-67, **2016**.
- [162] Moon, H. S., McGuinness, L., Kukkadapu, R. K., Peacock, A. D., & e.t.c., «Microbial reduction of uranium under iron- and sulfate- reducing conditions: Effect of amended goethite on microbial community composition and dynamics,» *Water Research*, cilt 44, pp. 4015-4028, **2010**.

- [163] Lloyd, J. R., Noling, H. F., Sole, V. A., Bosecker, K., & Macaskie, L. E., «Technetium reduction and precipitation by sulfate-reducing bacteria,» *Geomicrobiology Journal*, cilt 15, pp. 45-58, **1998**.
- [164] Waybrant, K. R., Blowes, D. W., & Ptacek, C. J., «Selection of reactive mixtures for use in permeable reactive walls for treatment of mine drainage,» *Environmental Science and Technology*, cilt 32, pp. 1972-1979, **1998**.
- [165] Webb, J. S., McGuinness, S., & Lappin-Scott, H. M., «Metal removal by sulfate-reducing bacteria from natural and constructed wetlands,» *Journal of Applied Microbiology*, cilt 84, pp. 240-248, **1998**.
- [166] Gibert, O., Pablo, d. J., Cortina, J. L., & Ayora, C., «Treatment of acid mine drainage sulfate reducing bacteria using permeable reactive barriers: a review from laboratory to full-scale experiment,» *Environmental Science and Bio/Technology*, cilt 1, pp. 327-333, **2002**.
- [167] Juan, L., Weber, F.-A., Cirpka, O. A., Wu, W.-M., & e.t.c., «Modeling in-situ uranium(VI) bioreduction by sulfate reducing bacteria,» *Journal of Contaminant Hydrology*, cilt 92, pp. 129-148, **2007**.
- [168] Robert A.S., G. A., *Cytochrome C: A multidisciplinary approach*, Sausalito University Science, **1996**.
- [169] Wang, M. Y., Liang, X. B., Zheng, Y. P., Zhao, Y. Z., & Wei, Z. Q., «Advances in identification of sulfate reducing bacteria and its detection method,» *Journal of Microbiology*, cilt 25(6), pp. 81-84, **2005**.
- [170] Zhang, F., Wu, W.-M., Parker, J. C., Mehlhorn, T., & Kelly, S. D., «Kinetic analysis and modeling of oleate and ethanol stimulated uranium (VI) bio-reduction in contaminated sediments under sulfate reducing conditions,» *Journal of Hazardous Material*, cilt 183, pp. 482-489, **2010**.

- [171] Azabou, S., Mechichi, T., & Sayadi, S., «Zink precipitation by heavy-metal tolerant sulfate-reducing bacteria enriched on phosphogypsum as a sulfate source,» *Minerals Engineering*, cilt 20, pp. 173-178, **2007**.
- [172] Luo, J., Weber, F.-A., Cirpka, O. A., Wu, W.-M., & Nyman, J. L., «Modeling in-situ uranium(VI) bioreduction by sulfate-reducing bacteria,» *Journal of Contaminant Hydrology*, cilt 92, pp. 129-148, **2007**.
- [173] Spear, J. R., Figueroa, L. A., & Honeyman, B. D., «Modeling the removal of uranium U(VI) from aqueous solutions in the presens of sulfate reducing bacteria,» *Environmental Science Technology*, cilt 33, no. 15, pp. 2667-2675, **1999**.
- [174] Erkaya, I. A., Arica, M. Y., Akbulut, A., & Bayramoğlu, G., «Biosorption of uranium(VI) by free and entrapped *Chlamydomonas reinhardtii*: kinetik, equilibrium and thermodynamic studies,» *Journal Radioanal. Nucl. Chem.*, cilt 299, pp. 1993-2003, **2014**.
- [175] Suresh Kumar, K., «Microalgae – A promising tool for heavy metal remediation,» *Ecotoxicology and Environmental Safety*, pp. 329-352, **2015**.
- [176] Monteiro C, C. P., «Metal uptake by microalgae: underlying mechanisms and practical applications,» *Wiley Online Library*, pp. P-4200, 6 January **2012**.
- [177] Laliberte G., Proulex, D., De Pauw N., De la Noue J., «Algal Technology in Wastewater Treatment,» cilt 5, no. 7, pp. 283-382, **1994**.
- [178] Philip D.S., Peters T., Adams V.D., Middlebrooks E.J., «Residual heavy metal removal by an algae-intermittent sand filtration system.,» *Water Resourse*, cilt 13, no. 3, **1979**.
- [179] Pena-Castro, J.M. «Heavy metals removal by the microalga *Scenedesmus* sp. *incrassatulus*,» *Bioresource Technology*, p. February , 13 February **2004**.
- [180] Zeraatkar, A. K., H. Ahmadzadeh, A. F. Talebi, N. R. Moheimani and M. P. McHenry (2016). "Potential use of algae for heavy metal bioremediation, a critical review.,

