

**T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**TORYUM DİOKSİT ESASLI İNERT MATRİKS
YAKITLARIN SOL-GEL METODU İLE
ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU**

DOKTORA TEZİ

İlker ÖZDEMİR

**Enstitü Anabilim Dalı : METALURJİ VE MALZEME
MÜHENDİSLİĞİ**
Tez Danışmanı : Prof.Dr. İbrahim ÖZBEK
Ortak Danışman : Dr. Ahmet YAYLI

Temmuz 2015

T.C.
SAKARYA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**TORYUM DİOKSİT ESASLI İNERT MATRİKS
YAKITLARIN SOL-GEL METODU İLE
ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU**

DOKTORA TEZİ

İlker ÖZDEMİR

Enstitü Anabilim Dalı : METALURJİ VE MALZEME
MÜHENDİSLİĞİ

Bu tez 04 / 06 /2015 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oybirliği/oyçokluğu i kabul edilmiştir.



Prof. Dr.
Sakin ZEYTİN
Jüri Başkanı



Prof. Dr.
İbrahim ÖZBEK
Üye



Dr.
Ahmet YAYLI
Üye



Doç. Dr.
Halit YAŞAR
Üye


Prof. Dr.
A. Erdal
OSMANLIOĞLU
Üye



Prof. Dr.
Ömer YILDIZ
Üye



Doç. Dr.
Cem ÖZGÜR
Üye



BEYAN

Tez içindeki tüm verilerin akademik kurallar çerçevesinde tarafımdan elde edildiğini, görsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçların akademik ve etik kurallara uygun şekilde sunulduğunu, kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapılmadığını, başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunulduğunu, tezde yer alan verilerin bu üniversite veya başka bir üniversitede herhangi bir tez çalışmasında kullanılmadığını beyan ederim.



İlker ÖZDEMİR

01.07.2015

ÖNSÖZ

Enerjinin günümüzde bir ülkenin varlığını sürdürebilmesi için gerekli olan en temel yapı taşlarından birisi olduğu kabul edilmektedir. Nükleer enerji ise ileri düzeyde gelişim göstermiş ülkelerin hem enerji yönünden hem de silahlanma yönünden asla vazgeçemeyeceği temel bir olgu olarak karşımızda durmaktadır. Şimdilerde her ne kadar uranyum temeline dayalı nükleer yakıt teknolojisinin bariz bir üstünlüğü gözükse de yakın gelecekte toryum esaslı nükleer yakıtlarında boy göstermeye başlayacağı kaçınılmaz bir durumdur. Bu durum hem çevresel gereksinimler ve kazanımlar için hem de nükleer silahlanmanın azaltılması için son derece önemlidir.

Nükleer enerjiye geçiş aşamasında bulunan ve toryum kaynakları açısından oldukça zengin kabul edilen ülkemizin, yakın geleceğe yönelik, toryum esaslı nükleer yakıt teknolojisinde söz sahibi olabilmesi için gerekli adımları atması gerekmektedir. Bu çalışmada toryum esaslı nükleer yakıt türü olan inert matriks yakıtlar araştırılmış ve karakterizasyon incelemeleri yapılmıştır.

Çekmece Nükleer Araştırma Merkezi'nin laboratuvarlarında gerçekleştirilen bu çalışma için öncelikle desteklerini hiç esirgemeyen danışman hocalarım Prof.Dr. İbrahim ÖZBEK ve Dr. Ahmet YAYLI başta olmak üzere tüm Reaktör Malzemeleri Birimi çalışanlarına ve Necmi Usta'ya teşekkürlerimi sunuyorum.

“Bu çalışma SAÜ Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu tarafından desteklenmiştir. (Proje no: 2013-50-02-021)”

İÇİNDEKİLER

ÖNSÖZ	i
İÇİNDEKİLER	v
SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ.....	v
ŞEKİLLER LİSTESİ	vi
TABLolar LİSTESİ	ix
ÖZET	x
SUMMARY	xi

BÖLÜM 1.

GİRİŞ.....	1
1.1. Enerji ve Türkiye	1
1.2. Nükleer Enerji Tanımı ve Tarihçesi	5
1.2.1. Nükleer enerji.....	8
1.2.2. Nükleer fisyon.....	9
1.2.3. Nükleer füzyon.....	10
1.2.4. Nükleer reaktörler	11
1.3. Nükleer Yakıt Malzemeleri.....	12
1.3.1. Uranyum.....	12
1.3.2. Toryum	14
1.4. Türkiye Açısından Nükleer Enerji	15

BÖLÜM 2.

TORYUM VE TORYUM ESASLI NÜKLEER YAKITLAR.....	17
2.1. Toryum Elementi	17
2.1.1. Türkiye'nin toryum rezervi.....	18
2.2. Toryum Dioksit (ThO ₂) ve Özellikleri.....	19
2.2.1. Toryum dioksit esaslı yakıt fabrikasyonu.....	23

2.3. Nükleer Enerji ve Toryum	25
2.3.1. Toryum dioksit esaslı nükleer yakıtlar ve özellikleri	26
2.3.2. Toryum dioksit esaslı yakıtların avantajları ve dezavantajları	32
2.3.3. Toryum esaslı nükleer yakıtlarla ilgili değerlendirmeler	35
2.4. Plütonyumun Bertaraf Edilmesi ve İnert Matriks Yakıtlar	41
2.4.1. Karışık oksit yakıtlar (mixed oxide, MOX)	42
2.4.2. İnert matriks yakıtlar	43
2.4.3. İnert matrix yakıtlar için malzeme seçimi	47
2.4.4. İnert matriks yakıt ile ilgili değerlendirmeler	50
2.5. Nükleer Yakıt Malzemelerinin Üretim Yöntemleri	53
2.5.1. UO ₂ üretimi	54
2.5.1.1. UO ₂ presleme	56
2.5.1.2. UO ₂ sinterleme	56
2.5.2. ThO ₂ üretimi	56
2.5.2.1. Monazitin konsantrasyonu	57
2.5.2.2. Toryumun elde edilmesi	57
2.5.3. Sol-gel prosesi	58

BÖLÜM 3.

SOL-GEL PROSESİ	60
3.1. Nükleer Yakıt Fabrikasyonu İçin Sol-Gel Prosesi	61
3.2. Sol-Gel Prosesinin Genel Akış Şeması	64
3.2.1. Dış jelasyon prosesi (external gelation process)	65
3.2.2. İç jelasyon prosesi (internal gelation process)	69
3.2.3. Sol-gel mikrokürecik peletleme yöntemi (SGMP)	72
3.2.4. Transmutasyon yakıtları için sol-gel prosesi	73
3.2.5. Damlacık oluşumu	73
3.3. Sol-Gel Metodunun Avantajları ve Dezavantajları	74

BÖLÜM 4.

DENEYSEL ÇALIŞMALAR	76
4.1. Başlangıç Malzemeleri ve Özellikleri	76
4.2. Genel Proses	77

4.3. Sol-Gel Prosesi Deney Düzenegi	78
4.4. Başlangıç Çözeltilerinin Hazırlanması	80
4.5. Damlacık Oluşumu ve Jelleşme	81
4.6. Yaşlandırma, Yıkama ve Kurutma.....	82
4.7. Isıl İşlem ve Kalsinasyon.....	82
4.8. Peletleme ve Sinterleme	83
4.9. Karakterizasyon Çalışmaları.....	85
4.9.1. Yoğunluk ve porozite değerlerinin incelenmesi	85
4.9.2. Katı hal incelemeleri	89
4.9.3. Termal davranış (TG/DTA) incelemeleri	96
4.9.4. Dilatometrik analiz.....	99
4.9.4.1. %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi.....	99
4.9.4.2. %15 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi.....	100
4.9.4.3. %25 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi.....	101
4.9.5. Mikroyapı ve yüzey incelemeleri.....	102
BÖLÜM 5.	
SONUÇLAR VE ÖNERİLER	118
KAYNAKLAR.....	122
ÖZGEÇMİŞ	131

SİMGELER VE KISALTMALAR LİSTESİ

Å	: Angstrom
ÇNAEM	: Çekmece Nükleer Araştırma Merkezi
EDS	: Enerji dağılımlı X-ışını spektroskopisi
GWh	: Gigawatt/saat
HMTA	: Hekzametilentetramin
IAEA	: Uluslararası Atom Enerjisi Kurumu
IEA	: Uluslararası Enerji Ajansı
IMF	: İnert matriks yakıt
kWh	: Kilowatt/saat
MOX	: Karışık oksit
MPa	: Mega pascal
MW	: Megawatt
NTE	: Nadir toprak elementleri
ORNL	: Oak Ridge Ulusal Laboratuvarı
PVA	: Polivinil alkol
SGMP	: Sol-gel mikrokürecik peletleme
Sol-gel	: Çözelti-jelleşme
TAEK	: Türkiye Atom Enerjisi Kurumu
TEİAŞ	: Türkiye Elektrik İletim Anonim Şirketi
TEP	: Ton eşdeğer petrol
TG/DTA	: Termogravimetrik ve diferansiyel termal analiz
THFA	: Tetra hedra fulfuril alkol
XRD	: X-ray difraksiyon analizi

ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 1.1. Dünya enerji talebi (TEP: ton eşdeğer petrol)	1
Şekil 1.2. Türkiye birincil enerji üretiminin arzını karşılama oranı.....	3
Şekil 1.3. Kişi başı yıllık elektrik tüketimi [2].....	4
Şekil 1.4. Ülkelerin elektrik üretimindeki nükleer enerjinin payı [2]	6
Şekil 1.5. Nükleer fisyon reaksiyonu	9
Şekil 1.6. Nükleer füzyon reaksiyonu	10
Şekil 1.7. Nükleer reaktör [9].....	11
Şekil 2.1. Türkiye'nin uranyum ve toryum rezervleri.....	18
Şekil 2.2. Uranyum ve toryum dioksitin termal iletkenlik ile sıcaklık arasındaki ilişki [17].....	22
Şekil 2.3. Toryum yakıt döngüsü	28
Şekil 3.1. Sol-gel dış jelasyon prosesi [74]	67
Şekil 3.2. Sol-gel iç jelasyon prosesi [74].....	71
Şekil 4.1. Deney akış şeması.....	78
Şekil 4.2. Deney düzeneğinin şematik görünümü.....	79
Şekil 4.3. Deney düzeneği.....	80
Şekil 4.4. Sol-gel metodu ile elde edilen jelin a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C'de işlem görmüş toz halinin makro görüntüleri	83
Şekil 4.5. Sinterlenmiş IMF ve ThO ₂ peletlerinin görüntüsü.....	84
Şekil 4.6. ThO ₂ ve %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak daldırma yoğunluklarının değişimi.....	85
Şekil 4.7. ThO ₂ ve %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak geometrik yoğunluklarının değişimi.....	86
Şekil 4.8. %5 CeO ₂ IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak geometrik ve daldırma yoğunluk ilişkisi	86
Şekil 4.9. %5, 15 ve 25 CeO ₂ katkılı peletlerde sinterleme süresinin daldırma yoğunluk üzerine etkileri	87

Şekil 4.10. CeO ₂ katkısının daldırma ve geometrik yoğunluk üzerine etkileri.....	87
Şekil 4.11. a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C’de işlem görmüş ThO ₂ tozlarının XRD grafiği.....	90
Şekil 4.12. a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C’de işlem görmüş %5 CeO ₂ katkılı IMF tozlarının XRD grafiği.....	90
Şekil 4.13. a) %5, b) %15, c) %25 CeO ₂ katkılı IMF tozlarının d) ThO ₂ tozunun 1000 °C’de kalsinasyonu sonucu elde edilen XRD grafiği	91
Şekil 4.14. %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin kristalit boyutunun sıcaklık ile değişimi	92
Şekil 4.15. a) 1200, b) 1300, c) 1400, d) 1500, e) 1600, f) 1700 °C’de sinterlenmiş %5 CeO ₂ katkılı IMF peletlerinin XRD grafiği.....	94
Şekil 4.16. a) %5, b) %15, c) %25 CeO ₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiği	94
Şekil 4.17. a) ThO ₂ ile b) %5 CeO ₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiklerinin karşılaştırılması	95
Şekil 4.18. a) %5 CeO ₂ katkılı IMF, b) ThO ₂ , c) CeO ₂ , d) Spinel (MgAl ₂ O ₄) peletlerinin 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiklerinin karşılaştırılması	96
Şekil 4.19. ThO ₂ ’nin TG/DTA grafikleri	98
Şekil 4.20. %5 CeO ₂ katkılı IMF tozunun TG/DTA eğrisi.....	98
Şekil 4.21. %5 CeO ₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi	100
Şekil 4.22. %15 CeO ₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi	100
Şekil 4.23. %25 CeO ₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi	101
Şekil 4.24. %5, %15 ve %25 CeO ₂ katkılı IMF peletlerinin inin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrilerinin karşılaştırılması	102
Şekil 4.25. %5 CeO ₂ içeren bileşimin SEM SEI sırasıyla 1200, 1300 ve 1400 °C’de sinterlenmiş peletlerinin (secondary electron imaging) görüntüleri.....	103
Şekil 4.26. %5 CeO ₂ içeren bileşimin SEM SEI sırasıyla 1500, 1600 ve 1700 °C’de sinterlenmiş peletlerinin (secondary electron imaging) görüntüleri.....	104

Şekil 4.27. %5 CeO ₂ içeren bileşimin SEM BES (back-scattered electrons) görüntüleri a) 1200, b) 1300, c) 1400, d) 1500, e) 1600, f) 1700 °C.....	105
Şekil 4.28. 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş %5 CeO ₂ içeren IMF peletinin parlatılmış yüzeyinin SEM BES görüntüsü.....	106
Şekil 4.29. 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş %5 CeO ₂ içeren IMF peletinin iç yüzeyinin yüzeyinin SEM SEI görüntüsü	107
Şekil 4.30. ThO ₂ 'nin 1700 °C de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletinin a) dış yüzeyinin SEI, b) dış yüzeyinin BES, c) iç yüzeyinin SEI görüntüsü	108
Şekil 4.31. %15 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 4 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	109
Şekil 4.32. % 15 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 8 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	110
Şekil 4.33. %15 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 16 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	111
Şekil 4.34. %25 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 4 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	112
Şekil 4.35. %25 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 8 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	113
Şekil 4.36. %25 CeO ₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 16 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri	114
Şekil 4.37. %5 CeO ₂ içeren IMF 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletinin elementel analizi a) toplam yüzey, b) siyah taneler, c) beyaz taneler	116

TABLolar LİSTESİ

Tablo 1.1. 1990-2011 Dünya birincil enerji arzı gelişimi	2
Tablo 1.2. Ülkemizde yıllara göre elektrik enerji talebi	3
Tablo 1.3. Dünya nükleer santral durumu ve uranyum ihtiyacı	7
Tablo 1.4. Dünya uranyum rezervleri	13
Tablo 1.5. Dünya toryum rezervleri	15
Tablo 2.1. Toryum dioksit ve uranyum dioksitin özellikleri	20
Tablo 2.2. Değişik deneysel ve güç reaktörlerinde toryum kullanımı	29
Tablo 2.3. Değişik yakıt tiplerinin plütonyum ve minör aktinit (MA) tüketim oranları	49
Tablo 2.4. İnert matriks yakıtlar için aday malzemelerin bazı önemli özellikleri	48
Tablo 4.1. ThO ₂ ve %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin yoğunluk değerleri.....	88
Tablo 4.2. Denede kullanılan malzemelerin literatürdeki teorik yoğunlukları	89
Tablo 4.3. Farklı sıcaklıklarda sinterlenen %5 CeO ₂ içeren IMF peletlerinin kristal parametreleri	92
Tablo 4.4. 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletlerin kristal parametreleri....	93
Tablo 4.5. 1000 °C’de kalsine edilmiş tozların kristal parametreleri.....	93

ÖZET

Anahtar kelimeler: Toryum, Sol-Gel Prosesi, İnert Matriks Yakıtlar

Bu çalışmada ülkemizin gelecek yıllar için önemli bir enerji kaynağı olarak kullanılmasını öngördüğü toryum esaslı yakıtların sol-gel prosesine dayalı dış jelasyon yöntemiyle üretilip, özelliklerinin incelenmesi hedeflenmiştir. Nükleer teknolojiye sahip ileri düzeydeki ülkelerin gündemini meşgul eden fazla miktarlardaki plütonyumun ve minör aktinitlerin elimine edilmesi probleminin çözümüne yönelik yakıt teknolojisi geliştirmede önemli bir rol üstlenecek olan toryum esaslı inert matriks yakıtların üretimi ve karakterizasyonu incelenmiştir. Metal nitrat esaslı kimyasallar ($\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, $\text{CeN}_4\text{O}_{12}$, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) kullanılarak dış jelasyon yöntemiyle oksit esaslı yakıt peletleri üretilmiştir. Ayrıca toryum dioksit ve seryum dioksit yüzdesi değiştirilerek seryum dioksitin katkıları incelenmiştir. Herbir metal nitrat çözeltisi 2M olacak şekilde çözeltiler hazırlanmıştır. Başlangıç çözeltisine viskozite ayarlama amacıyla polivinil alkol (%10'luk PVA çözeltisinden, %20 oranında), modifiye edici olarak da tetra hedra fulfuril alkol (THFA, %30 oranında) eklenmiştir. Dış jelasyon yöntemine göre üretimin gerçekleştirilebilmesi için deney düzeneği imal edilmiştir. Besleme çözeltisinden uygun formda jel elde edilebilmesi amacıyla damlacık oluşumu, ön sertleşme ortamı ve ürünlerin birikeceği yer konusunda optimum koşullar belirlenmiştir.

Sol-gel prosesiyle üretilen jel formundaki ürünler yaşlandırma, yıkama ve kurutma safhalarından geçirilerek hedeflenen karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. Buna göre elde edilen ürünlerin TG/DTA analizi ile termal davranışları incelenmiştir. Değişik sıcaklıklarda kurutulan ve 1000 °C'de kalsine edilen ürünlerin X-ışını analizi yapılarak katı hal incelemeleri yapılmış ve kristal parametreleri hesaplanmıştır. Daha sonra elde edilen oksit formundaki tozlardan 500 MPa basınçla, 6 mm çapında peletler hazırlanarak termal davranışları dilatometre ile belirlenmiştir. Aynı peletler değişik sıcaklıklarda sinterlenmiş ve geometrik ve daldırma yoğunlukları hesaplanmıştır. Değişik sıcaklıklarda sinterlenen bu peletlerin mikroyapıları SEM ile incelenmiş ve kıyaslamalı analizleri yapılmıştır.

Sonuç olarak sol-gel prosesiyle istenilen formda toryum esaslı inert matriks nükleer yakıt elde edilmiştir ve elde edilen ürünlerden homojen, yüksek yoğunluklu peletlerin üretimi gerçekleştirilmiştir. Homojen yapı nükleer güvenlik için çok önemlidir. (Th, Al, Mg, Ce) oksit yapısındaki ürünlerin sol-gel yöntemiyle üretimi ve karakterizasyonu ilk kez gerçekleştirilmiştir. Yapılan karakterizasyon incelemeleri sonucunda literatür ile uyumlu sonuçlar bulunmuş ve kıyaslamalı olarak incelenmiştir.

THE PRODUCTION AND CHARACTERIZATION OF THORIA BASED INERT MATRIX FUEL BY SOL-GEL PROCESS

SUMMARY

Keywords: Thorium, Sol-Gel Process, Inert Matrix Fuel

This study aimed to examine the production and characterization of thoria based inert matrix fuel (IMF) that envisaged the use as an important energy source for future by sol-gel external gelation process. The elimination of excess plutonium and minor actinides engaged in the agenda of the countries that have an advanced nuclear technology. Thorium based inert matrix fuel has been thought that has an important role to develop nuclear fuel technology could be solve the problem of elimination of excess plutonium and minor actinides. This study was carried out using nitrate based solutions of $(\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O})$, $\text{CeN}_4\text{O}_{12}$, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ for the external gelation process. Oxide based IMF fuel pellets were produced by sol-gel microsphere pelletization method. In addition, with changing thorium oxide and cerium oxide percentage, the contributions of cerium oxide addition were examined. 2M of metal nitrate solutions were prepared. In addition to initial solution polyvinyl alcohol (PVA, 20%) to adjust the viscosity of solutions and to tetra hydro fulfuryl alcohol (THFA, 30%) as a modifier were added. The experimental set-up were designed to perform the external gelation process, to obtain a suitable form of products; droplet formation, pre-hardening medium and collected products area were investigated and optimum conditions were determined.

The products that produced by sol-gel process were gone through phases aging, washing and drying respectively. After that targeted characterization studies were done through the drying phase. Primarily the thermal behavior of the obtained products were investigated by TG/DTA analysis. Solid state investigations of the gel products that dried at different temperatures and calcined at 1000 °C were calculated with data obtained by X-ray diffraction techniques. Then the oxide powders were pressed at 500 MPa and in 6 mm diameter die to obtain green pellets. The sintering behavior of pellets were investigated by dilatometer. The pellets were sintered at different elevated temperatures and the geometrical and relative density of the pellets were calculated. Microstructures of these pellets were examined by SEM and comparative analyzes were conducted.

In this study, the results showed that multi component (Th, Al, Mg, Ce) oxide structures homogeneously obtained using sol-gel method. This is very important result for nuclear fuel technology because of fuel behaviour in operaion conditions in nuclear reactors. Homogeneous structures means nuclear safety. With the characterization investigation, the results that consistent with the literature were found and the results carried out comparatively.

BÖLÜM 1. GİRİŞ

1.1. Enerji ve Türkiye

İnsanoğlunun vazgeçilmez bir ihtiyacı olan enerji, dünya nüfusunun da her geçen gün artmasıyla giderek önemi artan bir unsur haline gelmiştir. Artan nüfus ile birlikte sanayileşme, kentleşme, küreselleşme de enerjiye ve doğal kaynaklara olan ihtiyacı arttırmaktadır. 21. yüzyılda insanoğlunun en çok tükettiği enerji türü, elektrik enerjisi olmuştur ve bunu ısınma ve ısıtma amaçlı diğer enerji tüketimleri izlemektedir. Uluslararası Enerji Ajansı'nın verilerine göre (IEA), 2035 yılında dünya enerji talebinin bugüne kıyasla %40 oranında artış göstermesi öngörülmektedir (Şekil 1.1) [1].