- «Potential use of algae for heavy metal bioremediation, a critical review,» *Journal of Environmental Management* 181, pp. 817-831, 26 June **2016**.
- [181] Zhang, X., X. Zhao, C. Wan, B. Chen and F. Bai, «Efficient biosorption of cadmium by the self-flocculating microalga *Scenedesmus* sp. obliquus AS-6-1».
- [182] da Fontoura, J. T., «Influence of light intensity and tannery wastewater concentration on biomass production and nutrient removal by microalgae *Scenedesmus* sp.,» *ntitution of Chemical Engineers*, cilt 111, pp. 355-35, **2017**.
- [183] Ferreira, A., B. Ribeiro, P. A. S. S. Marques, A. F. Ferreira, A. P. Dias, H. M. Pinheiro, A. Reis and L. Gouveia, «*Scenedesmus* sp. obliquus mediated brewery wastewater remediation and,» *Journal of Cleaner Production* 165, pp. 1316-1327, 31 July **2017**.
- [184] Zhang, J., Ding, T. and Zhang, C., «Biosorption and toxicity responses to arsenite (As[III]) in *Scenedesmus* sp.,» *Chemosphere* 92, p. 1077–1084, 27 February **2013**.
- [185] Dosnon-Olette, R., P. Trotel-Aziz, M. Couderchet and P. Eullaffroy, «Fungicides and herbicide removal in *Scenedesmus* sp. cell suspensions,» *Chemosphere* 79, p. 117–123, 24 February **2010**.
- [186] Chansong Zhao, Jun Liu, Xiyang Li, «Biosorption and biaccumulation behavior of uranium on *Bacillus* sp. dwc-2: Investigation by Box-Behenken design method,» *Journal of Molecular Liquids*, cilt 221, pp. 156-165, **2016**.
- [187] Moghaddam M.R., Fatemi Sh., Keshtkar A., «Adsorption of lead and uranium cations by brown algae; experimental and thermodynamic modeling,» *Chemical Engineering Journal*, cilt 231, pp. 294-303, **2013**.
- [188] Horikoshi T, Nakajima A, Sakaguchi T., «Uptake of uranium by various cell fractions of *Chlorella* sp. regularis.,» *Radioisotopes*, cilt 28, no. 8, pp. 485-488, **1979**.
- [189] Alix Günther, Johannes Raff, Gerhard Geipel, Gert Bernhard, «Spectroscopic investigations of U(VI) species sorbed by the green algae *Chlorella* sp. vulgaris,» *Biometals* , cilt 21, pp. 333-341, **2008**.

- [190] Vogel, M., Günther, A., Rossberg, A., Li, B., & Bernh, G., «Biosorption of U(VI) by the green algae *Chlorella* sp. vulgaris in dependence of pH value,» *Science of the Total Environment* , Cilt %1 / %2384-395, p. 409, **2010**.
- [191] «<http://www.frmsinsi.net/showthread.php?t=724094>,» 9.6.**2012**. [Çevrimiçi].
- [192] Rayford B.P., Darren M.G., Barbara J.R.-G., Laurence C., Judy D.W., «Uranium Reduction by *Desulfovibrio desulfuricans* Strain G20 and a Cytochrome c3 Mutant,» *Applied and Environmental Microbiology*, cilt 6, no. 3129, June **2002**.
- [193] Campbell, K. M., Radionuclides in Surface Water and Groundwater, Handbook of Water Purity and Quality, cilt 10, Menlo Park, Middlefield RD: U.S. Geological Survey, **2009**, pp. 213-236.
- [194] Yablokov, A. V., Myth on Environmental Safety of Nuclear Power, Moscow: "Psychology", **2001**, p. 136.
- [195] Sawyer C.N., McCarty PL, Parkin G.F., Chemistry for Environmental Engineering and Science, New York: McGraw-Hill, **2003**, p. 763.
- [196] «www.shutterstock.com - 73714504,» [Çevrimiçi].