Şekil 1.1. Dünya enerji talebi (TEP: ton eşdeğer petrol)

Artan büyümeye bağlı olarak elektrik enerjisi tüketiminde de önemli artışlar görülmektedir. Dünya genelinde elektrik enerjisi tüketimi 2007 yılında 18,8 trilyon kWh olarak gerçekleşmiş iken tüketimin 2020 yılında 25 trilyon kWh, 2035 yılında ise 35 trilyon kWh olması öngörülmektedir. Elektrik üretimindeki en büyük artışın yenilenebilir enerji kaynaklarından olduğu gözlemlenirken, sıvı yakıtların elektrik üretiminde kullanımının giderek azalacağı düşünülmektedir. Küresel ısınmanın ön

planda olması yenilenebilir enerji kaynaklarının fosil kaynaklara alternatif olmasını daha da hızlandırmaktadır. Uluslararası Enerji Ajansı “2011 Dünya Enerji Görünümü” raporunda ülkelerin enerji yatırımlarında daha etkili olmaları ve karbon salınımı düşük enerji teknolojilerine yer vermeleri hususlarında önemli uyarılarda bulunmaktadır.

Dünya nüfusunun %1,12'sine sahip olan ülkemiz, dünya enerji tüketiminin %0,93'ünü gerçekleştirmektedir [2]. Ekonomik üretimde ise %1,03'lük bir paya sahiptir. Ülkemiz gibi gelişmekte olan ülkelerde enerji tüketimindeki artış ile ekonomik büyüme arasında ciddi bir ilişki vardır. 2011 ekonomik büyüme verilerine göre ülkemiz büyüme hızında Çin'den sonra ikinci sırada yer almıştır. Bu ise ülkemizin ekonomik olarak büyümesiyle enerji tüketiminde kaçınılmaz bir artış meydana getirmiştir. Türkiye elektrik enerjisi brüt tüketimi 2009 yılında 194,1 milyar kWh iken, 2010 yılında %8,4 artış ile 210,4 milyar kWh olarak gerçekleşmiştir.

Tablo 1.1. 1990-2011 Dünya birincil enerji arzı gelişimi (MTEP)

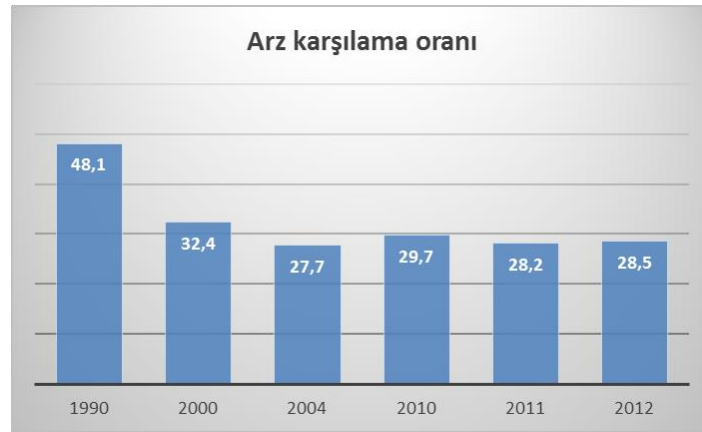
Ülke	1990	2011	Artış (%)
Çin	879	2743	121
Hindistan	317	750	137
Türkiye	53	115	117
Brezilya	138	267	94
ABD	1915	2189	14
Japonya	439	461	5
OECD	4522	5304	17
Dünya	8769	13070	49

Tablo 1.1'de bazı ülkelerin ve Tablo 1.2'de ise ülkemizin elektrik arzının artış değerleri gösterilmiştir. Buna göre 21 yıllık artış dünyada %49 civarındadır. Türkiye için yıllık ortalama artış miktarı ise yaklaşık olarak %5,5 civarındadır. Türkiye Elektrik İletim Anonim Şirketi (TEİAŞ) genel müdürlüğünün hazırladığı Türkiye Elektrik Enerjisi 10 yıllık Üretim Kapasite Projeksiyonu raporuna göre elektrik talebinin 2019 yılında 357 milyar kWh olması öngörülmektedir. Bu öngörü ise 2016 yılından itibaren elektrik arzının, elektrik talebini karşılamayacağı anlamına gelmektedir.

Tablo 1.2. Ülkemizde yıllara göre elektrik enerji talebi

Yıl	GWh	Artış %
1998	114.023	8,1
1999	118.485	3,9
2000	128.276	8,3
2001	126.871	-1,1
2002	132.553	4,5
2003	141.151	6,5
2004	150.018	6,3
2005	160.794	7,2
2006	174.637	8,6
2007	190.000	8,8
2008	198.085	4,3
2009	194.079	-2,0
2010	210.434	8,4

Türkiye'nin enerji konusunda birçok problemi olmasıyla birlikte, öne çıkan en önemli sorun enerjide dışa bağımlı olmasıdır. Giderek artan birincil enerji ihtiyaçları karşısında yerli enerji kaynaklarının hizmete geçirilememesi, enerji arzında dışa bağımlılık, bunun doğurduğu ekonomik ve siyasi olumsuzlukları beraberinde getirmektedir. Ülkemiz yerli üretim birincil enerji arzında Şekil 1.2'de de görüldüğü gibi %72 gibi çok yüksek bir değerde dışa bağımlıdır.



Şekil 1.2. Türkiye birincil enerji üretiminin arzını karşılama oranı

Özellikle günümüzde hayatı daha rahat bir şekilde yaşayabilmek için çeşitli tüketim maddelerini ve ihtiyaçlarımızı daha kolay ve ucuz bir şekilde elde edebilmek, her şeyden önce enerji kaynaklarına bağlıdır. Her türlü mal ve hizmetlerin üretiminde en önemli maliyet kalemini enerji maliyetleri oluşturmaktadır. Aydınlatmadan yollardaki vasıtalara, uçaklardan musluklarımızdan akacak olan suya kadar her şey

enerjiye muhtaçtır. Bir toplum için gerekli olan enerjinin temin edilebilmesi için yeterli enerjinin üretilebilmesi, bir ülkenin öncelikli olarak ele alınması gereken konularının en başında gelir.

Özellikle elektrik enerjisi hemen hemen bütün üretim teknolojilerinde girdi olarak kullanılmakta hem de ev, işyeri ve fabrikalarda çıktı olarak tüketilmektedir. Bu nedenle artan nüfus ve ekonomik gelişmelere paralel olarak bir ülkenin ihtiyacı olan enerji gereksiniminin güvenilir, verimli, düşük maliyetli ve sürdürülebilir olarak sağlanması büyük önem arz etmektedir [3, 4].

Son yıllarda tüm ülkelerin ekonomik gelişmelerinin yanında enerji tüketimlerinin de hızla artış gösterdiği gözlemlenmektedir. Bundan dolayı ihtiyaç olan enerji arzının büyüme ve gelişme oranlarına paralel olarak artırılması gerekmektedir. Enerji sektörü bir ülkenin ekonomik büyüme ve gelişmelerine uyum sağlamak zorundadır. Genel olarak enerji kavramı ülkelerin sosyal gelişmelerinin sağlanmasında, ekonomik büyüme-gelişme ve yaşam standartlarının yükseltilmesinde önemli bir rol oynamaktadır.



Şekil 1.3. Kişi başı yıllık elektrik tüketimi [2]

Şekil 1.3’de bazı ülkelerin kişi başı yıllık elektrik tüketim miktarları verilmiştir. Ülkelerin enerji tüketimleri ile iktisadi büyüme hızları arasında önemli ilişkiler bulunduğu bilinmektedir. Enerji ekonomisi içindeki bu önemli ilişkinin çok sık olarak gözlemlenmesinin en önemli sebebi, iki değişken arasındaki sebep-sonuç

ilişkisinin boyutlarının uygulanacak enerji politikalarına kayda değer ölçüde ışık tutmasıdır [5].

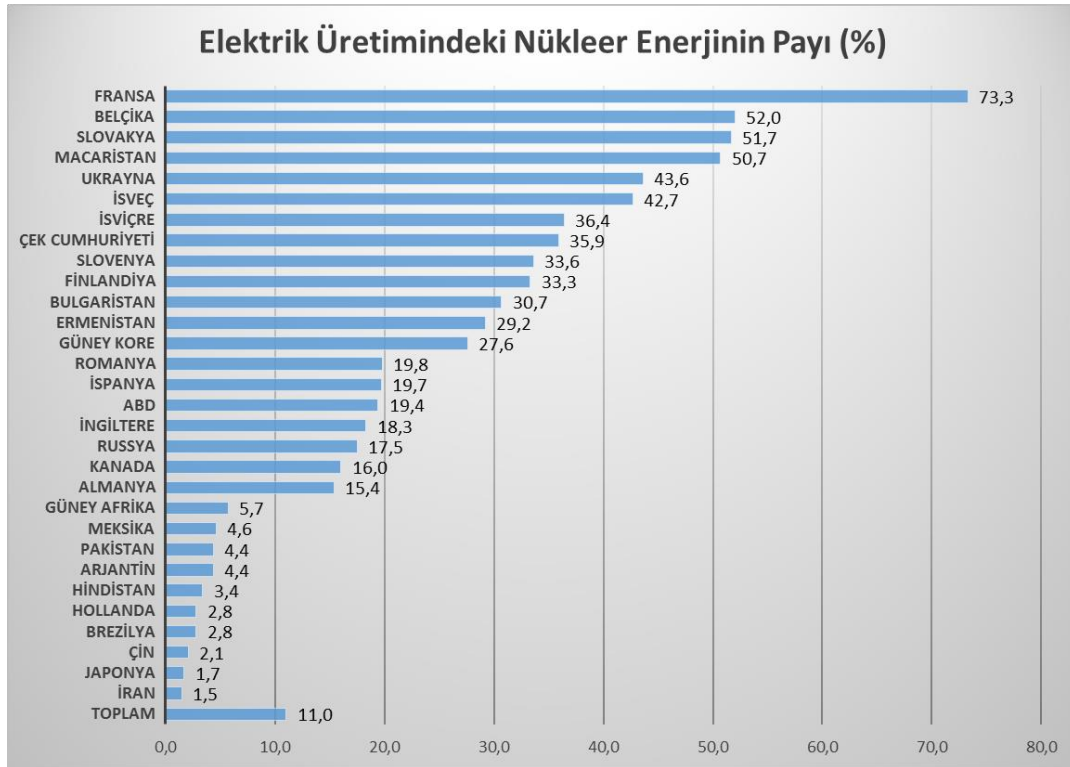
Ülkemizin gerçekleştirmiş olduğu toplam ithalat rakamlarının yüzde 25'i enerji alımından oluşmaktadır. Türkiye'nin 2014 yılındaki cari açığı 46 milyar dolar civarında olduğu düşünüldüğünde bu rakamın azımsanmayacak durumda olduğu ortaya çıkmaktadır. 2030 yılı için öngörülen enerji tüketiminin iki katına çıkması beklenmektedir. Son dönemlerde stratejik değeri daha da artan enerji verimliliğinin en önemli göstergesi enerji yoğunluğu hesaplamalarıdır. Enerji yoğunluğu, bin dolar değerindeki gayrisafi yurtiçi hasıla üretimi için ne kadar enerji tüketildiğini ifade etmektedir. G-20 ülkeleri arasında 2011 yılında yapılan bir araştırmanın sonucuna göre, Türkiye'de bin dolarlık bir üretimin enerji yoğunluğu 0,27 iken Japonya'da ise bu oran 0,10'dur. Diğer bir deyişle aynı işi yapmak için Japonya'nın 3 katı enerji harcamaktayız [6].

1.2. Nükleer Enerji Tanımı ve Tarihçesi

Enerji, gelişmiş ve gelişmekte olan tüm ülkelerde ekonomik ve sosyal faaliyetlerin yürütülmesinde en önde gelen ihtiyaçlardan biridir. Dünya üzerinde daha fazla söz sahibi olmak, istikrarlı ve sürdürülebilir bir kalkınma gerçekleştirmek isteyen ülkelerin enerji konusunda dışa bağımlılıklarını azaltması gerekmektedir. Ülkemizin enerji ihtiyacını kendi kaynaklarımızdan karşılama oranı gün geçtikçe azalmıştır. Ülkemizin sürekli artmakta olan enerji ihtiyacının karşılanabilmesi ve dışa bağımlılığın azaltılabilmesi için alternatif enerji kaynaklarına yönelmesi gerekmektedir. Nükleer enerji de bunlardan birisidir. Mevcut teknolojik gelişmeler ve sanayileşme enerji ihtiyacını sürekli olarak arttırdığından Türkiye'nin enerjide dışa bağımlılığı da artmıştır. Artan bu talep karşısında enerji politikaları dikkatle seçilmeli ve dünyanın ikinci büyük toryum rezervlerine sahip olan ülkemiz nükleer enerji alternatifini en iyi şekilde değerlendirmelidir. Enerjinin temin edilebilme güvenliğinin sağlanması rastlantılara ve plansızlığa bırakılamaz, uzun vadede güvence altına alınması gerekmektedir.

Nükleer enerji bilindiği üzere radyoaktif maddelerin atomlarının çekirdek reaksiyonlarıyla ilgili olup iki şekilde elde edilebilmektedir. Birincisi, çekirdeğin parçalanması (filyon), ikincisi ise iki çekirdeğin birleştirilmesidir (füzyon). Her iki reaksiyon sonucunda da ortaya çıkan enerji ısıya dönüştürülebilir ve daha sonra buhar elde edilip türbinlere gönderilebilir. Bunun neticesinde de termik santrallerde olduğu gibi elektrik enerjisi elde edilmiş olur.

Tablo 1.3’de de görüldüğü üzere dünyada mevcut durum itibariyle 434 adet nükleer santral bulunmaktadır ve filyon esasına dayalı olarak çalışmalarını sürdürmektedir. Bu reaktörler uranyum esaslı yakıtlar kullanmaktadırlar. Elektrik enerjisi üreten bu reaktörler dünyanın elektrik ihtiyacının %11’ini karşılamaktadırlar. Şekil 1.4’de nükleer reaktör sahibi olan ülkelerde toplam elektrik enerjisi üretiminde nükleer enerjinin payının ne kadar olduğu gösterilmiştir. Fransa %73 gibi çok yüksek bir oranla nükleer teknolojiyen en çok elektrik üreten ülke konumundadır. Dünyada en çok nükleer reaktöre sahip olan ABD ise yaklaşık %20’lik bir pay ayırmıştır.



Şekil 1.4. Ülkelerin elektrik üretimindeki nükleer enerjinin payı [2]

Tablo 1.3. Dünya nükleer santral durumu ve uranyum ihtiyacı [1]

NÜKLEER REAKTÖRLER (Haziran 2014)										
ÜLKE	Elektrik Üretimi (2013)	Kullanımda		İnşa halinde		Planlanan		Teklif edilen		İhtiyaç duyulan uranyum
	Milyar kWh	Adet	MW	Adet	MW	Adet	MW	Adet	MW	Ton
ABD	790,2	100	99.361	5	6.018	5	6.063	17	26.000	18.816
Fransa	405,9	58	63.130	1	1.720	1	1.720	1	1.100	9.927
Rusya	161,8	33	24.253	10	9.160	31	32.780	18	16.000	5.456
Güney Kore	132,5	23	20.656	5	6.870	6	8.730	0	0	5.022
Çin	104,8	20	17.055	29	33.035	57	61.235	118	122.000	6.296
Kanada	94,3	19	13.553	0	0	2	1.500	3	3.800	1.784
Almanya	92,1	9	12.003	0	0	0	0	0	0	1.889
Ukrayna	78,2	15	13.168	0	0	2	1.900	11	12.000	2.359
İngiltere	64,1	16	10.038	0	0	4	6.680	7	8.920	1.738
İsveç	63,7	10	9.508	0	0	0	0	0	0	1.516
İspanya	54,3	7	7.002	0	0	0	0	0	0	1.274
Belçika	40,6	7	5.943	0	0	0	0	0	0	1.017
Hindistan	30,0	21	5.302	6	4.300	22	21.300	35	40.000	913
Çek Cumhuriyeti	29,0	6	3.766	0	0	2	2.400	1	1.200	563
İsviçre	25,0	5	3.252	0	0	0	0	3	4.000	521
Finlandiya	22,7	4	2.741	1	1.700	0	0	2	2.700	480
Slovakya	14,6	4	1.816	2	942	0	0	1	1.200	392
Macaristan	14,5	4	1.889	0	0	2	2.400	0	0	357
Japonya	13,9	48	42.569	3	3.036	9	12.947	3	4.145	2.119
Brezilya	13,8	2	1.901	1	1.405	0	0	4	4.000	325
Güney Afrika	13,6	2	1.830	0	0	0	0	6	9.600	305
Bulgaristan	13,3	2	1.906	0	0	1	950	0	0	321
Meksika	11,4	2	1.600	0	0	0	0	2	2.000	277
Romanya	10,7	2	1.310	0	0	2	1.310	1	655	179
Arjantin	5,7	2	935	2	772	0	0	3	1.600	213
Slovenya	5,0	1	696	0	0	0	0	1	1.000	137
Pakistan	4,4	3	725	2	680	0	0	2	2.000	99
İran	3,9	1	915	0	0	1	1.000	1	300	174
Hollanda	2,7	1	485	0	0	0	0	1	1.000	103
Ermenistan	2,2	1	376	0	0	1	1.060	0	0	87
Belarus	0,0	0	0	2	2.400	0	0	2	2.400	0
BAE	0,0	0	0	2	2.800	2	2.800	10	14.400	0
Türkiye	0,0	0	0	0	0	4	4.800	4	4.500	0
Diğer Ülkeler*	0,0	0	0	0	0	18	15.980	52	59.850	0
TOPLAM	2359,0	434	374.611	73	78	172	188.755	309	346.370	65.908

*Diğer ülkeler: Bangladeş, Şili, Mısır, Endonezya, İsrail, İtalya, Ürdün, Kazakistan, Kuzey Kore, Litvanya, Malezya, Polonya, Suudi Arabistan, Tayland, Vietnam

1.2.1. Nükleer enerji

Einstein'ın 1905 yılında $E=mc^2$ formülü ile fisyon (bölünebilme) sonucu ortaya çıkabilecek enerji konusunda öngöründe bulunması ve bunun 1930 yılında Otto Hahn, Lise Meitner ve diğer birkaç bilim adamı tarafından doğrulanması nükleer bilim adına atılmış ilk adımları oluşturmaktadır. Nükleer Enerji, ya bir nötronun ağır bir element atomunun çekirdeğine çarparak yutulması ve bunun sonucunda bu atomun kararsız hale gelerek daha küçük iki veya daha fazla farklı çekirdeğe bölünmesi, ya da hafif radyoaktif atom çekirdeklerinin birleşerek daha ağır atom çekirdeklerini meydana getirmesi sonucu ortaya çıkan enerjiye denir. Bunlardan ilki fisyon, ikincisi füzyon olarak adlandırılır. Fisyon sonucunda ortaya çıkan nötronların, ortamda bulunan diğer fisyon yapabilen atom çekirdekleri tarafından absorblanarak, onları da aynı reaksiyona sokması ve bunun ardışık olarak tekrarlanmasına zincirleme reaksiyon denir. Kontrolsüz bir zincirleme reaksiyon, çok kısa bir süre içinde çok büyük bir enerjinin ortaya çıkmasına neden olur ki, atom bombasının patlaması da bu şekildedir. Nükleer santrallerde ise zincirleme reaksiyon kontrollü bir şekilde yapılır.

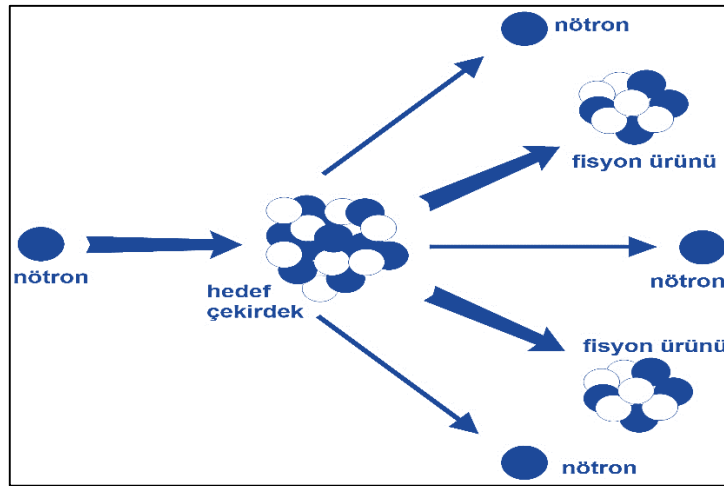
1932 yılında Sir James Chadwick tarafından nötronun keşfinden sonra ilk kez 1939 yılında fisyon ile enerjinin açığa çıktığı tespit edilmiştir. Fisyon enerjisinin tespit edilmesinden sonra 1943 yılında ilk zincirleme reaksiyon kontrolü gerçekleştirilmiştir. Dünyadaki ilk reaktör 1942 yılında Enrico Fermi tarafından Amerika Birleşik Devletleri'nin (ABD) Chicago eyaletinde kurulmuştur. 1945 yılında ilk atom silahı ve 1951 yılında ise nükleer enerjiden ilk elektrik üretimi gerçekleştirilmiştir.

Nükleer enerji ile elektrik üretimi ABD'den sonra sırasıyla İngiltere, Rusya, Fransa ve Almanya'da kullanılmaya başlanmıştır. Daha sonraları bu ülkelere on ülke daha eklenmiştir. 1970'li yıllardaki petrol darboğazı ile nükleer enerjiye talep büyük artış göstermiştir. Ancak daha sonraki yıllarda dünyadaki ekonomik problemlerden dolayı nükleer enerjiye talep sınırlı kalmıştır. Bununla birlikte ABD'de ve Rusya'da meydana gelen nükleer kazaların nükleer teknoloji ile ilgili endişeleri arttırması nükleer bilimin ilerlemesinin yavaşlamasına neden olmuştur.

Bir nükleer reaktörün temel işlevi, suyu kaynatacak ısıyı ve elektriği elde etmek için jeneratör türbinlerine gönderilecek olan buharı üretmesinden ibarettir. Filyon ve füzyon olarak adlandırılan nükleer reaksiyonlar yardımıyla herhangi bir atom çekirdeğinin; alfa parçacıkları, gamma ışınları, nötronlar, protonlar veya herhangi bir atom gibi diğler fiziksel bir varlıkla çarpışması sonucu değışmesiyle reaktörün ihtiyacı olan yüksek enerji elde edilmiş olur.

1.2.2. Nükleer filyon

Uranyum ve plütonyum gibi bazı kararsız yapıdaki elementlerin çekirdeğine bir nötron çarptığında çekirdek iki parçaya bölünür (filyon). Bu çarpma esnasında iki veya üç nötron ve bir miktar enerji açığa çıkar (Şekil 1.5). Ortaya çıkan bu ürünler filyon ürünleri diye adlandırılır. Reaksiyon ürünlerinin toplam kütesinin atomun ve çarpan nötronun orijinal kütesinden biraz daha az olması bize enerjiye dönüşen bir fark olduğunu ve Einstein'ın $E=mc^2$ formülünü bize hatırlatır.



Şekil 1.5. Nükleer filyon reaksiyonu

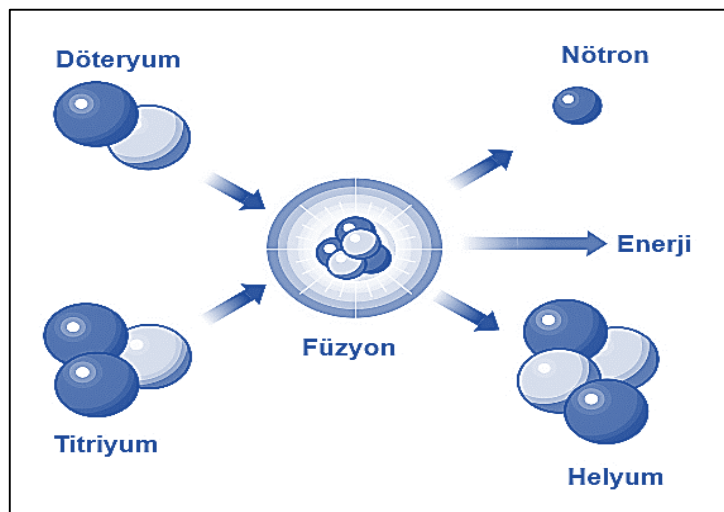
^{235}U 'in filyonu ile ortaya çıkacak filyon ürünleri; Sezyum (Cs), İyot (I), Kripton (Kr), Stronsiyum (Sr), Brom (Br) ve Ksenon (Xe) gibi ürünlerdir. Bu ürünlerin her biri yarı ömür diye isimlendirilen sürelerle bozunuma uğrarlar. Yarı ömür radyoaktif bir maddenin atomlarının yarısının bozunması için gerekli süreye denir. İlk çarpışmadan sonra dışarı atılan filyon ürünleri, yakınında bulunan diğler atomlarla

çarpışmaya başlarlar ve hareket enerjilerinin büyük bir kısmı ısı enerjisine dönüşür. Bu ısı daha sonra soğutucunun ısıtılmasında ve bunun sonucunda elektrik üretiminde kullanılır [7].

Nükleer fisyon reaksiyonu sonucunda ortaya çıkan nötronlar yakınlarındaki fisyonaya uygun atomlarla reaksiyona girerler ve bu atomlar da fisyon yaparak birçok nötron serbest bırakırlar. Böylece devam eden reaksiyona zincirleme reaksiyon denir.

1.2.3. Nükleer füzyon

Fisyon reaksiyonunda ağır atom çekirdeklerinin bölünmesi sonucu enerji açığa çıkmasına karşılık, nükleer füzyon reaksiyonunda ise hafif çekirdeklerin daha ağır bir çekirdeğe dönüştürülerek enerji açığa çıkarılması söz konusudur (Şekil 1.6). Bilinen en basit şekliyle güneşin merkezinde 10–15 milyon °C'lik sıcaklıklarda hidrojen atomları helyuma dönüşerek dünyadaki yaşamın kaynağı olan enerjiyi sağlamaktadır. Ancak füzyon reaksiyonunun ticari amaçlı kullanım alanı bulunmamaktadır. Bu reaksiyonda hidrojenin iki izotopundan biri olan bir nötron ve bir protondan oluşan döteryum ile iki nötron ve bir protondan oluşan diğer izotop trityum, helyum ve bir nötron oluşturacak şekilde birleşerek enerji açığa çıkarırlar [8].



Şekil 1.6. Nükleer füzyon reaksiyonu

1.2.4. Nükleer reaktörler

Atom çekirdeklerinin parçalanması sonucunda açığa çıkan büyük miktarlardaki nükleer enerjiyi elektrik enerjisine dönüştüren sistemlerdir. Filyon sonucu ortaya çıkan ısı enerjisi; bir soğutucu vasıtasıyla çekilerek bazı sistemlerde doğrudan, bazı sistemlerde ise ısı enerjisini başka bir taşıyıcı ortama aktararak, türbin sisteminde kinetik enerjiye ve daha sonra da jeneratör sisteminde, elektrik enerjisine dönüştürülür. Değişik özellikleri (nötron hızı, yakıt cinsi vb.) sebebiyle pek çok nükleer reaktör tasarımı mevcuttur. Yavaşlatıcı ve soğutucu akışkan cinsine göre sınıflandırılması aşağıdaki gibidir:

PWR - Basıncılı hafif su soğutmalı ve yavaşlatıcılı reaktörler (Pressurized Water Reactor)

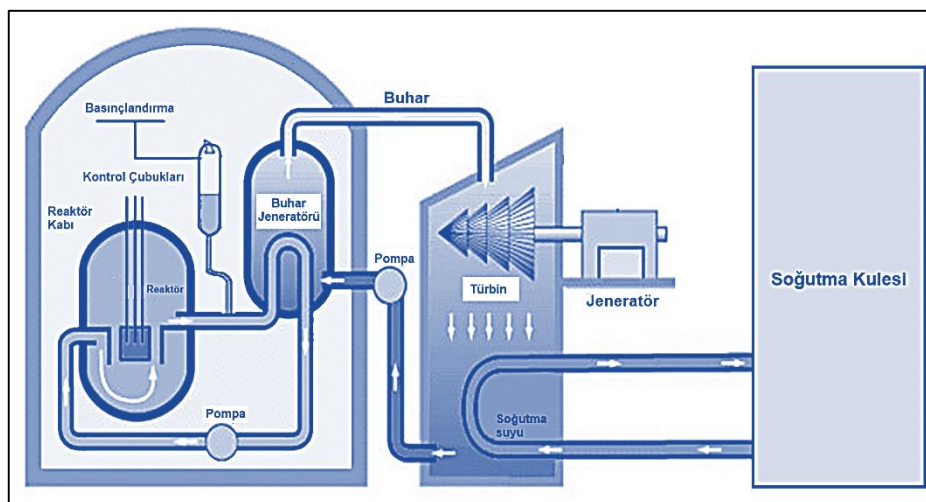
BWR - Kaynar hafif su soğutmalı ve yavaşlatıcılı reaktörler (Boiling Water Reactor)

PHWR - Ağır su soğutmalı ve yavaşlatıcılı reaktörler (Pressurized Heavy Water Reactor)

LWR - Ağır su yavaşlatıcılı ve hafif su soğutmalı reaktörler (Light Water reactor)

MAGNOX - Gaz soğutmalı ve grafit yavaşlatıcılı reaktörler (Gas Cooled Graphit Moderated Reactor)

FBR - Sıvı metal soğutmalı hızlı üretken reaktörler (Fast Breeder Reactor)



Şekil 1.7. Nükleer reaktör [9]

Bu reaktörler içinde en yaygın kullanıma sahip olanlar PWR, BWR ve PHWR tipi reaktörlerdir. PWR reaktörleri %2,5-4,5 oranında zenginleştirilmiş uranyum yakıt ile çalışırlar. Reaktörde üretilen enerji birinci devre soğutucusu olan hafif su diye nitelenen H₂O formüllü su aracılığıyla reaktör kalbinden geçirilir. Buradan çekilen enerji, buhar üreticileri vasıtasıyla ikincil devreye aktarılır ve aktarılan ısı enerjisiyle üretilen buhar, türbin-jeneratör bölümünde elektrik üretimini gerçekleştirmiş olur. PWR reaktörlerinde 150-250 yakıt demeti vardır ve yaklaşık 80-100 ton civarında yakıt kullanır.

Türkiye ile Rusya hükümetleri arasından yapılan antlaşmaya göre Mersin-Akkuyu bölgesi için teklif edilen ve her biri 1200 MW gücünde olan toplam dört üniteden oluşacak nükleer santralde kullanılacak olan reaktör tipi ise VVER1200 tipi reaktördür. VVER (Water Water Energetic Reactor) tipi reaktörlerin diğer basınçlı su reaktörlerinden en önemli farkları; yatay buhar üreteçleri ve hegzagonal örgü biçiminde yerleştirilmiş yakıt demeti tasarımlarıdır.

1.3. Nükleer Yakıt Malzemeleri

Nükleer reaktörlerde yakıt çevrimine bağlı olarak kullanılabilen birkaç çeşit yakıt bulunmasına rağmen başlıca kullanılanlar uranyum, toryum, plütonyum ve bunların bazı izotoplarıdır. Ancak bugün mevcut ticari reaktörlerin hepsinde uranyum esaslı seramik yakıtlar kullanılmaktadır.

1.3.1. Uranyum

1789 yılında keşfedilen uranyum doğada serbest olarak bulunmaz ve çeşitli elementlerle birleşerek uranyum minerallerini meydana getirir. Yeryüzünde uranyum rezervleri görünür ve muhtemel olarak iki şekilde tanımlanmaktadır. Bilinen mineral yataklarında bulunan ve günümüz teknolojisi ile belirlenen üretim maliyetleri sınırları içinde elde edilebilen uranyum rezervlerine görünür rezerv; bunlara ek olarak jeolojik yapısı nedeniyle iyi araştırılmış bölgelerin uzantılarında ve jeolojik sürekliliği belirlenmiş yataklarda bulunması beklenen uranyum rezervlerine ise muhtemel rezervler denmektedir [10]. Dünyadaki uranyum rezervleri Tablo 1.4'de

gösterilmiştir. Bu tabloda kilogram fiyatı 130 dolara kadar olan uranyum rezervleri gösterilmiştir.

Tablo 1.4. Dünya uranyum rezervleri [11]

Ülke	Görünür Kaynak	Muhtemel Kaynak
	130\$/kg a kadar (ton)	130\$/kg a kadar (ton)
Avusturalya	735.000	323.000
Kazakistan	530.460	317.160
ABD	345.000	0
Kanada	333.834	104.710
G.Afrika	315.330	2.550
Namibya	170.532	87.085
Rusya	143.020	121.220
Nijerya	102.227	125.377
Brezilya	86.190	57.140
Özbekistan	79.620	38.840
Ukrayna	64.660	11.410
Mongolia	46.200	15.750
Hindistan	40.980	18.995
Çin	35.060	14.690
Danimarka	20.250	12.000
Cezayir	19.500	0
Orta Afrika	12.000	0
Türkiye	9.130	0
Diğer	82.530	77.993
Toplam	3.171.523	1.327.920

Ülkemizde ise Manisa-Salihli, Yozgat-Sorgun, Çanakkale-Demirtepe bölgelerinde yoğunluklu olmak üzere yaklaşık 9130 ton görünür uranyum rezervi bulunmaktadır. Uranyum elementinin hemen hemen tamamı 2 izotoptan meydana gelmiştir (^{235}U ve ^{238}U). Bunlardan sadece ^{235}U atomu fisildir, yani bütün enerjilerdeki nötronları absorblayarak bölünebilme yeteneğine sahiptir. ^{235}U atomu doğal uranyumun sadece %0,71'i kadardır. Dünyadaki reaktörlerin bazılarında doğal uranyum kullanılmasına rağmen çoğu itibariyle az zenginleştirilmiş (%3-5) uranyum kullanılmaktadır. Zenginleştirilmiş uranyum, içeriğindeki ^{235}U oranı belirli yöntemlerle doğal seviyelerin üzerine çıkartılmış uranyum karışımıdır. Mevcut bilinen üç farklı fisil madde vardır. Bunlardan ilki ve doğada bulunan tek fisil madde olan ^{235}U ; ikincisi doğada bulunmayan ve reaktörlerde ^{238}U 'den meydana gelen ^{239}Pu ; üçüncüsü ise yine doğada bulunmayan ve reaktörde ^{232}Th 'den meydana gelen ^{233}U maddeleridir [12].

1.3.2. Toryum

1828 yılında İsveçli Jöns Berzelius tarafından keşfedilen toryum (Th), yeryüzünde nadir bulunan aktinitler gurubunda yer alan radyoaktif bir elementtir. Doğada uranyuma nazaran üç kat daha fazla ve tek izotopik formu olan ^{232}Th formunda bulunur. Uranyumdan sonra atom numarası yani proton sayısı en yüksek (90) ikinci doğal elementtir. Yeryüzünde daha çok monazit ((Ce, La, Th, Nd, Y)PO₄) ve torit (ThSiO₄) minerallerinde mevcuttur.

Toryum dünyada nadir toprak elementlerinin üretimi esnasında, temel olarak monazitin saflaştırılması sonucu, titanyum, zirkonyum ve kalay gibi elementlerin üretimi amacıyla işlenmesi sırasında bir yan ürün olarak elde edilmektedir. En çok Brezilya, Hindistan ve Malezya'da üretilmektedir. Monazit mineralindeki tenörü ortalama %6-7 olmakla birlikte %12'lere kadar çıkmaktadır. Toryumun erime sıcaklığı 1750 °C'dir. Toryum dioksit (ThO₂) tüm oksitler arasından ergime sıcaklığı en yüksek olan oksittir (3300 °C).

Nükleer enerjide kullanımının yanında, kimyasal açıdan çok kararlı bir malzeme olan ThO₂ ısıtılıp akkor haline getirildiğinde yoğun bir ışımaya sergilemektedir ve bu özelliğiyle 1885 yılında gazlı fenerlerin keşfi ile lüks lambaların gömlek formunda kullanılmıştır. Elektrikle aydınlatma yerini alıncaya kadar önemini korumuştur. Ayrıca ThO₂, tungsten inert gaz kaynağı elektrotlarının bileşiminde ve yüksek ergime sıcaklığı nedeniyle ısıya dayanıklı seramiklerin yapımında kullanılmaktadır.

Dünyada halen yılda 6000-7000 ton civarında monazit cevheri işlenmektedir ve bunun sonucunda 300 ton kadar toryum üretilmektedir. ABD, Hindistan ve Çin'de depolama yapıldığı bilinmektedir. Yaygın bir kullanım alanı olmadığından dünyadaki rezervleri ile ilgili kapsamlı aramalar yapılmamıştır. Mevcut bilinen toryum rezervleri Tablo 1.5'de verilmiştir.

Tablo 1.5. Dünya toryum rezervleri [11]

Ülke	Ton	%
Hindistan	846.000	15,7
Türkiye	744.000	13,8
Brezilya	606.000	11,3
Avustralya	521.000	9,7
ABD	434.000	8,1
Mısır	380.000	7,1
Norveç	320.000	5,9
Venezuela	300.000	5,6
Kanada	172.000	3,2
Rusya	155.000	2,9
Güney Afrika	148.000	2,7
Çin	100.000	1,9
Grönland	86.000	1,6
Finlandiya	60.000	1,1
İsveç	50.000	0,9
Kazakistan	50.000	0,9
Diğer Ülkeler	413.000	7,7
Toplam	5.385.000	100,0

1.4. Türkiye Açısından Nükleer Enerji

Dünyanın nükleer enerjide önde gelen ülkelerinin 1955 yılında “Atom enerjisinin barışçıl amaçlarla kullanılması” amaçlı konferansından sonra Türkiye’de 1956 yılında “Atom Enerjisi Komisyonu” kurulmuştur. 1957 yılında Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı’na üye olmuştur. 1962 yılında İstanbul’da Çekmece Nükleer Araştırma Merkezi (ÇNAEM) kurulmuş ve araştırma geliştirme amaçlı 1 MW gücünde küçük bir araştırma reaktörü inşa edilmiştir. Daha sonra ÇNAEM’de 5 MW gücünde ve İTÜ’de 250 KW gücünde bir araştırma reaktörü kurulmuştur. Geride kalan altmış yıl boyunca Türkiye’de nükleer santral kurulması için birçok girişimlerde bulunulmuş, ancak çeşitli sebeplerden dolayı muvaffak olunamamıştır. Günümüz itibariyle ülkemizde nükleer enerjiye olan ihtiyaç benimsenmiş ve Mersin-Akkuyu yöresi başta olmak üzere Sinop ve başka birkaç ilimizde nükleer santral kurulması planlanmıştır. Yakın bir gelecekte nükleer enerjinin elektrik üretiminde %5’lik bir paya sahip olması hedeflenmektedir.

Türkiye enerji üretimi açısından son derece yüksek bir oranda (%73) dışa bağımlı bir ülke olarak enerji üretimi konusunda kaynak çeşitliliğine önem vererek yerli, yenilenebilir ve sürdürülebilir bir enerji politikası yönetimine muhtaçtır [13]. Bulunduğu konum itibariyle stratejik bir öneme sahip olan ülkemiz enerji konusunda dışa bağımlı olmayı kısa vadede çözüme kavuşturup, bulunduğu coğrafyada kendisini güçlü kılacak politikalar, hedefler üretmek ve hayata geçirmek zorundadır. Bu hedefleri yerine getirme hususunda ise yerli kaynaklar ele alınmalı ve değerlendirilmelidir. Enerji üretiminde çeşitliliğe gidilerek alternatif kaynaklar optimize edilmelidir. Ülkemiz toryum rezervi açısından dünyada önde gelen ülkeler arasındadır. Mevcut durumda toryum ticari şekilde nükleer yakıt olarak kullanılmamaktadır. Ancak bu durum gelecek için böyle devam etmeyecektir. Toryum esaslı yakıt kullanan reaktörler test edilmiş ve ekonomik olarak kullanılabilirliği gösterilmiştir. Almanya'da kullanılan 300 MW gücündeki THTR reaktörü bunun için en iyi örnektir. Başta Hindistan ve Norveç olmak üzere rezerv bakımından zengin ülkeler çok çeşitli araştırma-geliştirme çalışmaları ile çok ciddi mesafeler almıştır ve yakın bir gelecekte toryum yakıt esaslı nükleer santraller gün yüzüne çıkmaya başlayacaktır. Enerji ithalatına yüz milyar dolara yakın kaynak aktaran Türkiye için nükleer enerji ve toryum yakıtı araştırmaları yakın bir zamanda hayata geçirilmelidir.

BÖLÜM 2. TORYUM VE TORYUM ESASLI NÜKLEER YAKITLAR

2.1. Toryum Elementi

1828 yılında İsveçli kimyacı Jöns Jakob Berzelius tarafından keşfedilen toryum, atom numarası 90, atom ağırlığı 232 g/mol olan 11,7 g/cm³ yoğunluğunda ve doğada uranyum gibi serbest halde bulunmayan radyoaktif bir elementtir. Altmış kadar mineralin yapısında bulunan toryumun sadece monazit ((Ce, La, Nd, Th, Y)PO₄) ve toritten ((Th, U)SiO₄) üretimi yapılmaktadır. Bu mineraller genellikle nadir toprak elementlerinin üretimi amaçlı kullanılır ve toryum bir yan ürün olarak elde edilmiş olur. Monazit cevherinde toryumun bolluk oranı %12'lere kadar çıkabilir, ortalama %6-7 civarındadır [14].

Monazit volkanik ve diğer kayalarda bulunur, fakat en zengin konsantrasyonu plaser yataklardadır. Dünyanın monazit kaynaklarının 12 milyon ton olduğu tahmin edilmektedir. Bunların yaklaşık üçte ikisi Hindistan'ın güney ve doğu kıyılarında bulunan ağır mineralli kum yataklarındadır. Toryumun monazitten kazanımı genellikle sodyum hidroksit ile 140 °C'de liç edilmesiyle olmaktadır.

Toryumun kütle numarası 210 ile 236 arasında değişen 27 tane izotopu vardır. Bu izotoplardan en yavaş bozunanı ve kararlı olmaya yakın olan ²³²Th izotopudur ve doğadaki toryumun hemen hemen hepsi ²³²Th'den meydana gelir. Yarılanma ömrü 14 milyar yıl kadardır. Saflaştırıldığı zaman toryum gümüş beyazı metal rengindedir. Th elementi yaklaşık 1750 °C'de ergir ve oksit bileşiği olan ThO₂ ise oksitler arasında en yüksek ergime sıcaklığına (3300 °C) sahip bileşiktir. Bazı ampullerde, kaynak elektrotlarında ve ısı dirençli seramiklerde de kullanılmaktadır [15].

2.1.1. Türkiye'nin toryum rezervi

Ülkemizde değişik zamanlarda Maden Tetkik Arama (MTA) tarafından toryum cevheri üzerinde arařtırmalar yapılmıřtır. Bunlardan bir tanesi 1959 yılı sonlarına doğru uranyum ve toryum için etütler yapılmıř ve Sivrihisar ilçesinin kuzey batısında Kızılcaören, Karkın ve Okçu Köyleri arasında 15 km²'lik bir sahanın toryumun yanı sıra Nadir Toprak Elementleri (NTE) de içerdiiği saptanmıřtır. MTA tarafından yapılan bir diđer çalıřmada ise 1977 yılında, "Eskiřehir-Sivrihisar-Kızılcaören Köyü Yakın Güneyi Bastnazit-Barit-Florit Kompleks Cevher Yatađı" Nihai Etüt Raporu hazırlanmıřtır. Bu rapor sonuçlarına göre bölgedeki cevherin ortalama tenörü %0,2 ThO₂ olup, toplam rezerv yaklaşık 380.000 ton civarındadır [16]. řekil 2.1'de Türkiye'nin sahip olduđu uranyum ve toryum rezervleri harita üzerinde gösterilmiřtir.



řekil 2.1. Türkiye'nin uranyum ve toryum rezervleri

MTA'nın yapmıř olduđu geniş kapsamlı toryum rezervleri arařtırmaları sonucunda bazı önemli veriler ve sonuçlar elde edilmiřtir:

- Sahadaki ekonomik mineraller; florit, barit ve bastnazittir. Toryum, kompleks bünyesindeki monazit ve torobastnazit minerallerinin kafes yapısında yer almaktadır.

- Kompleks cevhere klasik yöntemler uygulandığında toryumun bir fonksiyonda toplanamayacağı, sadece toryumun kazanılmasına yönelik cevher çözündürme işlemleri uygulandığında toryumun yüksek verimle kazanılabileceği fakat işletme maliyetinin çok yüksek olması nedeniyle cevherdeki NTE'lerin elde edilmesi sonucu toryumun yan ürün olarak kazanılmasının daha uygun olacağı belirtilmektedir.
- Toryum ihtiva eden Eskişehir-Sivrihisar cevher yatağındaki, Yaylabası ve Kocayayla sektörlerinde yeterli sayıda sondaj yapılamadığından bu bölgelere ait kesin rezerv tespiti mevcut değildir. Bu bölgelerle birlikte Malatya-Hekimhan-Kuluncak gibi diğer bölgelerde de gerekli çalışmaların yapılması sonucunda ülkemiz toryum rezervinin artacağı tahmin edilmektedir. Ancak bu konu ile ilgili kesin sonuca götürecek herhangi bir çalışma yapılmamıştır.

Sonuç olarak söz konusu sahada (Eskişehir-Sivrihisar) yaklaşık 380.000 ton görünür ThO₂ ve önemli miktarda nadir toprak elementi rezervi belirlenmiştir. Toryum tenörü, seçme numunelerde %3'e kadar çıksa da yatağın ortalaması %0,2'dir. Bu rezervde tespit edilmiş olan ortalama tenörün düşüklüğü ve rezervin kompleks olması durumu toryumun tek başına ekonomik olarak çıkarılabilir olmaktan uzak olduğu sonucunu çıkarmaktadır.