ÖZGEÇMİŞ

Kimlik Bilgileri

Adı Soyadı : Gülzat KERİMBAYEVA
Doğum Yeri : Kırgızistan
Medeni Hali : Bekar
E-posta : kerimbaeva_gulza@mail.ru
Adresi : Bişkek, Kırgızistan

Eğitim

Lise : A. S. MAKARENKO, Balıkçı şehri, Kırgızistan
Lisans :Kırgızistan-Türkiye Manas Üniversitesi - Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü
Yüksek Lisans :Kırgızistan-Türkiye Manas Üniversitesi –Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Bölümü
Doktora : Hacettepe Üniversitesi – Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Bölümü

Yabancı Dil Düzeyi

1. Türkçe [Okuma:10 Yazma:10 Konuşma:10]
2. Rusça [Okuma:10 Yazma:10 Konuşma:10]
3. İngilizce [Okuma:10 Yazma:10 Konuşma:10]
4. Kırgızca [Ana dil]

İş Deneyimi

09.2008-06.2010 Kırgızistan-Türkiye Manas Üniversitesi Kırgızistan
Araştırma Görevlisi

Deneyim Alanları

Araştırma görevlisi, Rusça-Türkçe tercümanlık

Tezden Üretilmiş Projeler ve Bütçesi (yok)

Tezden Üretilmiş Yayınlar

Mayıs 2016. 8th Eastern European Young Water Professionals Conference. *Remediation of Uranium Contaminated Water*. Gdansk, Polonya – konferans kitapçığında yayınladı.

Tezden Üretilmiş Sunumlar ve Katıldığı Konferanslar

- ✓ Mayıs 2016. 8th Eastern European Young Water Professionals Conference. *Remediation of Uranium Contaminated Water*. Gdansk, Polonya
- ✓ Ekim. 2015. Ulusal Çevre Kongresi. *Sudaki Uranyumun Biyoremediasyonu*. Afyon, Türkiye



HACETTEPE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
YÜKSEK LİSANS / DOKTORA TEZ ÇALIŞMASI ORJİNALLİK RAPORU

HACETTEPE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLER ENSTİTÜSÜ
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI BAŞKANLIĞI'NA

Tarih: 8/08/2018

Tez Başlığı / Konusu: SUDAKİ URANYUMUN BİYOTEKNOLOJİK ARITIMI

Yukarıda başlığı/konusu gösterilen tez çalışmamın a) Kapak sayfası, b) Giriş, c) Ana bölümler d) Sonuç kısımlarından oluşan toplam 226 sayfalık kısmına ilişkin, 8/8/2018 tarihinde ~~seben~~/tez danışmanım tarafından Turnitin adlı intihal tespit programından aşağıda belirtilen filtrelemeler uygulanarak alınmış olan orijinallik raporuna göre, tezimin benzerlik oranı % 4 'tür.

Uygulanan filtreleme'ler:

- 1- Kaynakça hariç
- 2- ~~Alıntılar hariç~~/dâhil
- 3- 5 kelimedenden daha az örtüşme içeren metin kısımları hariç

Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tez Çalışması Orijinallik Raporu Alınması ve Kullanılması Uygulama Esasları'nı inceledim ve bu Uygulama Esasları'nda belirtilen azami benzerlik oranlarına göre tez çalışmamın herhangi bir intihal içermediğini; aksinin tespit edileceği muhtemel durumda doğabilecek her türlü hukuki sorumluluğu kabul ettiğimi ve yukarıda vermiş olduğum bilgilerin doğru olduğunu beyan ederim.

Gereğini saygılarımla arz ederim.

8.08.2018

Tarih ve İmza

Adı Soyadı: Gulzat KERIMBAEVA

Öğrenci No: N12240169

Anabilim Dalı: Çevre Mühendisliği

Programı: Çevre Mühendisliği

Statüsü: ☐ Y.Lisans ☒ Doktora ☐ Bütünleşik Dr.

DANIŞMAN ONAYI

UYGUNDUR.

Prof.Dr. Ayşenur UĞURLU

(Unvan, Ad Soyad, İmza)