Bu elde edilen sonuçlardan da anlaşılacağı üzere toryumun, nadir toprak elementlerinin rezervlerinde yapılacak olan çalışmalar sonucunda bir yan ürün olarak elde edilmesi daha ekonomik ve faydalı gözükmektedir.

2.2. Toryum Dioksit (ThO₂) ve Özellikleri

ThO₂ hiç şüphesiz toryumu en iyi karakterize eden seramik bileşimidir. Bütün refrakter oksitler içinde en yüksek ergime sıcaklığına sahip olması ve en kararlı bileşik olması bunlardan birkaçıdır. Reaktif malzemelerin ergitilmesi için çok iyi bir pota malzemesidir. ThO₂ genel olarak saflaştırılmış bir tuzu olan okzalattan termal dekompozisyon şeklinde toz olarak elde edilir. Bu tozlar genel seramik fabrikasyon teknikleriyle işlem görmektedir.

Tablo 2.1. Toryum dioksit ve uranyum dioksitin özellikleri [17]

Özellik	Toryum Dioksit	Uranyum Dioksit
Kristal Yapısı	Yüzey merkezli kübik (CaF ₂ tipi)	Yüzey merkezli kübik (CaF ₂ tipi)
Latis Parametresi, Å	26 C'de 5,5974 942 C'de 5,6448	20 C'de 5,4704 946 C'de 5,5246
Teorik Yoğunluğu, g/cm ³	10,00	10,96
Ergime Sıcaklığı, °C	3300	2760
Termal İletkenlik, w.cm ⁻¹ .°C ⁻¹	100 C'de 0,103 400 C'de 0,060 800 C'de 0,034 1000 C'de 0,031	100 C'de 0,105 400 C'de 0,0590 800 C'de 0,0376 1000 C'de 0,0351
Debye Sıcaklığı, °C	473	1143
Young Modülü, psi	1370	1930
Kayma Modülü	990	745
Poison Oranı	0,17	0,302
Kırılma Dayanımı, psi	1	0,16
Sertlik, Knoop (500 g yükle)	640	666

ThO₂, ergime noktasına faz yapısında herhangi bir değişim olmadan florit kristal yapısında, tek bir kübik fazla ulaşır. UO₂ ile karıştırılabilir ve her oranda katı çözelti yapabilir. UO₂'den farklı olarak ThO₂ oksitlenmez. Bundan dolayı oksit ortamlarda yüksek sıcaklıklara kadar kararlıdır. 1800-1900 °C'lere kadar vakum altında ısıtıldığı zaman oksijen kaybıyla birlikte hafif siyahlaşır. Bu kayıp kimyasal analizlerde ya da latis parametresi ölçümlerinde etki etmeyecek kadar azdır. Eğer tekrar 1200-1300 °C'lere kadar ısıtılırsa beyaz renk geri gelir. Tablo 2.1'de toryum ve uranyum dioksidin bazı fiziksel ve kimyasal özellikleri gösterilmiştir.

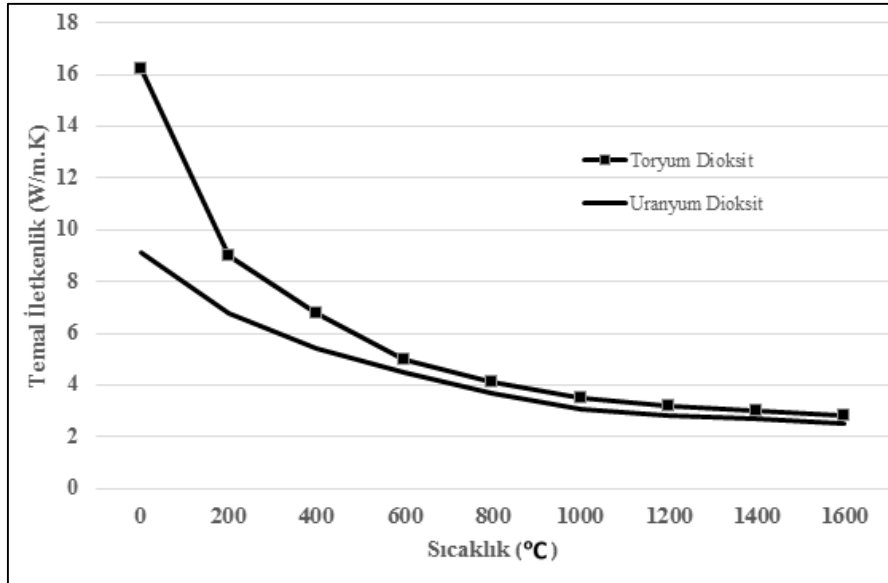
ThO₂, uranyum dioksite (UO₂) nazaran termal iletkenlik, yüksek ergime sıcaklığı ve kimyasal olarak daha kararlı bir yapıda olması gibi daha iyi özelliklere sahiptir. Ergime sıcaklıkları toryum-uranyum-plütonyum oksitin sırasıyla 3378 °C, 2847 °C ve 2428 °C'dir. ThO₂'in daha yüksek ergime sıcaklığına sahip olması daha yüksek sıcaklıklarda çalışmasını ve daha yüksek yanma özelliği (nükleer yakıtın serbest bıraktığı toplam enerjinin, nükleer yakıtın başlangıç kütesine oranının yüksek olması) sağlar [17].

ThO₂, UO₂'e göre kimyasal özellikler bakımından daha kararlı bir yapıda olduğundan daha fazla radyasyon direncine sahiptir. Ayrıca yüksek termal iletkenlik ve düşük termal genişleme katsayısına sahip olduğundan daha iyi termofiziksel özellik gösterir ve bu özellikler nedeniyle UO₂'e göre daha yüksek yanma performansına (burn-up) sahiptir. ThO₂ inert bir yapıya sahiptir ve uranyum gibi okside olmaz. Bu özellik uzun süreli atık depolama faaliyetlerinde çok büyük bir avantajdır.

Yakıt peletlerinin yoğunluğu da önemli bir özelliktir. Oda sıcaklığında yaklaşık olarak ThO₂'nin teorik yoğunluğu 10,00 g/cm³, UO₂'in ise 10,96 g/cm³'tür.

UO₂ ve ThO₂'nin termal genişmesi 727 °C'nin altında birbirine benzer. Ancak yüksek sıcaklıklarda toryumun termal genişmesi uranyuma göre daha azdır. Şekil 2.2'de uranyum ve toryum dioksitin termal iletkenlik ile sıcaklık arasındaki ilişkisini gösteren grafik gösterilmiştir. UO₂ve ThO₂ karışımlarında uranyumun fazla olması termal genişmeyi arttırmaktadır. Plütonyum oksit de toryuma göre daha yüksek termal genişmeye sahiptir. Bu sebeple toryum esaslı yakıt türlerinden birisi olan karışık oksit (Th-MOX, mixed oxide) yakıtlarında termal genişme her zaman daha düşük olacaktır.

Termal iletkenlik yakıt sıcaklık profilini belirlemek için önemli bir kriterdir. Yüksek termal iletkenlik yakıt içerisinde daha düşük yakıt sıcaklık ortalamasına neden olur. Ortamdaki sıcaklığın iyi bir şekilde iletilmesi, istenen bir durumdur. Aksi halde yakıtın orta bölümlerinde çok yüksek sıcaklıklar oluşur ve bu ise yakıt peletinin fiziksel bütünlüğünün bozulması gibi istenmeyen durumlar ortaya çıkarmaktadır. Üç oksit yakıt malzemesi arasında ThO₂ en yüksek termal iletkenliğe sahiptir.



Şekil 2.2. Uranyum ve toryum dioksitin termal iletkenlik ile sıcaklık arasındaki ilişki [17]

UO₂ ve ThO₂ karışımı ise UO₂'e nazaran daha düşük termal iletkenlik özelliği göstermektedir. Plütonyum oksit düşük termal iletkenliğe sahiptir. Ancak toryum esaslı karışık oksit yakıtlar (Th-MOX) uranyum esaslı karışık oksit yakıtlara (U-MOX) göre yakıtları daha yüksek termal iletkenliğe sahiptir.

Işınlanmış yakıtlarda fisyon ürünleri; yakıtın ergime sıcaklığı, termal iletkenlik gibi özelliklerini değiştirmektedir. Toryum esaslı yakıtların yüksek termal iletkenlik özelliğinden dolayı daha az fisyon gazı açığa çıkmaktadır ve bu ise genellikle yakıt sıcaklığına ve yanmaya bağlı olarak değişmektedir. Mevcut MOX yakıtları, pelet yapısında fisyon gazlarının salınmasından dolayı sınırlı yanma oranına sahiptir. Toryum-plütonyum yakıtları düşük miktarda fisyon ürünü üretmektedir ve daha yüksek yanma için önemli bir adaydır. Ek olarak uranyum-toryum yakıtlarında fisyon gazı salınımı uranyum yakıtına nazaran daha azdır [18].

Nükleer reaktör ve yakıt teknolojisinde kullanılmış yakıtların (spent fuel) bazı yakıt çevrimlerinde içerdiği fisil maddelerden dolayı yeniden işlenmesi (reprocess) söz konusudur. Kimyasal olarak kararlılığı yüksek olan ThO₂'in yeniden işleme prosesi (reprocess), plütonyum ve uranyumun yeniden işleme proseslerine nazaran çok zordur. Bu işlem çok ileri ve yüksek seviyeli, uzaktan kumandalı teknoloji gerektirmektedir. Yeniden işleme prosesinde kullanılmış yakıtın çözünmesi için ek

bir katalizör gerekmektedir. Ayrıca ThO_2 'in kimyasal olarak daha kararlı olması atık depolama için çok önemli bir avantajdır. Kimyasal olarak işlenmesi ve okside olması uranyuma göre çok daha zordur.

Toryum yakıt çevriminin esası ^{233}U izotopudur ve bunun yanında ^{232}U de oluşur. ^{232}U çok yüksek gama radyasyonu yayıcı bir malzemedir. ^{233}U esaslı yakıtın yeniden işleme prosesleri için fabrikasyonu MOX yakıtlarına göre daha yüksek gama kalkanı gerektirmektedir ve yakıt fabrikasyon prosesi daha karmaşıktır. Ancak bu durum nükleer teknolojide önemli bir yeri olan plütonyum esaslı nükleer silahların yayılmasının önlenmesi (non-proliferation) hususunda yardımcı olabilecek bir durumdur. Bu açıdan bakıldığı zaman avantajlı gözükmemektedir ve nükleer silah malzemesi olarak çevrilmesi oldukça zordur [19].

2.2.1. Toryum dioksit esaslı yakıt fabrikasyonu

Günümüzde kabul edilmiş bir gerçek olarak karşımıza çıkan önemli bir husus, sürdürülebilir bir gelişme isteyen ülkelerin ancak nükleer güce adapte olarak bu emellerine ulaşabilmesi gerçeğidir. Toryum esaslı yakıtlar gibi alternatif enerji kaynaklarına yönelme bu sürdürülebilirlik politikası için önemli bir adımdır. Son yıllarda plütonyumun yayılma riskinin azaltılmasına duyulan ihtiyaç ile daha uzun yakıt çevrimleri, daha yüksek yanma oranları, iyileştirilmiş atık karakterizasyonu ve plütonyum stokunun azaltılması gibi getirilerinden dolayı toryum yakıt çevrimlerine olan ilgi artış göstermiştir. Uranyum rezervlerinin kısıtlı olmasından ve plütonyumun yayılma riskine olan katkısından dolayı ThO_2 'in nükleer yakıt olarak kullanılması son zamanlarda oldukça dikkat çekmektedir. Toryum, fisil bir ürün değildir ancak fisil bir izotopla ^{233}U 'e dönüştürülebilir.

ThO_2 esaslı nükleer yakıtların fabrikasyonunda kullanılan metotların nükleer yakıtın istenilen özellikleri üzerinde önemli etkileri vardır. Sinterleme esnasında yüzey enerjisi yüksek tozlara ihtiyaç vardır. İyi sinterlenebilir kalitede ThO_2 tozları toryumun okzalat olarak çöktürülmesinden elde edilebilmektedir. Kaliteli uranyum dioksit tozları da amonyum diuranat olarak çöktürülmesinden elde edilir. Elde edilen ThO_2 tozlarında; tane morfolojisi, yüzey alanı, kristal yapısı ve sinterlenebilirliği

üzerinde; sıcaklık değişimlerinin, karıştırmanın (agitation) ve bekleme süresinin (digestion time) çok önemli etkileri bulunmaktadır. En iyi sinterlenebilir toryum dioksit tozları 10 °C'de çöktürülen toryum oksalattan elde edilebilmektedir [20].

ThO₂ peletlerinin UO₂ peletleri gibi fabrikasyonu; toz hazırlama, karıştırma, presleme ve sinterleme aşamalarını içerir. Yüzey alanı ve partikül boyutu gibi özellikler karıştırma ve sinterleme metotlarını etkilemektedirler. UO₂ tozlarının yüzey alanı 2-5 m²/g aralığında değişir ve ham UO₂ peletleri 1700 °C'de hidrojen atmosferi altında sinterlenebilir [21]. ThO₂'in ergime sıcaklığı UO₂'e göre 500 derece daha fazladır ve yaklaşık 3300 °C'dir. Bu ThO₂'in UO₂'e göre daha yüksek sinterleme sıcaklığı olmasını gerektirir. Fakat bu zor bir prosestir ve ekonomik değildir. Bu nedenle daha düşük sıcaklıklarda sinterlenebilen ThO₂ tozları elde etmek önem arz etmektedir.

Sol-gel prosesi de toryum esaslı nükleer yakıt üretiminde karışık oksit yakıt üretimi ve mikrokürecik üretiminde kullanılan yöntemlerden biridir. Sıvı esaslı bir proses olması nedeniyle uzaktan kumanda ile kullanımı mümkündür. Toz hazırlama ve diğer işlem adımlarını azaltır, proses esnasında fisil malzeme ile teması minimize eder. Bu da teknolojik, ekonomik ve radyasyon güvenliği açısından önemli bir avantajdır. Toryum-uranyum karışık yakıtları için birçok metot belirtilmiştir ancak bunlardan en etkili ve güvenilir olanı sulu çöktürme metodu olduğu bilinmektedir.

ThO₂'in sinterlenebilirliği tozun fizikokimyasal özelliklerine bağlıdır ve aktivitesi genellikle tozun yüzey alanının artmasıyla artar. Yüzey alanı toz hazırlama metotlarıyla doğrudan ilişkilidir. Sol-gel yöntemiyle elde edilen ThO₂ tozlarının yüzey alanı 1-50 m²/g aralığında değişir. Bu değer uranyuma nazaran çok yüksektir [22].

Karışık oksit peletler (MOX, mixed oxide), (Th,U)O₂ peletleri toryum ve uranyum dioksit tozlarının karışımının sinterlenmesi ile elde edilir. Karışık oksit yakıtlarının hazırlanması tek olanların hazırlanmasına göre biraz daha zordur, çünkü iki farklı oksitten mekanik yöntemlerle karıştırarak homojen bir yapı elde etmek zor bir prosestir. Bu nedenle katı çözelti hazırlanarak bu sorun aşılabılır.

2.3. Nükleer Enerji ve Toryum

Toryumun nükleer yakıt olarak kullanılmasına ilgi 1950'lerde başlamıştır. ABD, Rusya ve Avrupa toryumdan güç elde edilebilmesi için mümkün olan çalışmalara öncelikli olarak girişimde bulunmuşlardır. 1960'lara gelindiğinde BWR ve PWR tipi reaktörlerde denenmek üzere toryum-uranyum yakıtları yüklenmiştir. Bu reaktörler ThO_2 'le kombine edilmiş yüksek zenginlikli uranyum yakıtları kullanmaktadırlar. Fakat 1970'lerin sonlarında Shippingport nükleer reaktörünün ortaya çıkmasıyla birlikte (U,Th) O_2 peletleri kullanılarak tüketilen fisil malzemeye nazaran daha fazla fisil malzeme ortaya çıkmıştır. Bu reaktör ilk hafif sulu üretken reaktördür. Toryum; ABD, Almanya ve İngiltere'de gaz soğutmalı yüksek sıcaklık reaktörlerinde de test edilmiştir. Bu tip reaktörler toryumu açık yakıt çevriminde kullanmaktadırlar, yani bu reaktörler kesinlikle yeniden işlenmiş ^{233}U kullanmamaktadırlar. Tamamen toryuma dayalı kapalı yakıt çevrimi henüz ortaya çıkmamıştır.

Nükleer yakıt teknolojisinde açık ve kapalı yakıt çevrimi olarak iki tür çevrim bulunmaktadır. Açık çevrimde reaktöre yüklenen yakıt bir kez kullanılır, ömrü bittikten sonra gerekli soğutma işlemleri yapılarak atık tesislerinde bertaraf edilir. Kapalı çevrimde ise reaktöre konulan yakıt belirli bir döngü çerçevesinde yeniden işleme prosesleriyle birlikte reaktörde tekrar kullanılır.

Başlıca toryum araştırmaları daha çok termal reaktörler üzerinde olmuştur. Çünkü termal reaktörler en çok yaygın olan reaktör tipidir. Toryum esaslı yakıtlar hem homojen hem de heterojen yapıda olabilirler. Heterojen yakıtlar homojen yakıtlara nazaran daha iyi nötronik özellikler sergileyebilirler [23]. Daha iyi olan nötronik özellikler sonucunda daha yüksek yanma gerçekleşmektedir. Buna karşın homojen yakıtlar daha iyi termal-hidrolik özellik göstermektedirler. En iyi bilinen heterojen yakıt düzeneği Radkowsky toryum yakıt konseptidir. Bu konseptte çekirdek yakıt (fisil malzeme) ortaya yerleştirilmiştir ve çevresi toryum ile sarılmıştır (blanket, örtü) [24].

Toryum cevheri olan monazit; Hindistan'ın, Avustralya'nın ve Brezilya'nın koyu plaj kumlarında çok büyük miktarlarda bulunmaktadır. Bunlara Norveç, ABD,

Kanada, Güney Afrika ve Türkiye de dahildir. Toryum esaslı yakıt çevrimleri yaklaşık 30 yıldır çalışılmaktadır ancak uranyum ve uranyum-plütonyum yakıtlarının gerisinde kalmıştır. Almanya, Hindistan, Japonya, Rusya, UK ve ABD toryum yakıtlarının test reaktörlerinde ışınlanmasını da içeren çalışmaları birlikte yapmaktadırlar.

Hindistan toryum yakıt çevrimleri konusunda en çok araştırma yapan ülkelerin başında gelmektedir. Bunların semeresini zamanla almışlardır ve toryum esaslı yakıtla çalışan nükleer reaktör tasarımı planlamışlardır. Hindistan 1950 yıllarında üç aşamalı bir nükleer enerji programı tayin etmiştir [25]. İlkinde doğal uranyum yakıtlı basınçlı sulu reaktörlerde (PHWR) kullanılması, ikinci basamak olarak bu reaktörün kullanılmış yakıtlarından elde edilen plütonyumun hızlandırıcılı reaktörlerde (FBR) kullanılması planlanmıştır. Hızlı üretken reaktörler (Fast Breeder Reactor, FBR) MOX (mixed oxide) yakıt kullanmaktadırlar. Bu MOX tipi yakıtlarda ^{233}U yakıtının etrafına ^{232}Th yakıtı örtü (blanket) olarak kullanılmaktadır. Son basamakta ise FBR'lerde toryum esaslı yakıtların kullanılması hedeflenmektedir.

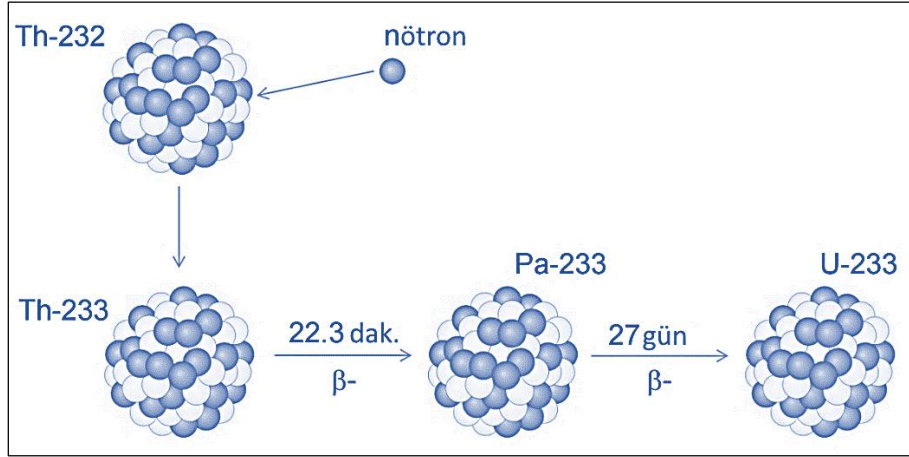
Toryum-uranyum kombinasyonuyla elde edilmiş yakıtların kullanılması plütonyumun yayılma riski ile doğrudan ilişkilidir. Uranyum esaslı yakıtların yerine bu tip yakıtların kullanılması kullanılmış yakıtlardaki plütonyum miktarından önemli derecede azalmalar sağlamaktadır.

2.3.1. Toryum dioksit esaslı nükleer yakıtlar ve özellikleri

Tüm dünyanın nükleer enerji programında baskın olarak çok düşük oranda geri dönüşümüyle birlikte uranyum esaslı yakıtlar kullanılmaktadır. Uranyumun tek geçişli yakıt çevrimi modunda kullanılması uranyum rezervlerinin sadece %1'inin kullanılmasını bize mümkün kılar [26]. Tek geçişli yakıt çevrimi; uranyumdan veya toryumdan imal edilen yakıtın reaktörde enerji üretimi için kullanılması, daha sonra kullanılmış yakıtların reaktörden alınması ve bozunma ısısı yeterince azalınca kadar reaktördeki havuzlarda muhafaza edilmesi ve son olarak doğrudan yüksek seviyeli atık (High Level Waste, HLW) olarak bertaraf edilmesi olarak özetlenebilir. Sürdürülebilir bir enerji kaynağı olarak nükleer enerji sadece kapalı yakıt çevrimleri

politikaları benimsenmesinin yanında toryum gibi diğer doğal olarak meydana gelen nükleer kaynakların da kullanılmasını gerektirir. Toryumun reaktörlerde kullanımı enerji kaynaklarının sürdürülebilir olmasının objektifliği açısından gereklidir.

Toryum tek başına nükleer yakıt olarak kullanılamaz. Uranyumun aksine toryumun hiç fisil izotopu yoktur. Toryum yakıt çevrimi için herhangi bir zenginleştirme prosesi gerekmez. Nükleer yakıt olarak kullanılabilmesi için reaktör içinde bir malzemeyle veya hızlandırıcı gibi bir nötron kaynağı ile ışınlanması gerekmektedir. Şekil 2.3’de özetle gösterildiği gibi reaktör içinde toryumun doğadaki başlıca izotopu olan ^{232}Th , herhangi diğer bir nükleer malzeme olan (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu) malzemelerinden birinin fisyonundan nötron absorblamasıyla ^{233}Th meydana gelir. Fertil (doğurgan, kaynak) bir izotop olan ^{232}Th ’nin bir nötron yutarak fisyon yapabilen bir izotop olan ^{233}U ’e dönüştürülmesi gerekir. ^{232}Th ’nin düşük enerjili nötronlarla tepkimesi (nötron yutumu) sonucunda önce daha az kararlı olan ^{233}Th oluşmaktadır. ^{233}Th ise, 23 dakika içinde, bir beta parçacığı yayarak ^{233}Pa ’e (protaktinyum) dönüşmektedir. ^{233}Pa , 27 gün içinde, yarılanma süresi 163.000 yıl olan fisil ^{233}U ’e dönüşmektedir. Alternatif olarak reaktörde ışınlama ihtiyacını ortadan kaldırmak için bir hızlandırıcıyla nötron elde edilerek yine ^{233}U ortaya çıkarılabilir. Işınlama esnasında ^{233}U fisyona başlar ve zincirleme reaksiyonun devam etmesi için nötron üretir. Böylece aşağıdaki şekilde görüldüğü gibi ^{232}Th bir fisil maddeyle üretkenlik döngüsüne başlamaktadır [27]. Bu sistem için önemli bir nokta zincirleme reaksiyon elde edilebilmesi için herhangi bir zenginleştirme işleminin gerekmemesidir.



Şekil 2.3. Toryum yakıt döngüsü

Toryumlu yakıt denemeleri 1960 yıllarının ortalarında başlamış olmasına rağmen güç reaktörlerinde kullanılmasına 1976 yılında başlanmıştır. Almanya, Hindistan, Japonya, Rusya Federasyonu, İngiltere ve ABD'de araştırma/geliştirme çalışmaları bulunmaktadır. Aşağıda toryum ile ilgili yapılmış bazı çalışmalar belirtilmiştir [28]:

- Almanya'daki Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH (AVR) reaktöründen geliştirilen 300 MW gücündeki toryum yüksek sıcaklık reaktörü (thorium high temperature reactor-THTR), yarısından fazlası Th/U (yüksek zenginlikli uranyum) yakıt içeren 674.000 adet küresel yakıtla 1983-1989 yılları arasında işletilmiştir.
- Almanya'daki AVR reaktöründen geliştirilen ve 1976-1989 yılları arasında işletilen Fort St Vrain reaktörü ABD'deki toryumlu yakıt kullanan tek ticari nükleer reaktördür. Yüksek sıcaklıklı, grafit moderatörlü, helyum soğutmalı bu reaktör, Th/U (yüksek zenginlikli uranyum) yakıtla 330 MW güçte çalıştırılmıştır. Bu reaktörde yaklaşık 25 ton toryum kullanılmıştır.
- Toryum tabanlı yakıtların basınçlı su reaktörlerindeki kullanımının incelenmesi Amerika'daki Shippingport reaktöründe gerçekleştirilmiştir. Bu reaktörde fisil malzeme olarak ^{235}U ve ^{239}Pu kullanılmıştır. Bu incelemede, toryum kullanımının işletme stratejisi veya reaktör kalbi güvenlik marjlarını etkilemediği sonucuna varılmıştır. 1977-1982 yılları arasında hafif sulu üretken reaktör konsepti de bu reaktörde başarıyla denenmiştir.

- Almanya'daki 60 MW Lingen kaynar sulu reaktöründe Th/Pu tabanlı yakıt test elemanı kullanılmıştır.

Şimdiye kadar kullanılmış, kapatılmış ve devam etmekte olan toryum esaslı yakıt kullanan reaktörler Tablo 2.2’de gösterilmiştir.

Tablo 2.2. Değişik deneysel ve güç reaktörlerinde toryum kullanımı [29]

Ülke	Reaktör Adı	Reaktör Tipi	Reaktör Gücü (MW)	Yakıtı	İşletmede olduğu zaman
Almanya	AVR	HTGR	15	Th + ²³⁵ U	1967-1988
Almanya	THTR	HTGR	300	Th + ²³⁵ U	1985-1989
Almanya	Lingen	BWR	60	(Th, Pu)O ₂	1973 de kapatıldı
İsveç, İsviçre, Norveç	Dragon	HTGR	30	Th + ²³⁵ U	1966-1973
ABD	Peach Bottom	HTGR	40	Th + ²³⁵ U	1966-1972
ABD	Fort St Vrain	HTGR	330	Th + ²³⁵ U	1976-1989
ABD	MSRE ORNL	MSBR	7,5	²³³ U	1964-1969
ABD	Borax IV	BWRs	2,4 - 24	Th + ²³⁵ U Oksit pelet	1963-1968
ABD, Hindistan	Shippingport	LWBR, PWR	100 - 285	Th + ²³³ U	1977-1982
Hollanda	SUSPOP/KSTR KEMA	Aqueous Homogeneous Suspension	1	Th + HEU (yüksek zenginlikte uranyum)	1974-1977
Kanada	NRU&NRX	MTR		Th + ²³⁵ U	yakıt ışınlama testi yapılmaktadır
Hindistan	KAMINI, CIRUS, DHRUVA	MTR	30 - 40 - 100	Al- ²³⁵ U	halen işletmede
Hindistan	KAPS, KGS, RAPS	PHWR	220	ThO ₂ pelet	halen işletmede
Hindistan	FBTR	LMFBR	40	ThO ₂ örtü	halen işletmede

Toryum yakıt çevrimleri uranyum yakıt çevrimine alternatif bir nükleer enerji kaynağı sağlamaktadır. Çok geniş çaplı araştırmalar İngiltere (Dragon), Amerika Birleşik Devletleri (Peach Bottom), Japonya, Rusya ve Fransa’da araştırma ve test reaktörlerinde gerçekleştirilmiştir. Ancak 1970’lerin ortalarında toryum yakıt çevriminin daha da ilerletilmesinin önemli maliyetler getireceği düşüncesiyle

çalışmalar durdurulmuştur. Hindistan ise çalışmalarını durdurmuyup önemli bir program çerçevesinde çalışmalarını sürdürme kararı almıştır. 1989 yılında kapatılan THTR-300 MW (Almanya) ve Fort St Vrain-330 MW (Amerika) yüksek sıcaklıklı gaz reaktörlerinde toryum uranyum karışık yakıtları kullanılmaktaydı. Son yıllarda yeniden ilgi duyulmaya başlayan toryum yakıt çevrimleri için üç önemli özellik öne çıkmaktadır [30]:

- Plütonyumun yayılma riskini azaltmada önemli bir alternatif yakıt çevrimi
- Uranyum yakıt çevrimine göre daha verimli yakıt yönetimi
- Toryum rezervi sahiplerinin önemli bir pazar oluşturabilmeleri

Doğal olarak uranyumun %10'undan daha az bir kısmı geleneksel reaktörlerde kullanılabilirken bu yöntemlerle doğal olarak bulunan toryumun hepsi fisil olan ^{233}U 'e dönüştürülebilir. Bu önemli özellik toryum yakıt çevriminin geliştirilmesinde milletlerin, araştırma merkezlerinin anahtar kavramı olarak dikkat çekmektedir ve ekonomik olarak cazip gözükmeye sebep olmaktadır. Toryum yakıt çevriminin anlatıldığı gibi bütün bu işlemler arasında zenginleştirilmiş uranyum ihtiyacını da elimine ettiği gözlemlenmektedir.

Toryum yakıt çevrimleri üzerinde yaklaşık 40 yıldır çalışılmaktaysa da uranyuma nazaran bu çalışmalar çok yetersiz kalmaktadır. Birçok toryum araştırmaları ve çalışmaları 1980'lere doğru durma noktasına gelmiştir. Bunun başlıca sebebi uranyum yakıt çevriminin uzun vadede yetecek durumda gözükmemesi ve uranyum yakıt fiyatlarının kabul edilebilir düzeyde olmasıydı. Hindistan ise çalışmalarını sürdürme kararı aldı. Çünkü Hindistan nükleer silahların yayılmasının önlenmesi antlaşmasının (non-proliferation treaty, NPT) bir üyesi olmayı kabul etmedi. 1974-2008 yılları arası uranyum pazarından mahrum bırakıldı. Dahası Hindistan uranyum rezervleri açısından fakir, toryum rezervleri açısından ise oldukça zengindir. Bu sebeplerden dolayı Hindistan toryum yakıt çevrimi faaliyetlerine devam etmiştir ve etmektedir.

Yeni dizayn ve inşa edilen nükleer güç reaktörlerinde nükleer yakıt kaynağı ile ilgili ileri seviyedeki yakıt çevrimi gelişmeleri çok büyük ilgi çekmektedir. Bu ilginin

temel sebebi; nükleer yakıt kaynaklarının genişletilmesi, reaktörler tarafından üretilen radyoaktif atıkların miktarının azaltılması ve bunlara bağlı olarak plütonyumun yayılma riskinin azaltılmasından ibarettir [31].

Stratejik önemi ve ekonomik faydalarından dolayı üzerinde sıkça durulmaya başlanan toryum yakıtlarının başlıca özellikleri aşağıdaki gibi sıralanabilir:

- Toryum yakıt çevriminin bütün aşamalarında (madencilik, işletme, yakıt fabrikasyonu, atık ve taşınma) nükleer silah olarak kullanılacak bir ürün ortaya çıkmamaktadır.
- Toryum doğadaki formunda kesinlikle herhangi bir fisil izotop içermez ve bundan dolayı zenginleştirilecek bir formu olmadığından silah yapımında kullanılamaz.
- Toryum yakıt çevrimi sonucu elde edilen atıklar arasında bilinen ²³³U izotopu haricinde herhangi bir yeni ürün ortaya çıkmaz.
- Toryum yakıtları plütonyum atıklarının istenmeyen miktarını güvenli bir şekilde bertaraf etmek için kullanılabilir.
- Toryumun yüksek radyoaktifiteli atıkları 200 yıldan daha az bir zaman radyotoksik özelliğini sürdürebilirken bu oran uranyumda çok daha fazladır.
- Toryum yakıtları aynı miktardaki uranyum yakıtlarına göre 30 kat daha fazla enerji üretimi sağlar ve bundan dolayı daha ekonomiktir.
- Toryum yakıtları şu anda mevcut bütün reaktör tiplerinde herhangi bir ek donanım ve masraf gerektirmeden kullanılabilir.

Toryum esaslı yakıtların araştırılması ve geliştirilmesinde önemli bir yeri olan ve Amerika Birleşik Devletleri'nde düzenlenen Generatin IV Internatioanal Forum (GIF) toplantılarında bazı ileri tip reaktörlerde toryum yakıt çevriminin uygulanabilirliğine vurgu yapılmıştır. Özellikle toryum yakıt çevrimi, yüksek sıcaklıklı gaz reaktörlerinde (High temperature gas reactor, HTGR) daha önceden kullanılmıştı. 1960'larda ileri tip üretken konsepte sahip ergimiş tuz reaktörü (molten salt reactor, MSR) ilk kez kullanılmıştı. Şimdilerde gelişen malzeme ve bileşen teknolojisiyle yeniden ele alınmaktadır. MSR reaktörleri hem uranyum, hem de toryum yakıtları ve hem de ikisinin bileşiminden oluşan yakıt kullanabilir [19].

Chinese Academy of Science 2011 yılında toryum esaslı ergimiş tuz reaktörleri (thorium based molten salt reactor, TMSR) için ticari olarak geliştirmek amaçlı yeni bir finans programı açıkladı. Sonuç olarak bir TMSR araştırma merkezi Shanghai Institute of Applied Physics (SINAP) bünyesinde kuruldu. Şu anda 5 MW gücünde bir araştırma reaktörü inşaat halinde ve 2015'te işletmeye geçmesi planlanmaktadır. SINAP bu projede TMSR araştırma merkezi için iki önemli hedef belirlemiştir. İlki sadece toryum katı yakıtı kullanan açık yakıt çevrimi geliştirmek, 2015 yılı içinde 2 MW gücünde pilot tesisi işletmeye almak ve 2025 yılında ise 100 MW gücünde reaktör kurmaktır. İkincisi ise tamamen kapalı yakıt çevrimi kullanarak Th-U esaslı bir sıvı yakıt üretimi sağlamak. Bunun için 2025 yılına 10 MW, 2035 yılına 100 MW gücünde reaktör kurulması planlanmaktadır.

Bunlara ek olarak Norveç'te bulunan Thor-Energy Company adlı kuruluş toryum-plütonyum esaslı yakıtın (Th-MOX) hafif sulu reaktörlerde kullanımını tecrübe etmektedir. Nisan 2013 tarihinde prototip bir Th-MOX yakıtı Norveç'te bulunan Halden test reaktöründe ışınlanmaya başlanmıştır. Bu ışınlamanın yaklaşık dört yıl sürmesi öngörülmüştür.

2.3.2. Toryum dioksit esaslı yakıtların avantajları ve dezavantajları

Nükleer enerjinin yeni parladığı dönemler olan 1950 ve 1970 yılları arasında dünya genelinde uranyum rezervlerine destek olması için toryum yakıtlarının geliştirilmesiyle ilgili çok fazla ilgi vardı. Toryum yakıtı ve yakıt çevrimi kısmen daha fazla toryum rezervine ve daha az uranyum rezervine sahip olan ülkelerin ilgi alanındaydı ve nükleer programlarına almışlardı. Toryum yakıtı kullanımının birçok nükleer reaktör türünde uygulanabilirliği ispatlanmıştır. Bu aktiviteler birçok geniş kapsamlı konferanslarda ve sempozyumlarda (US Atomic Energy Commission, US Department of Energy, KfA Germany ve IAEA) yayınlanmıştır.

Nükleer enerjinin ilk yıllarında, özellikle Amerika'da Manhattan Projesi'nin devamı olarak (1945-1960), Amerika'da bazı önemli laboratuvarlar toryumu; hem uranyum yakıtı için hem de ^{233}U 'ün nükleer silah olarak kullanılması için makul bir tamamlayıcı olarak kabul ettiler [32]. 1958'de Amerika Birleşik Devletleri'nin sahip

olduğu uranyum miktarı 55 kg kadardı. 1955-75 yıllarında ise “Barış için Atom” programının geliştirilmesiyle toryum hızlı ilerlemekte olan nükleer endüstride kullanılan kısıtlı uranyuma destek verebilecek ilgi çekici bir kaynak olarak görülmüştür. 1978’de gerçekleştirilen Uluslararası yakıt çevrimi değerlendirmeleri konferansında (INFCE, The International Nuclear Fuel Cycle Evaluation) ise toryumun uranyum kadar önemli olduğuna dikkat çekilmiştir [33]. Eğer nükleer enerjinin geleceğine dair olan iyimser tahminler gerçekleşirse toryum gelecek için kitlesel olarak değer kazanacaktır. Yakın gelecekte toryumun, uranyum ile birlikte kullanılması, nükleer enerjinin potansiyelini arttıracığı düşünülmektedir. Bununla birlikte ilk olarak ABD toryum yakıt çevrimi çalışmalarına başlamış, daha sonra Avrupa da bu çalışmalara katılmıştır. Yaklaşık 900 ton toryumdan 1500 ton kadar ²³³U ayrılmıştır. Birçok prototip reaktör geliştirilerek çalıştırılmıştır. Birçok ülkede toryum ekstraksiyon tesisleri kurulmuştur. 1975’den sonra ABD’de Ford-Carter politikaları, hafif sulu reaktörün (LWR) devreye girmesi, nükleer enerjideki gelişmelerin yavaşlaması ve daha birçok sebepten dolayı Hindistan hariç diğer tüm ülkeler toryumla ilgili çalışmalarını durdurmuştur. Hindistan’ın dev nüfusu ve buna karşılık yüksek enerji ihtiyacı, toryum rezervlerinin fazla olması ve Dr. Homi Bhabha’nın tavsiyeleri ile geleceğini kurtarma adına toryum yakıt çevrimi çalışmalarını sürdürme kararı almıştır. Nitekim yakın bir gelecekte Hindistan toryum yakıt esaslı bir nükleer reaktörü ticari olarak çalıştıracığını duyurmuştur [34].

İleri yakıt çevrimlerinin avantajları: nükleer enerjinin uzun dönem çevresel sorunlarının azaltılmasını ve atık malzemelerinin daha verimli bir yönetimini sağlamaktadır [35]. Toryum esaslı nükleer yakıtların başlıca avantajları şunlardır [36, 37, 38]:

- Toryum yeryüzünde uranyumdan 3-4 kat daha fazladır ve dünyada daha geniş bir coğrafyaya yayılı olduğundan birçok ülke tarafından kolaylıkla faydalanılabilir bir kaynaktır. Toryum yakıtları uranyum yakıtlarının bir tamamlayıcısıdır ve gelecek için nükleer gücün uzun süreli sürdürülebilir olmasında önemli katkılar sağlayacaktır.

- Toryum yakıt çevrimi düşük radyotoksik atık sağlayan uzun dönem nükleer enerji üretimi için etkili bir yoldur. Ek olarak, nükleer silahlardan ve santrallerden gelen plütonyumun yakılması için önemli bir yakıttır.
- ^{233}U bütün reaktör tipleri için uygun bir yakıt türüdür. Ancak toryum esaslı yakıt kullanan reaktörlerde toplanan fisyon ürünleri uranyum esaslı olana göre daha az radyotoksiktir.
- Periyodik tabloda uranyum ve toryumun pozisyonları göz önünde bulundurulduğunda, fisyon sonucu meydana gelen uzun ömürlü minör aktinitlerin (Amerikyum, Neptünyum, Küriyum) toryum yakıt çevriminde daha düşük miktarlardadır.
- Dört değerlikli toryumun ve bileşiklerinin kararlı ve en iyi refrakter olduğu bilinmektedir. Toryum oksitin ergime sıcaklığı $3300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'dir. Bu özellik yüksek yanma özelliğine sahip olmayı mümkün kılar.
- ^{232}Th 'nin termal nötron tesir kesiti (7,4 barn) uranyuma (2,7 barn) göre üç kat daha fazladır. Dolayısıyla ^{233}U 'e dönüşüm daha yüksektir. Böylece toryum, ^{238}U 'den daha iyi bir doğurgan ya da kaynak (fertile) malzemedir.
- ThO_2 , UO_2 ve PuO_2 aynı fiziksel özelliklere sahiptirler ve yüzey merkezli kübik yapıdadırlar. Bu özellik hibrid oksit yakıtlarının kararlılığında ve imalatında önemlidir ve aynı zamanda yüksek yanma özellikli yakıtların imalatında avantaj olarak karşımıza çıkar.
- Toryumdan elde edilen ^{233}U , ^{235}U ve ^{239}Pu 'a göre daha iyi nötronik ve daha iyi yanma özelliklerine sahiptir.
- ThO_2 , UO_2 'e nazaran kimyasal olarak daha karardır ve daha yüksek radyasyon direncine sahiptir. ThO_2 esaslı nükleer yakıtların fisyon gazı salınımı uranyuma göre daha azdır. ThO_2 , UO_2 ile karşılaştırıldığı zaman daha yüksek termal iletkenlik ve daha düşük termal genişleme katsayısına sahip olduğundan çok avantajlı termofiziksel özellikler gösterir.
- ThO_2 nispeten daha inerttir ve UO_2 gibi okside olmaz. Böylece kullanılmış yakıtların uzun süreli ara depolanması ve kalıcı olarak bertaraf edilmesi oksidasyon problemi olmadığından daha kolay bir şekilde gerçekleştirilebilir.
- ^{232}Th - ^{233}U yakıt çevriminde daha az miktarda plütonyum ve daha uzun ömürlü minör aktinitler (Neptünyum, Amerikyum, Küriyum) açığa çıkar. Böylece kullanılmış yakıttaki radyotoksiklik oranı minimize edilmiş olur.

Fakat bu yakıt çevriminin sonunda uzun süreli radyolojik etkiye sebep olabilecek başka radyoaktif ürünler de ortaya çıkmaktadır (^{231}Pa , ^{229}Th , ^{230}U).

- Nükleer silah ve santral kaynaklı plütonyumun yakılması, $(\text{Th,Pu})\text{O}_2$ yakıtlarında uranyum-plütonyum yakıtlarına nazaran daha fazla gerçekleşmektedir.

Bütün bu avantajlarının yanında toryum esaslı yakıtların bazı zorlukları da mevcuttur:

- ThO_2 'in ergime sıcaklığının UO_2 'e nazaran daha yüksek olması yüksek yoğunluklu toryum yakıtlarının üretilmesi için sinterleme sıcaklığının 2000 °C üzerinde olmasını gerektirebilir. Bundan dolayı daha düşük sıcaklıklarda arzu edilen pelet yoğunluğuna ulaşılabilmesi için $(\text{CaO}$, MgO , Nb_2O_5) gibi katkıları eklenmesi gereklidir.
- ThO_2 ve ThO_2 esaslı karışık yakıtlar nispeten inert olduğundan nitrik asit konsantrasyonunda kolayca çözünmezler.
- Toryum yakıtlarıyla ilgili veri tabanı ve tecrübeler oldukça kısıtlıdır. Geniş çaplı yatırımlardan ve ticari olarak kullanılmaya başlamadan önce bu verilerin çoğaltılmasına ihtiyaç vardır.

Nükleer reaktörlerde toryum esaslı yakıt kullanımının en önemli getirisi plütonyumun yayılmasının önlenmesine katkısından ve önemli miktarda yakıt tasarrufu sağladığından güvenli ve temiz enerji üretimi sağlıyor olmasıdır. Toryum esaslı yakıt kullanan nükleer güç santralleri hem çalışırken hem de durma esnasında çok güvenli bir işletim sunar. Daha düşük işletme sıcaklığı ve daha yüksek termal iletkenlik herhangi bir kaza durumunda veya normal olmayan diğer şartlarda daha iyi bir güvenlik toleransı kullanılmasına yol açar.

2.3.3. Toryum esaslı nükleer yakıtlarla ilgili değerlendirmeler

Günümüzde toryumla çalışan ticari ölçekli bir santral bulunmamaktadır, bunun sonucu olarak da toryumun enerji hammaddesi olarak tüketimi yok denecek düzeydedir. Toryum tabanlı yakıt çevriminin ekonomik olması ancak çok sayıda

santrali kapsayan bir nükleer programla mümkün olabilir. Toryum tabanlı bir enerji üretimi için, yüksek yatırım ve işletme maliyeti gerektiren tesislerinin kurulmasına ihtiyaç duyulmaktadır. Bütün bu tesislerin her biri de günümüz şartlarında ekonomik olmadığından ticari ölçekte teknolojileri de dünyada henüz geliştirilmemiştir. Bu nedenle ülkemizde bulunan toryumun mamul veya maden olarak satışı bugün için söz konusu değildir. Ancak ülkemizde mevcut olan toryum cevherinin nadir toprak elementlerinden ayrılması ve yan ürün olarak kazanılmasına yönelik araştırma ve geliştirme çalışmalarına devam edilmelidir.

Toryumun kendisi bir nükleer yakıt değildir, yakıt olarak kullanılması için ^{235}U , ^{233}U veya ^{239}Pu gibi fisil maddelere ihtiyaç duyulmaktadır. ^{235}U veya ^{239}Pu ile birlikte kullanıldığında uranyum ihtiyacından tasarruf edilmesini sağlayabilmektedir. Açık çevrimlerde toryum kullanımının %20-30 civarında uranyum tasarrufu sağlayacağı düşünülmektedir. Kapalı çevrim için ise ayrıştırma ve imalat teknolojilerine ihtiyaç duyulmaktadır. Ayrıştırma belli başlı bazı ülkelerin sahip olduğu hassas bir teknoloji olup, nükleer silahlanma riski içermektedir.

Ülkemizde Eskişehir-Sivrihisar yöresinde yaklaşık 380.000 ton görünür ThO_2 ve önemli miktarda nadir toprak elementi rezervi belirlenmiştir. Toryum tenörü, seçme numunelerde %3'e kadar çıksa da yatağın ortalaması %0,2'dir. Bu rezervde tespit edilmiş olan ortalama tenörün düşüklüğü ve rezervin kompleks olması, toryumun tek başına ekonomik olarak çıkarılabilir olmaktan uzak olduğu sonucunu çıkarmaktadır. Ülkemiz yenilikçi nükleer teknolojilerini yakından takip etmelidir. Gelecekte daha ekonomik, güvenilir ve güvenlik yönünden daha geliştirilmiş teknolojiler dünyada yaygın olarak kullanılacaktır. Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı (IAEA), 2001 yılında nükleer enerjinin 21.yy enerji kaynakları içerisinde yerini alabilmesi için yapılması gerekenleri saptamak ve hem nükleer teknoloji üreticisi hem de nükleer teknoloji kullanıcısı IAEA üyesi ülkeleri bir araya getirerek nükleer reaktörler ve yakıt çevrimlerinde yapılması gereken yenilikleri belirlemek amacıyla Uluslararası Yenilikçi Nükleer Reaktörler ve Yakıt Çevrimi adında bir proje başlatmıştır. Türkiye Atom Enerjisi Kurumu (TAEK) 2000 yılında bu projeye katılma kararı almıştır ve 2001 yılından bu yana söz konusu projenin aktif üyesidir. Aynı zamanda bu projenin kapsamında da yer alan kullanıcı ülke gereksinimlerinin ve ölçütlerinin belirlenmesi

hususunda TAEK tarafından bir çalışma yürütülmekte ve bu çalışmada değişik nükleer yakıt çevrimi seçenekleri de değerlendirilmektedir.

2000'li yılların başlarında uranyum fiyatlarının hızlı bir şekilde artmaya başlaması toryum araştırmalarının başlamasında önemli bir yer teşkil etmektedir. Uranyum fiyatları 2003 ile 2007 yılları arasında on kat göstermiştir. Bu periyotta uranyum yakıtına bir alternatif olarak toryum esaslı yakıtların çözüm olabileceği düşünülmüştür. Ancak toryumla ilgili veriler uranyuma nazaran çok geri durumdadır. Bundan dolayıdır ki toryumla ilgili araştırmalar 2000'li yıllardan sonra hız kazanmıştır. Fakat 2008 yılında uranyum fiyatlarının istenilen düzeye gerilemesi ve yeni rezervlerin keşfi toryumla ilgili olan projeleri yavaşlatmıştır. Hindistan'ın toryuma karşı özel bir ilgisi bulunmaktadır ve çalışmalarına devam etmektedir.

Toryum çalışmalarının kısıtlı olmasının en önemli sebeplerinden bir tanesi kullanılmış yakıtlarının yeniden işlenmesindeki (reprocess) maliyetlerin yüksek olmasıdır. Bu ilginin az olmasından dolayı yeniden işleme faaliyetleri sınırlı ve çok az yerde sürdürülmektedir. ThO_2 UO_2 'e göre daha kararlı bir yapıda olduğundan yeniden işleme maliyetlerinin yüksek olması normal karşılanmaktadır. Dahası uranyuma nazaran üç kat daha fazla termal absorpsiyon tesir kesitine sahiptir ve kritik olarak kalması için daha fazla fisil izotopa ihtiyaç duymaktadır.

Bugünün ticari nükleer yakıt teknolojisi ^{235}U ve ^{239}Pu fisil elementlerini içermektedir. ^{232}Th atomu fisil değildir ancak ^{233}U , ^{235}U veya ^{239}Pu atomlarından biriyle nötron reaksiyonuna maruz bırakıldığı zaman toryum da bir nükleer yakıt olarak sisteme dahil olabilir. Son 50 yıldır yapılan bütün çalışmalar göstermiştir ki toryum esaslı nükleer yakıt çevrimi mevcut bütün reaktörlerde kullanılabilir. Buna ek olarak yakın geleceğin nükleer reaktör teknolojisinde kullanılması düşünülen hızlandırıcılı sistemlerde (accelerated driven system) toryum esaslı nükleer yakıt kullanılması öngörülmektedir. Bu nedenle gelecekte toryum, uranyumdan daha kıymetli bir malzeme olabilir. Toryum rezervine sahip bütün gelişmiş ülkeler toryum esaslı yakıt çalışmalarına odaklanmış durumdadırlar.

Toryumun doğadaki varlığının ve nükleer teknolojideki kullanımının potansiyeli yeteri kadar önemsenmemiştir. Bugünlerde ^{239}Pu 'un fazlalığı, nükleer silahların yayılma riski ve nükleer terörizm endişesi dünya için çok ciddi ve temel bir problem olarak karşımızda durmaktadır. Toryum konusundaki gelişmelerin yavaş ilerlemesi ve kısıtlı kalmasının sebebi toryum rezervlerinin çok geniş coğrafyalara yayılmış olmasıdır [39]. Eğer nükleer teknolojide ileri seviyede bulunan ülkeler (ABD, Kanada, Fransa) daha fazla toryum kaynaklarına sahip olsalardı toryum uranyuma nazaran daha popüler bir durumda olabilirdi. Şimdilerde bütün dünya nükleer enerjiyi nükleer silahların yayılmasından, uzun ömürlü atıklardan ve ^{239}Pu stokunun artmasından dolayı sorgulamaktadır. Diğer taraftan dünya artan enerji talepleri yüzünden nükleer enerjiden vazgeçememektedir, hatta sürdürülebilir yeni nükleer enerji programlarını hayata geçirmeye çalışmaktadır. Geçmiş 50 yılda yapılan toryum ile ilgili çalışmalar toryum esaslı yakıtların mevcut bu problemleri çözebileceğini göstermiştir. Sonuç olarak toryumun 21. yüzyılın önemli bir enerji kaynağı olması düşünülmektedir.

Nükleer silah üretimi derecesinde fisil malzeme olan ^{233}U 'ün toryum reaktörlerinden güvenli ve gizli bir şekilde elde edilebilmesi, plütonyumun (^{239}Pu) uranyum reaktörlerinden elde edilebilmesinden daha zordur. Toryum, uranyum ve plütonyum yakıtlarına göre 10 ila 10000 kat daha az radyoaktif atık üretimi sağlamaktadır. Toryum doğadan saf ve kullanılabilir olarak gelir, zenginleştirme gerektirmez. Doğal uranyum sadece %0,718 oranında fisil ^{235}U izotopu içermektedir. Toryum tek başına zincirleme reaksiyonu sürdüremediği için, herhangi bir hata durumunda ateşleme durduğu zaman fisyon reaksiyonu durur ve kaçak zincirleme reaksiyon kazası neredeyse olanaksız hale gelir [40].

İngiltere'de bulunan "The Thoria Energy Amplifier Association" (ThorEA) tarafından 2009-2010 yıllarında yayınlanan bir raporda toryumun geleceğe yönelik olarak inşa edilmesi düşünülen hızlandırıcılı güdümlü reaktör (Accelerator Driven Subcritical System, ADSR) tipi kullanımı için özellikle İngiltere'de önemli çalışmaların bulunduğu dikkat çekmektedir. Yayımlanan bu raporda 2025 yılına kadar ADSR tipi bir reaktörün ticari olarak kullanıma geçmesinin hedeflendiği belirtilmekte ve bunun geleceğe dönük nükleer reaktör teknolojisi için önemli bir

yeri olacağına vurgu yapılarak İngiltere'nin bu pastada önemli bir diliminin olması gerektiğinin altı çizilmiştir [41].

Hem mevcut toryum rezervlerinin kullanımı hem de önemli oranda çevresel etkilerinin (karbon salınımının azalması) olmasından dolayı dünyanın bu teknolojiye geçmesinin önemi açıkça belirtilmiştir. Bu teknolojiyle birlikte nükleer santral atıklarının da önemli derecede azalacağı düşünülmektedir. Karbon salınımının ve nükleer atıkların azalmasının doğrudan ve dolaylı olarak ekonomiye çok ciddi katkılarının olacağından hiç şüphe yoktur.

“The Thorium Fuel Cycle” başlıklı National Nuclear Laboratory (NNL) tarafından Ağustos 2010 tarihinde yayınlanan başka bir raporda toryum yakıt çevrimlerinin geleceği ile ilgili tarafsız bir değerlendirilme sunulmuştur. Bu çalışmada toryumun şimdilik ticari olarak kullanılmadığından ve kullanılabilmesi için yapılması gereken araştırma-geliştirme çalışmaları ve diğer yatırımlardan bahsetmektedirler. Toryum yakıt çevrimlerinin geleneksel yöntemlere göre söylenen veya tespit edilmiş birçok faydasının ve avantajlarının olduğu ancak bunların ticari bir kullanıma dönüşmesi için daha çok yatırıma ihtiyaç olduğuna vurgu yapılmaktadır. Yapılacak olan yatırım maliyetlerinin yüksek olması ve şimdilik uranyum rezervlerine olan talebin karşılanabilir olması toryum yakıt çevrimine olan bakış açısını değiştirmektedir. Söz konusu raporda toryum rezervlerine sahip olmalarından dolayı Hindistan'ın toryum yakıt çevrimleri konusunda çok büyük yatırımlar yaptığını, onların da kısa vadede toryumla çalışan 700 MW'lık bir güç reaktörüne sahip olmayı hedeflediklerini açıklamaktadır [42].

Hindistan'da bulunan “Indira Gandhi Centre for Atomic Research (IGCAR)” merkezinden Baldev Raj, “Plutonium and The Indian Atomic Energy Programme” başlıklı çalışmasında; Hindistan'ın nükleer enerji reaktörlerinden elde ettiği enerjinin geleceğe yönelik planlanması ve buradan ortaya çıkan yüksek miktarda plütonyumun nasıl değerlendirileceği konusunda önemli açıklamalarda bulunmuştur. Mevcut ve planlanan durumu üç basamak halinde açıklamıştır. Hindistan'da 20 adet nükleer reaktör bulunmaktadır ve 6 tanesi de inşaat halindedir. İlk basamak olarak bahsettiği bu reaktörlerden toplam yaklaşık 4200 MW elektrik enerjisi elde etmektedir. İkinci

basamak olarak hızlandırıcı reaktörlerin (FBR, fast breeder reactor) geliştirilmesi hedeflenmektedir. Üçüncü basamakta ise toryum esaslı bir nükleer güç reaktörünün devreye sokulması amaçlanmaktadır. FBR reaktörleri birinci ve üçüncü basamak arasında hayati bir öneme sahiptir. Bunun mevcut plütonyum stoklarının tüketilmesi için önemli bir adım olduğu düşünülmektedir. Bu çalışmada plütonyumun kullanılması için yapılması gereken çalışmalardan bahsedilmekte ve sol-gel esaslı yakıt üretiminin önemine vurgu yapılmaktadır. Mevcut üretim yöntemlerinin insan vücudu ile temas etmeksizin uzaktan kumanda edilebilme yönetime uygun olmadığı ancak buna karşın sol-gel metodunun kumandalı sisteme daha elverişli olduğu açıklanmaktadır. Uzaktan kontrollü yöntemde, insan kaynaklı hataların da minimum seviyede olacağı bu yöntemin başka bir avantajıdır. BARC (Bhabha Atomic Research Center) olarak adlandırılan diğer bir Hindistan atom enerjisi araştırma merkezinin yapmış olduğu çalışmada uranyum, toryum ve MOX (mixed oxide) yakıtlarıyla ilgili sol-gel çalışmaların geliştirildiği ve gerekli yakıt testlerinin yapıldığı belirtilmektedir [43, 44].

Gelecekte nükleer silahların sökülmesinden veya kullanılmış yakıtın ayrıştırılmasından elde edilen, plütonyum stoku bulunan ülkelerde bu stokların tüketilmesi amacıyla toryumun ticari olarak nükleer santrallerde kullanılması beklenmektedir. Günümüzde uranyum yakıt maliyetinin düşük olması yakın gelecekte nükleer enerji üretimi için uranyum kullanımını en akılcı yol olarak göstermektedir. Ancak dünyadaki teknolojik gelişmelerin paralelinde ülkemizde de toryum tabanlı yakıt çevrimi konusundaki araştırma-geliştirme çalışmalarına devam edilmelidir.

Toryum kullanımına elverişli olarak tasarlanan hızlandırıcı güdümlü sistem (Accelerator Driven Subcritical System, ADSR), henüz teknolojik olarak geliştirilme safhasındadır. Özetle; bu sistemin ticari olarak enerji üretiminde kullanılabilmesi için 40 yıl gibi uzunca bir süre gerekmektedir. Ülkemiz bu teknolojiyi yakından takip etmeli ve bilimsel olarak katkı koyacak bilgi ve deneyim seviyesine gelmelidir.

2.4. Plütonyumun Bertaraf Edilmesi ve İnert Matriks Yakıtlar

Genellikle sürdürülebilir gelişmenin görünen üç yönü vardır. Kaynakların tüketilmesi ve maliyetle ilgili olan ekonomik yönü, küresel yaşam destek hizmetlerinin korunması ile ilgili olan çevresel yönü ve sosyal ve politik meseleleri içeren sosyal yönü olarak sınıflandırılabilir. Bir ülkede enerji üretimi politik kuruluşların ve kamunun fikirlerinin gelişmesiyle ilişkilidir. Son yıllarda çevresel yön, enerji kullanımında CO₂ emisyonuna odaklanmış durumdadır. Yetkin kuruluşlar ve uluslararası etkili yöneticilerin raporlarına göre sera gazı emisyonunun artışı dramatik iklim değişikliklerini de beraberinde getirecektir.

Önümüzdeki on yılın en önemli konularından birisi artan enerji talebi ile birlikte karbon dioksit gazlarından, fosil yakıtlardan, petrolün ve kömürün tüketilmesinden kaynaklı küresel ısınma olacaktır. Bütün bu koşullar düşünülerek temiz enerjiyle nasıl elektrik üretimi yapılacağı konuları üzerinde çok yoğun araştırma ve geliştirme faaliyetleri sürdürülmektedir. Buna karşılık nükleer enerjideki ilerlemeler, kısmen durduğu gözlemlenmektedir. Buna neden olarak nükleer enerjiye negatif bakışlar ve özellikle Amerika'da 1990'lı yılların ortalarında nükleer enerji endüstrisinin zayıflaması gösterilebilir [45].

Nükleer enerjinin çevresel bir yakıt olduğu, çok düşük seviyede kirlenmeye sebep olduğu ve özellikle çok düşük miktarda CO₂ emisyonuna sahip olduğu bilinmektedir. Bundan dolayı nükleer enerjinin efektif bir şekilde sera gazını azalttığı herkes tarafından kabul edilmiş bir gerçektir. Ancak bunların yanında nükleer enerji sürdürülebilirliğini ve daha güvenilir olabileceğini kabul ettirmesi için; güvenlik, maliyet, kaynak tüketimi, atıkların etkileri, nükleer silahların yayılma riski gibi konularında somut olarak çözüme kavuşması gerekmektedir. Genel olarak en çok üzerinde durulan konu ise yüksek radyasyon seviyesine sahip atıkların durumudur. Bu nedenle nükleer enerjinin sosyal olarak kabulünün garantisi yoktur ve atıkların geri dönüşümünün çok ama çok geliştirilmeye ihtiyacı vardır. Toryum esaslı uranyum içermeyen yakıtlar (inert matriks) plütonyumu MOX yakıtlara göre daha fazla tükettiğinden önümüzdeki yıllarda tercih edilebilir bir yakıt türü olarak düşünülmektedir [46].

Bugünlerde ise nükleer enerji teknolojisindeki gelişmelere, temiz enerji üretimine sağladığı katkılardan dolayı ayrıca önem verilmektedir ve bu yönde çalışmalar devam etmektedir. Diğer enerji türleri olan güneş enerjisi, rüzgar enerjisi ve diğer küçük çaplı enerji üretim yöntemleri nükleer enerji kadar verimli değildir.

2.4.1. Karışık oksit yakıtlar (mixed oxide, MOX)

Hafif sulu reaktörlerde (LWR) plütonyumun yakılması için üç farklı yakıt tipi bulunmaktadır: uranyum esaslı MOX (U,Pu)O₂ yakıtlar, toryum esaslı MOX (karışık oksit) yakıtlar (Th,Pu)O₂ ve inert matriks yakıtlar (IMF). MOX yakıtlar uzun süre çalışılmış ve test edilmiştir, şimdilerde ticari olarak da kullanılmaktadır. Aslında bu yakıtlar nükleer silah kaynaklı plütonyumun reaktör içinde nasıl elimine edilebileceğinin tecrübe edildiği bir yakıt türüdür. Ancak bu türün en önemli dezavantajı; reaktör içinde ısınma esnasında plütonyum üretimi devam ettiği için yüklenen plütonyumun büyük çoğunluğunun (%70 kadar) doğası değiştirilmiş bir biçimde kullanılmış yakıtlar içerisinde durmasıdır [47].

Hızlı reaktörlerin geliştirilmesi çeşitli sebeplerden geciktiğinden dolayı mevcut plütonyum stokunun tüketilmesi için yeni yöntemler bulunması gerekmektedir. Bütün dünya çapından nükleer güç reaktör kaynaklı plütonyum üretimi yıllık yaklaşık 70-75 ton civarındadır. Fazla plütonyum şimdilerde MOX yakıtlarında kısmen tüketilmeye çalışılmaktadır. Dünya genelindeki reaktörlerin yaklaşık %10 kadarı MOX yakıt kullanabilme lisansına sahiptir. MOX yakıtları toplam yakıtın üçte biri kadar katılır. MOX yakıtlarının mevcut plütonyumu tüketim oranı plütonyum stokunu stabilize etmek için yeterli değildir. Bundan dolayı etkili bir plütonyum yönetimi için alternatif çalışmalar yapılmaktadır. Bu Ekonomik Kalkınma ve İşbirliği Örgütü (Organisation for Economic Co-operation and Development, OECD) tarafından 2003 yılında çok iyi bir şekilde altı çizilerek anlatılmıştır. Üç değişik çözüm önerisi belirtilmiştir [48]:

- Hızlı reaktörlerin geliştirilmesi ve plütonyum stokunun bu reaktörde yakıt olarak kullanılması
- Mevcut hafif sulu reaktörlerde plütonyumun kullanımının geliştirilmesi

- Nükleer enerjinin aşamalı olarak durdurulması, plütonyumun kullanılacak yeri olmaması

Bu senaryolar içinde en makul olan ikinci senaryo olarak kabul edilmiştir ve orta vadede plütonyum stokunu tüketmek için yenilikçi bir yakıt üretimi üzerinde çalışmalar devam etmektedir.

MOX yakıtları uranyum ve plütonyumun karışımından ibarettir ve MIMAS (micronised master blend) prosesi kullanılarak üretilmiştir. Normal olarak MOX yakıtları %7 oranında plütonyum içerirler. MOX yakıtlarının reaktörde kullanımı esnasında, yakıt uranyum içerdiğinden, uranyum ışınlanması sonucu tekrar plütonyum üretimi gerçekleşmektedir. Tablo 2.3'te de görüldüğü üzere %30 MOX yakıtı katkılı olunca ancak üretim ve tüketim dengede olabilmektedir. %100 MOX yakıtı kullanılıncaya ise 62 kg/TWh tüketim olmaktadır. Bu ise 1000 MW'lık nükleer bir tesiste yıllık olarak 500 kg plütonyum tüketimine denk gelmektedir.

Tablo 2.3. Değişik yakıt tiplerinin plütonyum ve minör aktinit (MA) tüketim oranları [49]

Yakıt Tipi	Tüketim Oranı (kg/TWh)	
	Pu	MA
%100 UO _x	-25	-5
%30 MOX	1	-9
%100 MOX	62	-18
%100 Th/Pu	115	-9
%100 Pu-IMF	142	-23

2.4.2. İnert matriks yakıtlar

Mevcut nükleer güç teknolojisi uranyum esaslı yakıt teknolojisi kullanmaktadır (UO₂ esaslı yakıt, karışık oksit yakıt ve metal yakıt). Ne tür yakıt olursa olsun bu teknoloji ²³⁵U ve ²³⁹Pu fisyon ürünlerine dayanmaktadır. Bu ürünlerin yanması sonucu ortaya çıkan plütonyum stoku günden güne artış göstermektedir. Mevcut teknolojiye fazla plütonyumun yakılması için geliştirilmiş olan yakıt türü MOX yakıtlarıdır. Şimdiki teknolojiye plütonyumun MOX yakıtlardaki oranının düşük seviyede olduğu göz

önünde bulundurulduğunda, sadece plütonyum stokunun artış hızının bir miktar azalmasını sağladığı ve kullanılmış yakıtlardaki radyotoksiklik oranında herhangi bir azalma meydana getiremediği söylenebilir. Plütonyum üretimini elimine etmek için uranyum içermeyen yakıt kullanımı mutlaka geliştirilmelidir. Uranyum içermeyen yakıtlara katılan ^{239}Pu , matriks içerisinde tamamen etkisi azaltılmış bir hale dönüşmektedir. Bu tip kompozitlere inert matriks yakıtlar adı verilmektedir.

İnert matriks yakıtlar üç değişik amaç için ve üç değişik zaman diliminde kullanılması hedeflenmiştir [50].

- İlk uygulama hedefi mevcut kullanılmakta olan basınçlı su reaktörlerinde plütonyumu tüketme amacıyla en hızlı bir şekilde kullanıma geçirilmesiydi.
- İkincisi orta vadede yine plütonyumu tüketme amacıyla hızlı reaktörlerde kullanılmasıydı.
- Üçüncüsü ise minör aktinitlerin (Amerikyum, Neptünyum, Kuriyum) inert matriks yakıtlar ile geri dönüşümünün sağlanmasıydı. Bu ise daha uzun bir süre gerektiren bir hedefti.

Özellikle nükleer silahların yayılmasının önlenmesi ile ilgili çalışmalardan sonra açığa çıkan fazla miktardaki plütonyumun bertaraf edilmesi için değişik yapıda nükleer yakıt üretimi çalışmaları hız kazanmıştır. Bilindiği üzere nükleer reaktörlerde uranyum ve toryumun birlikte kullanıldığı karışık oksit yakıtlar (MOX) yaygın bir şekilde kullanılmaktadır.

İnert matriks yakıtlarla ilgili ilk önemli çalışmalar Japonya Atom Enerjisi Enstitüsü (Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI) tarafından kaya tipi oksit yakıtlar (ROX, rock like oxide) olarak adlandırdıkları yakıt çalışmalarıdır. ROX yakıtlarının üretilmesinin amacı fazla plütonyumu reaktörlerde yakarak bertaraf etmektir. Üzerinde çok çalışma yapılan ve halen ticari olarak da kullanımı olan yakıt türü de karışık oksit (MOX, mixed oxide) yakıtlardır. Bu yakıt türünün de ortaya çıkış amacı elde bulunan fazla plütonyumu tüketmek ve minör aktinitlerin dönüşümünü sağlamaktır. MOX yakıtları yüklenen plütonyumun %30 kadarını yakabilmektedir. İnert matriks yakıtlarda ise plütonyumu yakılabilme oranı %80 kadardır [51].

İnert matriks yakıtlar bir diğer deęişle uranyum içermeyen (U-free) yakıtlar yeni bir yakıt türüdür. Üretilen fazla plütonyumu yakmak ve minör aktinitlerin (Am, Np, Cm) dönüşümünü (transmutasyon) sağlamak bu yakıtın başlıca özelliklerindedir. Nükleer enerjinin geleceğinin konuşulduğu her platformda “plütonyum yönetimi” uranyum yakıt teknolojisi kullanılmaya devam ettiği sürece en önemli konu olmuştur. Mevcut kullanılan nükleer silahlardan ve mevcut nükleer güç reaktörlerinden ortaya çıkan fazla miktarda plütonyum nükleer teknolojinin geleceği için çözülmesi gereken başlıca problemlerden birisidir. 2011 yılında OECD/NEA (Nuclear Energy Agency) tarafından ortak düzenlenen bir raporda şu anda yeryüzünde mevcut 500 ton kadar ²³⁹Pu bulunduğu belirtilmiştir. Bir nükleer bomba üretimi için 30-40 kg kadar plütonyumun yeterli olduğu düşünüldüğünde fazla plütonyumun neden bu kadar üzerinde durulması gereken bir konu olduğu daha da iyi anlaşılacaktır [52].

Nükleer güç reaktörlerinin atıklarından ortaya çıkan ve çözülmesi gereken bir diğer önemli mevzu ise minör aktinit denilen uranyum ötesi (transuranic) elementlerin varlığıdır. Bunlar Amerikyum, neptünyum ve küriyum (Am, Np, Cm) gibi radyotoksik değeri çok yüksek, depolanması ve muhafaza edilmesi oldukça güç ve masraflı elementlerdir. Bu elementlerin de bir şekilde gerekli dönüşümlerinin yapılması ve radyotoksik değerlerinin istenilen seviyelere düşürülmesi gerekmektedir.

Mevcut plütonyum stoku üç kısma ayrılabilir. Birincisi reaktörlerden çıkan atık yakıtın yeniden işlenmesi (reprocess) sonucu ortaya çıkan fazla plütonyum, ikincisi nükleer silahların sökülmesinden ortaya çıkan plütonyum, üçüncüsü ise reaktörlerde kullanılmış yakıt (spent fuel) atıklarından ortaya çıkan fazla plütonyum olarak sınıflandırılabilir. Kullanılmış yakıtın yeniden işlenmesinden ortaya çıkan plütonyum yaklaşık olarak 100-200 ton civarındadır ve bu miktarın uranyum ve plütonyumun karışımından ibaret olan MOX yakıt türüyle tüketilmesi hedeflenmiştir. İkinci plütonyum kaynağı olan ve Amerika, Rusya gibi nükleer güce sahip ülkelerin nükleer silahlarının sökülmesinden kaynaklanan plütonyum miktarı ise yaklaşık olarak 100 ton civarındadır. Bu fazla plütonyum stoku yılda en az 10 ton olmak kaydıyla güvenli bir şekilde bertaraf edilmelidir. Üçüncü ve plütonyumu en çok

üreten kaynak olan kullanılmış yakıt kaynağı ise yılda yaklaşık 70 ton plütonyum açığa çıkarmaktadır. Bunun yanında kullanılmış yakıtlar yıllık olarak yaklaşık 6 ton Amerikyum, 4,8 ton Neptünyum ve 0,2 ton Kuriyum ortaya çıkarmaktadırlar [53]. Yüksek radyotoksik özelliklere sahip bu elementler aynı zamanda fisyon ürünlerini de içermektedir ve yüksek seviyeli atık (high level waste, HLW) olarak adlandırılmaktadırlar. Bu elementler birbirinden ayrıştırılabilir ve seramik matris olarak ayrı bir şekilde uzun süreli depolanabilir (immobilizasyon) ya da radyotoksik olmayan ve kararlı olan elementlere dönüştürülüp bertaraf edilebilir (transmutasyon) [54].

Son yıllarda Avrupa ülkeleri ve Japonya başta olmak üzere bu fazla plütonyumun yakılması ve minör aktinitlerin dönüştürülmesi hususunda yeni bir yakıt teknolojisi geliştirmek için gerekli olan araştırma ve geliştirme faaliyetleri hız kazanmıştır. İnert matriks yakıt adı verilen bu yakıt türü yakıt performansı ve fabrikasyon teknikleri yönünden değişik aday malzemeler üzerinden incelemeye alınmıştır. Bu yakıtın en temel özelliği uranyum içermemesidir (U-free fuel). Plütonyum ya da minör aktinit bileşiklerinden birisi matriks bir malzeme içerisine katılarak elde edilen bir yakıt türüdür. Bu yakıt türü reaktörde yakıldıktan sonra direkt olarak depolanabilir ya da bertaraf edilebilir. 1990'lı yılların başlarında bu yenilikçi yakıt türü ile ilgili orta vadeli elde edilebilecek sonuçlar ve sunumlar çeşitli organizasyonlarda yayınlanmıştır.

İnert matriks yakıtlar ya da toryum esaslı plütonyum katkılı yakıtlar kullanılarak mevcut plütonyumun yakılma oranları artırılabilir. Ayrıca MOX yakıtlarına nazaran minör aktinitlerin üretimi de bu tip yakıtlarda daha az olmaktadır [55].

(ThPu)O₂ yakıtları ise MOX yakıtlarına nazaran daha fazla plütonyum tükettiklerinden dolayı ilgi çekici olmuştur. Ek olarak ThO₂ yakıtlarıyla ilgili deneysel veriler göstermiştir ki ışınlama esnasındaki davranışları ve kullanılmış yakıt içerisindeki yüksek kararlılık hali doğrudan depolama için ideal seviyededir. Bu yakıtın en önemli dezavantajı ise yüksek gama akvitesine sahip ²³²U üretmesidir.

Uranyum içermeyen inert matriks yakıtların en önemli özelliği ışınlanma esnasında plütonyum üretmemesidir. Bunun yanında mevcut bütün fisil plütonyumu tüketmesi de eklenebilir. İnerit matriks ve ThO₂ yakıt konseptinde plütonyum dioksit inert bir seramik oksit içerisine (stabilize edilmiş zirkonya veya spinel) karıştırılır. Böyle bir konsept standart zenginleştirilmiş uranyum yakıtı gibi aynı ölçüde hatta daha yüksek performans sergileyebilmektedir.

2.4.3. İnerit matrix yakıtlar için malzeme seçimi

İnerit matriks yakıtlar için malzeme seçimi önem arz etmektedir. Bu tip yakıtlar için gerekli olan malzemeler nükleer yakıt üretimi için bazı önemli özellikler gerektirmektedir. Yüksek ergime sıcaklığı, düşük buhar basıncı, iyi derecede termal özellikler (termal iletkenlik, ısı kapasitesi), iyi mekanik özellikler, kaplama ve soğutma malzemesi ile uyumluluk, düşük nötron yakalama ve tesir kesiti gibi özellikler fabrikasyon için gerekli olan özelliklerdir. Bunların yanında seçilen malzemeler ışınlanmaya ve yanma esnasında yakıt malzemesiyle etkileşimlere karşı uzun süreli kararlı olabilmelidir. Değişik aşamalarda değişik ışınlama kaynaklarının fiziksel ve kimyasal etkilerinden dolayı radyasyon kararlılığı son derece dikkatli ele alınması gereken bir konudur. Bir diğer önemli nokta ise değişik kimyasal durumlarda oksijen potansiyeli, çözünürlük ve faz davranışları gibi termodinamik özelliklerdeki kararlılıktır [51]. Reaktör içinde normal ve normal olmayan koşullarda sergilenebilecek davranışların önceden tahmin edilebilirliği önem arz etmektedir.

Zirkonyum oksit (ZrO₂), spinel yapı (MgAl₂O₄) ve alümina (Al₂O₃) gibi kimyasal ve fiziksel olarak son derece kararlı olan malzemeler inert matriks yakıtlar için kullanılabilir malzemelerdendir. Stabilize edilmiş ZrO₂ esaslı inert matrisler ve spinel yapı olan MgAl₂O₄ bu yakıt türü için özellikle öne çıkan malzemelerdir. Ayrıca AlN ve ZrN malzemeleri de termal özelliklerinden dolayı ilgi çekmiştir.

Yukarıda bahsedilen bu kriterlere dayanarak birçok inert matriks malzemesi daha çok seramik oksitler ve oksit olmayan malzemeler arasından seçilmiştir. Tablo 2.4'te bazı seçilmiş inert matriks malzemeleri ile onların fiziksel ve kimyasal özellikleri

gösterilmiştir. Bu tabloda PuN ile birlikte reaktörlerde kullanıldığından dolayı bazı nitrür seramiklere de yer verilmiştir.

Tablo 2.4. İnert matriks yakıtlar için aday malzemelerin bazı önemli özellikleri [51]

Özellik/Malzeme	Al ₂ O ₃	MgAl ₂ O ₄	CeO ₂	ZrO ₂	SiC	ZrN	AlN
Ergime Sıcaklığı (°C)	2054	2105	2400	2710	2830	2960	
Buhar Basıncı (bar, ~2000 °C)	10 ⁻⁶	-	6x10 ⁻⁵	10 ⁻⁸	1,4x10 ⁻⁴	10 ⁻⁷	10 ⁻¹
Termal İletkenlik (1000 °C)	8,2	7,7	1,2	2,2	47 (α) 40 (β)	23	36
Termal İletkenlik (2000 °C)	5,8	8	0,9	1,5	31 (α) 30 (β)	26	27
Uyumluluk	900 °C	-	650 °C	1200 °C	700 °C		1000 °C
-östenitik çelik	ye kadar	-	ye kadar	ye kadar	ye kadar		ye kadar
-soğutucu			uyumsuz				
-Na (sıvı)	reaksiyon yok	reaksiyon yok	NaCeO ₂ formunda	reaksiyon yok	500 °C'ye kadar	-	uyumlu
-Su	çözülmez	-	çözülmez		uyumlu	çözülmez	Düşük hidroliz

Bunların yanında ışınlama esnasında gösterdikleri davranışlarda değişik tekniklerle incelemeye tabi tutulmuştur. MgAl₂O₄ ve CeO₂ radyasyona karşı son derece dayanıklıdır. MgAl₂O₄ yapısında ışınlama sonrası hacim değişimi %1 kadardır. Stabilize edilmiş ZrO₂ ise kübik yapıda olduğu zaman bozulmadan kaldığı bilinmektedir. Bütün bu sonuçlar ışığında inert matriks yakıtlar için en iyi ve uyumlu malzemelerin spinel (MgAl₂O₄) ve stabilize edilmiş zirkonyum oksitin olduğu düşünülmektedir.

İnert matriks yakıtlar minör aktinit bileşikleri ile birlikte kullanılarak da yakıt olarak kullanılabilirler. Minör aktinit bileşimleri küresel partiküller halinde inert matriks yapının içine yayılırlar. Bu tip yapıların gerçekleştirilmesinin amacı termal özelliklerinin iyileştirilmesidir. Bir başka amacı ise termal özelliklerin kötüleşmesine sebep olan matriksteki ışınlamadan kaynaklı hataların önlenmesidir. MgO inert matriks malzeme için önerilen önemli bir malzemedir. Çünkü yüksek ergime sıcaklığı ve yüksek termal iletkenlik özelliklerine sahiptir [56, 57].

Nükleer reaktörlerden ve nükleer savaş başlıklarından meydana gelen fazla plütonyum yayılma riskinden sakınmak için bazı çalışmalar yapılmaktadır. Onlardan birisi YSZ (yttria stabilized zirconia), Al_2O_3 , ZrO_2 , $MgAl_2O_4$ gibi malzemeler kullanılarak tek geçişli inert matriks nükleer yakıt kullanılmasıdır. Uranyum kullanılmadan yapılan bu yakıt plütonyum ve inert matriks bir malzeme içermektedir [58].

Nükleer silahlardan ve ticari amaçlı kullanılmış nükleer yakıt atıklarından ortaya çıkan (^{241}Am , ^{244}Cm , ^{237}Np) ürünleri aktinit ürünlerdir. Özellikle Avrupa, Kanada ve Japonya'da bu ürünlerin inert matriks yakıt kullanılarak tüketilmesi üzerine çalışmalar mevcuttur. İntert matriks yakıtların da özellikleri göz önünde bulundurularak yapılan çalışmalarda düşünülen tek geçişli yakıt çevrimi ve sonrasında direkt olarak depolanmasıdır. Direkt depolama işlemleri işletim masraflarını, proses gereksinimlerini ve çalışanların radyasyonla etkileşimlerini minimize etmektedir [59].

Nükleer yakıt kullanımında “yeniden işleme” (reprocessing) önemli bir yer teşkil etmektedir. Bu çerçevede hafif sulu reaktörlerde kullanılmaya başlayan MOX yakıtları, plütonyumun yeniden kullanılması için önemli bir seçenek olarak ortaya çıkmış olsa da ekonomik yönden tercih edilebilirliği tartışılır olmuştur. Buna karşın uranyum içermeyen plütonyum esaslı inert matrix yakıtların tek geçişli olarak kullanılabilirliği; ekonomiklik, plütonyumun yayılma riskini azaltma yönünden ve nötronik hesaplamalar yönünden daha tercih edilebilir gözükmektedir [60, 61].

İntert matriks yakıtların ticari olarak henüz kullanımı yoktur ve yakıt fabrikasyon teknikleri açısından henüz geliştirilme aşamasında olan bir yakıt türüdür. Şimdilik laboratuvar ölçekli çalışmalar çerçevesinde geleneksel nükleer yakıt fabrikasyon teknikleri ile araştırma ve geliştirme yapılmaktadır. İki tür yakıt tipi bu fabrikasyon çalışmalarında ön plana çıkmaktadır. İlki homojen ikincisi heterojen yapıda üretim tipleridir. Homojen yakıtlar inert matriks malzeme ile tek bir katı çözelti formu oluşturma esasına dayanır. Buna örnek Pu çözeltisi içerisinde stabilize edilmiş zirkonyanın bulunmasıdır. Heterojen yakıtlar ise seramik bir matriks içine seramik bir fisil malzemenin dispersiyonundan (ceramic-ceramic, CERCER) oluşan veya

metal bir yapı içerisinde fisil bir seramik malzemenin dispersiyonundan (ceramic-metal, CERMET) oluşan iki fazlı bir yapının meydana gelmesi esasına dayanır. İlkine örnek olarak AmO_2 'nin spinel yapı MgAl_2O_4 içerisinde bulunması, ikincisine örnek ise molibden veya tungsten içerisinde PuO_2 'nin bulunması gösterilebilir. Plütonyumun yakılması için yakıt fabrikasyonunun kolay uygulanabilirliğinden dolayı homojen yapılı inert matriks yakıtlar daha çok tercih edilebilir görülmektedir. Ancak iki fazlı heterojen yapı basit peletleme teknolojisinden farklı olarak diğer teknolojiler ile geniş çaplı bir üretimin uygulanabilirliği için geliştirilmelidir. Ek olarak ikiden fazla bileşenin olduğu yapıların kontrolü daha hassas görüldüğünden geleneksel yöntemlerle yapılan toz hazırlama adımlarının ve toz karıştırma işlemlerinin modifiye edilmesi gerekmektedir. Heterojen yakıtlar için matriks içine disperse edilen seramik bir malzemenin hazırlanması sol-gel yöntemi ile gerçekleştirilebilir.

Plütonyum inert matriks yakıtları (Pu-IMF) MOX yakıtta bulunan uranyumu içermeyen, bunun yerine inert matriks bir malzeme içeren yakıt türüdür. Bu inert matriksler bileşiktir ve nötronlara karşı şeffaftırlar. Zr, Al, Mg gibi kimyasal elementler inert matriks bileşikleri için uygun malzeme olarak değerlendirilmişlerdir. Birçok araştırma ve geliştirme faaliyeti sonucunda zirkonya ve spinel yapı en önemli inert matriks malzemeleri olarak seçilmişlerdir. Bunların her ikisi de nitrik asit içerisinde çözünmezler. Dolayısıyla herhangi bir yeniden işleme (reprocess) tabi tutulma söz konusu değildir. Bu yakıt türü aynı zamanda tek geçişli yakıt sistemi için tasarlanmıştır ve kullanıldıktan sonra direk yeraltı bertaraf tesisine gönderilir. Bundan dolayı bu yakıtların kararlılığı jeolojik bariyer açısından son derece avantajlıdır.

2.4.4. İnerit matriks yakıt ile ilgili değerlendirmeler

21. yüzyılın başlarında nükleer enerjinin geleceği, olduğundan daha parlak görülmektedir. Sürdürülebilirlik politikaları, çevreci bir atık yönetimi, elektrik üretimindeki çeşitlilik, nükleer silahların yaygınlaştırılmasının önlenmesi, ekonomik rekabet ve sosyal durum gibi önemli hedeflerin yerine getirilmesi nükleer enerjide de yeni bir rönesans yapmak için bir potansiyel meydana getirmiştir. Bütün bu alanların

her birisi için en önemli sorun, artmış olan ve artmaya devam eden plütonyum stokunun nükleer enerjiye dair yakıt stratejilerini tahmin edilemez boyutlara ulaştırmasıdır.

Nükleer teknolojinin ilk yıllarında plütonyum birçok kişi tarafından insanoğlunun enerji ihtiyacını giderecek yegâne çare olarak kabul edilirdi. Hızlı reaktörlerde (FBR) yanma, yeniden işleme işlemlerinin sürekli devam etmesiyle uranyum madenciliğine ve zenginleştirmesine olan ihtiyacı azaltmıştır. 1950 ve 60'lı yıllarda iki farklı ancak birbiri ile ilişkili araştırma ve geliştirme faaliyetleri başlamıştır. İlki kullanılmış UO_2 yakıtından plütonyumun ayrılması, ikincisi ise hızlı reaktör sistemlerinin geliştirilmesidir [62]. Birkaç ülkede endüstriyel olarak plütonyumun yeniden işlenmesi gerçekleşmiştir ancak hızlı reaktörlerin geliştirilmesi programı gerçekleşmemiştir. Bunun da net bir neticesi olarak plütonyum stoku artmaya devam etmektedir.

Hızlı reaktör programının durması ve sadece plütonyumun yeniden işleme seçeneğinin üzerinde durulması hafif sulu reaktörlerde plütonyumun yeniden kullanılması yolunu daha da açmıştır. Daha önceden de bahsedilen MOX tipi yakıtlar kullanılarak fazla plütonyum yakılmaya çalışılmıştır. MOX tipi yakıt kullanılarak plütonyum stokunun tüketilmesi Avrupa için vazgeçilmez bir strateji haline almıştır. Son yıllarda ise plütonyum tüketim oranının daha fazla olduğu inert matriks yakıtlar ile ilgili çalışmalara öncelik verilmiştir.

Başta Amerika ve Rusya olmak üzere nükleer silahlara sahip ülkelerin silahlarının sökülmesinden kaynaklanan plütonyum stokunun tüketilmesi ile ilgili dünya genelinde araştırma ve geliştirme çalışmaları tüm hızıyla devam etmektedir. Amerika Enerji Dairesi (USDOE) bu meseleyi yakın ve orta vadedeki başlıca hedeflerinin arasında değerlendirmektedir. Kanada kendi üretmiş olduğu CANDU tipi reaktörlerde MOX yakıtı kullanımı ile ilgili önemli araştırmalar yapmıştır [63]. Amerika'da silahlardan gelen bu plütonyumun yeraltında depolanıyor olması son derece ciddi bir sorundur. Kanada'da bulunan (Atomic Energy of Canada Limited, AECL) gibi birçok kuruluş uranyum yakıtı içermeyen inert matriks yakıtlar üzerinde çalışmalar gerçekleştirmektedir.

Hindistan'ın nükleer enerji teknolojisi ile ilgili üç aşamalı hedefleri bulunmaktadır. Plütonyum bu hedeflere ulaşmada kilit rol oynayan önemli bir aktör olarak göze çarpmaktadır. Üçüncü aşamadaki ana hedefi olan toryum esaslı nükleer yakıt geliştirme teknolojisinde plütonyum önemli yer tutmaktadır. Hızlı reaktör teknolojisi hedefleyen Hindistan'ın plütonyum esaslı yakıtları toryumla birlikte kullanması kısıtlı uranyum rezervlerine sahip olduğundan kaçınılmazdır. Bu sebeplerden ve çok yüksek miktarlarda toryum rezervlerine sahip olduğundan dolayı Hindistan için plütonyum hayati bir önem taşımaktadır.

Bilindiği üzere inert matriks yakıt konsepti atıkların işlenmesinden ortaya çıkan fazla miktardaki plütonyumu ve yüksek seviyeli radyoaktif atıkların bertaraf edilmesi için öncelikli olarak Avrupa ve Japonya'da çalışılmıştır. Nükleer silahların sökülmesinden ortaya çıkan plütonyumun kullanılması için ise Amerika Birleşik Devletleri MOX yakıt tipinde (U,Pu)O₂ yakıtı üretimi yaparak araştırma ve geliştirme faaliyetlerine de öncelik tanıyarak fazla plütonyumu tüketmek için çalışmıştır. Japonya 1990'larda PROFIT (Plutonium Rock-Like Fuel in-Reactor Technology) adlı projeye kendi yöntemleriyle silahlardan ortaya çıkan fazla plütonyumu yakmaya çalışmıştır. Ancak daha sonraları bu proje aşamalı olarak durdurulmuştur ve aynı konu üzerine çalışmalara devam etmek için Avrupalı diğer kuruluşlarla işbirliği yapılmıştır (Central Research Institute of Electric Power Industry, CRIEPI ve Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC). Japonya'nın bunların dışında OMEGA (Options for Making Extra Gains from Actinide and Fission Products) adını verdiği aktinitlerin transmutasyonu çalışmaları için geliştirdiği projeler de yer almaktadır.

Bunların dışında özellikle Avrupa ülkeleri ve Japonya'nın başını çektiği EFTTRA (Experimental Feasibility of Targets of Transmutation), CAPRA (Consummation Acrué De Plutonium Dans Les Rapides), SPIN (Seperation et Incineration), OTTO (Once-Through-Than-Out) gibi değişik amaçlarla kurulmuş işbirlikleri mevcuttur.

Fransa'nın nükleer enerji ile ilgili geleceğinin yapılandırılmasında önemli bir rol oynayacak olan hedef ise inert matrix yakıtla doldurulmuş bir reaktör geliştirilmesidir. Problem olarak düşünülen nokta ise minör aktinitlerin envanterinin

kontrol altında tutulması ve bunların hızlı reaktörlerde yakılabilecek hale getirilmesidir. Fransa'da yapılacak olan nükleer çalışmaların ana kapsamı kaynakların kullanımı, atık yönetimi ve bunların ekonomik, çevresel, finansal ve sosyal etkilerinin araştırılması olacaktır [64]. İnert matriks yakıtların araştırılmasında iki önemli hedef ortaya çıkmaktadır. İlki plütonyumun yeniden işlenmesi ve ikincisi ise minör aktinitlerin yeniden işlenmesidir.

Japonya Atom Enerjisi Araştırma Enstitüsü (JAERI) plütonyumun tek geçişli yanma prosesleri için önemli çalışmalar yapmaktadır. Bu proste mevcut geleneksel MOX yakıt teknolojisine dayalı olarak çok fazlı kaya tipi oksit yakıt (rock-like oxide, ROX) çalışmaları üzerinde durulmaktadır. Bu yakıt türünü hafif sulu reaktörlerde (LWR) denemişlerdir. Bu ısınlanma sonucu ortaya çıkan kullanılmış yakıtlar jeolojik yönden oldukça kararlı malzemelerdir ve daha fazla prosese ihtiyaç duymadan yüksek seviyeli atıklar gibi tasfiye edilebilir. Buna göre bu prosesin üç yönden avantaj sağlayacağı düşünülmektedir: plütonyumun doğasının değiştirilmesi (yayılma riskini azaltma yönünden), elektrik üretimi (ekonomi yönünden), yüksek seviyeli atık formunda kararlı halde kalması (çevresel güvenlik yönünden) [65].

Sonuç olarak nükleer teknolojinin; nükleer silahlardan arta kalan ve nükleer reaktörlerde yakıtların yanması sonucu ortaya çıkan fazla plütonyum ve radyotoksiklik değeri çok yüksek olan minör aktinitler ile ilgili kısa vadede çözümler üretmek zorunda olduğu düşünülmektedir. Nükleer silahların sökülmesinden her on yılda bir yaklaşık 100 ton kadar plütonyumun açığa çıkacağı öngörülmektedir [66]. Bu silahlardan gelen plütonyum fazla plütonyum olarak kabul edilmektedir ve silahların yeniden kullanılmasını önlemek için tamamen yakılması gerekmektedir.

2.5. Nükleer Yakıt Malzemelerinin Üretim Yöntemleri

Nükleer malzeme terimi, uluslararası yerleşik kullanımına göre, sadece nükleer yakıt yapımında kullanılan fisil (bölünebilir) malzemeler (^{235}U , ^{233}U , ^{239}Pu) ile kendinden bölünebilir malzeme üretebilen kaynak (doğurgan) malzemeleri (^{232}Th , ^{235}U) ifade etmek için kullanılır.

Nükleer yakıt çevrimi; cevherden reaktöre, kullanılmış yakıt işleme ve nihai depolamanın tüm adımlarını kapsar. Reaktörün ve kullandığı yakıtın tipi ile yakıtın reproses edilip edilmemesine göre birçok yakıt çevrimi tanımlanabilir. Günümüzde güç reaktörlerinde en çok kullanılan yakıt çevrimi az miktarda zenginleştirilmiş uranyumdan üretilen UO_2 seramik peletlere dayalı olmaktadır. Konvansiyonel nükleer yakıt malzemeleri terimi, günümüzde en çok bulunan güç reaktörü tiplerinde nükleer yakıt olarak kullanılan uranyum ve toryumun dioksitleri, ayrıca zarf malzemesi olarak kullanılan zirkonyum alaşımlarına karşılık gelmektedir.

2.5.1. UO_2 üretimi

UO_2 nükleer güç reaktörlerinin temel yakıtı olması nedeniyle nükleer yakıt alanında üzerinde en fazla çalışılan malzemedir. Nükleer yakıt peletlerinin kalitesini UO_2 tozlarının özellikleri belirlemektedir. UO_2 tozlarının önemli özellikleri (tane büyüklüğü ve morfolojisi, özgül yüzey alanı, yığılma ve sarsma yoğunlukları, akıcılık); pelet parametrelerine (yoğunluk, tane boyutu, açık ve kapalı por boyut ve oranları) etki etmektedir. Bu nedenle yakıt çevrimi adımları nükleer yakıt teknolojisinde önemli bir yer tutmaktadır. Fabrikasyon adımlarının mümkün olduğunca teknik ve ekonomik açıdan rasyonel olması ve üretilmek istenen özelliklerde sabit değerlere sahip UO_2 tozları istenmektedir. Presleme, sinterleme davranışları, ham yoğunluk gibi özelliklerin tekrarlanabilir olması önemlidir. UO_2 peletlerinin kalite özellikleri aşağıdaki pelet özelliklerini kapsar:

- Yoğunluk
- Safiyet (kimyasal)
- Mikroyapı
- Boyutlar

İlk üç parametre yakıt çevrimi ile ilgilidir. Bu özellikler, yakıt çevriminden sonra istenilen yöne doğru değiştirilebilir, düzeltilebilir. Önemli olan istenilen nitelikteki yakıt peletlerine mümkün olan minimum adımla ulaşmaktır. Bundan dolayı pelet özelliklerinin değişimi çevrim yöntemleriyle başlar. Çevrim yöntemi; tüm yakıt çevrim yöntemlerini, pelet fabrikasyonunda doğal uranyum, reproses sonrası Pu ve U

çevrimi, atık işleme proseslerini de içermektedir. Uranyum yakıt çevrimi tabirinden, sarı pastanın UF_6 'e (uranyum hekzaflorit), UF_6 'nın UO_2 'e ve UNH_3 'ün (uranil nitrat heksahidrat) UO_2 'e dönüştürülmesi anlaşılmaktadır. Bu iki türlü yöntem ile gerçekleştirilmektedir. Birincisi ADU (amonyum diuranat) yöntemi, ikincisi ise AUC (amonyum uranil karbür) yöntemidir.

Nükleer güç reaktörlerinde yakıt malzemesi olarak uranyum dioksit (UO_2) kullanılmaktadır. Uranyum dioksit seramik malzemedir ve UO_2 peletleri toz metalürjisi yöntemleriyle üretilmektedir. Toz metalürjisi yöntemi için öncelikle uranyum dioksit tozlarının üretimi önemlidir. Uranyum dioksit tozları amonyum diuranat (ADU) ve amonyum uranil karbonat (AUC) yöntemi kullanılmaktadır. Her iki bileşik de önce kavru olarak UO_3 , veya U_3O_8 'e dönüştürülmektedir. Sonra bu bileşikler hidrojen atmosferinde indirgenerek UO_2 tozları elde edilmektedir. İndirgeme sıcaklığı olarak $600\text{ }^\circ\text{C}$ alınmaktadır. UO_2 stokiyometrik bir bileşik olmadığından indirgeme sonrası hava ile temasında oksitlenmeye başlamaktadır. Bu oksitlenme tozların yüzey aktiviteleri ve reaktifliklerine bağlı olarak hızlı veya yavaş olmaktadır. O/U oranının yaklaşık sabit bir değerde kalması için indirgeme sonrası UO_2 tozları pasivasyona tabi tutulmaktadır. Pasivasyon işlemi için $100\text{ }^\circ\text{C}$ 'de %1 hava içeren azot gazı kullanılmaktadır.

Elde edilen UO_2 , tozları belli tane boyutu, kristal yapısı ve özgül yüzey alanına sahip olması gerekmektedir. Bu özelliklerin uygun değer aralıklarında bulunması; pH, çöktürme sıcaklığı, karıştırma hızı ve uranyum konsantrasyonu gibi parametrelere bağlıdır. Bunun yanında indirgeme aşamasındaki indirgeme sıcaklığı da toz özelliklerine direkt olarak etki etmektedir. Yüksek sıcaklıkta indirgeme işlemine tabi tutulan tozlar düşük sıcaklıkta indirgeme işlemine tabi tutulan tozlardan daha büyük kristal yapısı ve dolayısıyla daha büyük tane boyutuna sahip olmaktadır. Yüksek sıcaklıkta indirgenen tozlar bu sıcaklıkta az da olsa sinterlenmeye tabi tutulmuş gibi olmakta dolayısıyla taneler büyümüş olmaktadır.

2.5.1.1. UO₂ presleme

UO₂ peletleri toz metalürjik yöntemlerle üretilmektedir. İstenilen niteliklerde hazırlanmış UO₂ tozları farklı reaktör türlerine göre farklı geometri ve boyutlarda 300-600 MPa basınçlarda şekillendirilerek ham peletler elde edilir. ADU yöntemiyle üretilmiş UO₂ tozlarının nihai presleme öncesi serbest akıcılık sağlanması için 10-100 MPa aralığında ön presleme işlemine tabi tutulur. 200-400 mikron aralığındaki tozlar nihai presleme için alınır. Ham pelet bağıl yoğunluklarının %55-65 teorik yoğunluk değerlerine ulaşması gerekmektedir. Preslenen tüm UO₂ peletleri görsel olarak muayene edilir. Bunların %1 kadarından ham yoğunluk ölçümleri yapılır. Gözle görülebilir hata içeren peletler hurda olarak değerlendirilir. Pelet basmak için kullanılan kalıp yüzeylerinin ± 1 mikrometre hassasiyetle işlenmiş olması gerekmektedir. Genellikle wolfram karbür (WC) esaslı kalıp malzemeleri kullanılır.

2.5.1.2. UO₂ sinterleme

Konvansiyonel olarak UO₂ peletlerinin sinterlenmesinde H₂ atmosferinde 1700 °C sıcaklıkta 4 saat süre ile sinterleme prosesi kullanılır. Atmosfer, saf hidrojen veya hidrojen-asal gaz karışımlarının farklı bileşimlerinde olabilir. Sinterleme davranışları dilatometre yardımıyla incelenir. Başka bir sinterleme yöntemi olan kısmen oksitleyici atmosferde yapılan düşük sıcaklık sinterlemesinde ise sinterleme süresi 60 dakika kadardır ve bu sinterleme sonrası peletlerdeki O/U oranları 2,15 dolayında olup bu değeri düşürmek için hidrojen atmosferi altında 1200 °C sıcaklıklarında peletler indirgeme işlemine tabi tutulur. Düşük sıcaklık sinterlemesi henüz kullanılmamaktadır. Sinterlenmiş tüm peletlerde görsel olarak makro muayene yapılır gözle görülebilir hata içeren peletler ayıklanır ve işlenmek üzere hurdaya gönderilir [67].

2.5.2. ThO₂ üretimi

Toryum içeren madenlerden toryum bileşiklerinin eldesinde başlıca basamaklar, toryum mineralinin konsantrasyonu, konsantreden toryumun ekstraksiyonu,

saflaştırması ve iyileştirilmesi veya istenen bileşiğine dönüştürülmesidir. En fazla yaygın olan toryum cevheri ise monazittir.

2.5.2.1. Monazitin konsantrasyonu

Monazitin başlıca bileşenleri nadir toprak elementleri ve toryum fosfat olmasına rağmen, bileşimi verilen yığına ve bulunduğu yere göre geniş oranda değişir. Monazit kimyasal olarak çok inerttir. Monazitin kullanılması ve bileşenlerinin toryum, uranyum ve nadir topraklarının ekstraksiyonuna ve ayrılmasına izin vermesi konusunda etkin olması için iki genel metot vardır. Bunlar;

- sıcak konsantre kostik soda çözeltisiyle reaksiyonu
- sıcak konsantre sülfirik asitle çözmedir.

Monazit, nehir ve deniz kumlarından plaser madencilik yöntemleriyle çıkartılır. Çıkartılan ilk kaba ürüne siyah kum adı verilir ve diğer zenginleştirme işlemlerine tabi tutulmak üzere tesislere gönderilir. Siyah kum kurutulduktan sonra manyetik, elektrostatik veya bunların kombinasyonu olan yöntemlerle zenginleştirilir.

Monazit, kompleks kimyasal işlemler sonunda toryum, nadir mineraller ve fosfatlar şeklinde ayrışır. İlk işlemler sıcak, konsantre sülfirik asit veya sodyum hidroksit çözeltileri ile yapılır. Toryum genellikle çökelek olarak elde edilir, fakat kristalizasyon metodları da uygulanabilir. Amonyum hidroksit ile asit pH=1 olana kadar nötralize edilir ve fosfat şeklinde toryumun büyük bir kısmı ve nadir toprak minerallerinin %5'i sülfatlar halinde elde edilir. Nadir mineraller daha sonra çözeltinin alkalizasyonu ile kazanılırlar. Kaba toryum fosfat çözeltisi nitrik asit içerisinde eritilir ve solvent ekstraksiyon metodu ile toryum kazanılır.

2.5.2.2. Toryumun elde edilmesi

Çözeltide çok fazla element olmasından ve fosforik asitten dolayı toryumun bu asit çözeltisinden ayrılması zordur. Okzalik asitle çöktürme; monazitin sülfirik asit

çözeltisinden toryum, nadir toprak ve uranyum konsantresinin ayrılması prosesinin temel basamaklarıdır.

Litrede 50-60 g toryum ve nadir toprak içeren sülfürik asitteki monazit çözeltisi 4,5 litre su ile seyreltilir ve pH, NH_4OH ile 1,5'e getirilir. Okzalat iyonu sodyum okzalat ve %10'luk okzalik asit çözeltisi ile %110'luk okzalat iyonu sağlayacak şekilde ortama eklenir. Çökelti filtrelenir ve 0,3 N nitrik asitte %1'lik ozalik asit ile yıkanır. Uranyum sülfat ve fosfat filtratından anyon değiştirici ile kazanılır. Hidroksit çökeltisindenki toryum ve nadir topraklar nitrik asitle çözülür ve solvent ekstraksiyonu ile ayrılır. Elde edilen toryum konsantresi nükleer yakıt olarak kullanılmak için çok kirlidir. Çoğunlukla bünyesinde uygun olmayan safsızlıklar, nötron absorplayan nadir topraklar ve uranyum mevcuttur. Tribütilfosfat (TBP) ile solvent ekstraksiyonu toryumun saflaştırılmasında kullanılma standart bir prosedürdür [68].

2.5.3. Sol-gel prosesi

Sol-gel prosesi oksit tabanlı nükleer yakıt üretiminde son yıllarda üzerinde fazlaca durulan bir yöntem olmuştur. Hem UO_2 hem de ThO_2 için kullanılabilir bir yöntemdir. Yüksek yoğunlukta ve homojenitede oksit fabrikasyonu genellikle konvansiyonel yoldan tozların karıştırılması, peletlenmesi ve sinterlenmesi aşamalarında yoğunlaşmıştır. UO_2 ve ThO_2 peletlerinin yapımı için önce UO_2 ve ThO_2 tozlarını hazırlamak gerekir. UO_2 tozları genellikle ADU (Amonyum Diuranat) veya AUC (Amonyum Uranil Karbonat)'nin indirgen atmosferde kavrulması ile elde edilir. ThO_2 tozları ise toryum hidroksit, okzalat, karbonat, nitrat ve sülfat gibi toryum tuzlarının kavrulması ile elde edilir. Ancak tek tek oksitlerden katı çözelti oluşumu etkin bir öğütme ve yüksek sıcaklıkta reaksiyon ile mümkündür. Birçok araştırma sonucunda özellikle karışık oksit yakıtlarının geliştirilmesinde başlıca prensibin homojen bir karışım elde edilmesi olduğu gözlemlenmiştir [69]. Son yıllarda yüksek performans ve güvenilirlikte seramik üretimini amaçlayan sol-gel yöntemi ile seramik üretimi üzerinde yoğun çalışmalar yapılmaktadır. Bu proseste, çözeltinin sıvı gibi akışı ve sonra katılaştırılması sağlanarak sahip olduğu yüksek homojeniteyi kaybetmeksizin jelleşmesi sağlanmaktadır. Daha sonra seramik ürün,

bu jelden sinterleme yolu ile üretilir. Seramik nükleer yakıt yapımında sol-gel prosesinin kullanılması, yüksek homojenite ve yoğunluğa sahip yakıtların üretiminde diğer yöntemlere kıyasla önemli avantajlar sağlamaktadır. Sol-gel proseslerinin başlıca esasları; uranyum, plütonyum ve toryum gibi ağır metaller içeren çözeltilerin damlacık halinde damıtılması ve kimyasal çöktürme yolu ile katılaştırmasıdır. Jel partikülleri sağlanan ortam ile seramik küreciklere dönüştürülmektedir. Genellikle damlacıkların katılaştırılması veya jelleştirilmesi, ağır metallerin nitrat çözeltilerinin amonyak ile çöktürülmesi reaksiyonu esasına dayanır [70]. Sol-gel yöntemi ile elde edilen mikrokürecikler doğrudan nükleer yakıt olarak kullanılabilir. Ayrıca elde edilen kürecikler sıkıştırılarak pelet şeklinde basılması ile de kullanılabilir. ^{233}U 'ün reposesi gözönünde tutulduğunda, ^{233}U 'ün işlenmesi, ^{232}U ve gama aktif ürünlerinin kontaminasyonundan dolayı sadece sıcak hücrelerde gerçekleştirilebilir. Bu nedenle reposes işlemi uzaktan kumanda ile yapılmalıdır. Bu durumda daha kolay kimyasal koşullar, radyasyona karşı kararlı kimyasallar, minimum proses adımı ve minimum atık madde gereklidir. Geleneksel nükleer yakıt üretiminde önerilen konvansiyonel toz sıkıştırma, peletleme, sinterleme yönteminin oldukça tozlu işlemler içermesi ve karmaşık ekipman gerektirmesi, alternatif bir yöntem olarak sol-gel mikrokürecik peletleme (sol-gel microsphere pelletization, SGMP) yönteminin geliştirilmesine neden olmuştur [71].

Son yıllarda artan önemi ile birlikte kullanılabilirliği de ispatlamış olan sol-gel prosesi, nükleer yakıt fabrikasyonu tekniklerinde adından oldukça söz ettirmektedir. Bu tez çalışmasında dört farklı oksit malzemenin bileşimi ve birbiri ile uyumluluğu söz konusudur. Çok bileşenli bir oksit malzeme üretimi söz konusu olduğunda homojenliğin sağlanması önemlidir. Homojenliğin sağlanamaması nükleer yakıt teknolojisinde önemli yer tutar. Homojenliğin sağlanamaması durumunda yanma esnasında homojen olmayan güç dağılımları meydana gelir. Bu da güvenlik problemlerine yol açabilir. Yanma esnasında yakıt peleti, bütünlüğünü muhafaza etmelidir. Homojen olmayan bir yapı bütünlüğün muhafaza edilememesine yol açar. Özellikle kompleks ve çok bileşenli yapılarda homojenliğin sağlanması toz metalurjik yöntemlerle zorluklar arz etmektedir. Bu sebeple sol-gel yöntemi özellikle çok bileşenli yapılarda tercih edilmektedir.

BÖLÜM 3. SOL-GEL PROSESİ

İlk olarak 1800'lü yıllarda keşfesilen sol-gel prosesi Ebelman ve Graham adlı kişilerin asidik şartlarda (tetra ethyl ortho silicate), TEOS hidrolizi ile başlamıştır. 1930'lu yıllardan bu tarafa yaygın olarak kullanılmıştır ve 1938 yılında Almanya ilk patent alan ülke olmuştur. 1970 yılında oda sıcaklığında cam oluşumunun keşfedilmesinden sonra ilgi artmıştır ve 1971 yılında Dislich tarafından çok bileşenli camların üretiminin ardından araştırma ve geliştirme çalışmaları yoğunlaşmıştır.

İleri seviyede mühendislik seramiklerinin üretiminde kullanılan başlangıç malzemelerinin; mikron altı boyutlarda, saf, reaktif ve daha düşük sıcaklıklarda sinterlenebilir olması istenen bir durumdur. Ayrıca klasik üretim metotlarıyla üretilmesi ve şekillendirilmesi mümkün olmayan malzemelerin üretimine ihtiyaç duyulmaktadır. Sol-gel prosesi bütün bu sebepler ışığında son yıllarda hızla gelişim kat eden bir yöntemdir. Bu yöntem seramik üretiminde kullanılan kimyasal bir proses olup, bir solüsyonun veya süspansiyonun jelleşme özelliği gösterebildiği tüm sistemleri içermektedir.

Sol-gel prosesinin esası metal çözeltileri veya metal tozları, nitratlar, hidroksitler ve oksitler gibi inorganik bileşiklerin belirli oranlarda su ve asitle birleştirilerek bir solüsyon (besleme çözeltisi) meydana getirilmesi ve hazırlanan bu solüsyonun belirli sıcaklıklarda karıştırılması neticesinde birbirini izleyen bir dizi kimyasal reaksiyon ve taneciklerin sahip olduğu yüzey yüklerinin elektrokimyasal etkileşimleri ile jelleşerek bir ağ meydana getirmesi ve bu ağın büyüyüp jel bir yapı oluşturmasıdır [72].

3.1. Nükleer Yakıt Fabrikasyonu İçin Sol-Gel Prosesi

Sol-gel prosesi yaş bir çalışma yöntemi olup malzeme bilimi, seramik mühendisliği alanlarında ve ileri nükleer yakıt çevrimlerinde yaygın olarak kullanılmaktadır. Katı ve sıvı fazları bünyesinde barındıran sol bir süspansiyon yapısındadır. Şekilsiz parçacıklardan farklı polimer ağ yapılarını içinde barındırır. Bu yapılar tekli bileşenlerde komplekslik arz ederlerken çoklu bileşen sol-gel sistemleri oldukça karmaşık ağ yapılarına sahiptirler. Sulu ve katı fazlar koloidal halde dengede bulunurlar. Bu dengeler birçok fiziko-kimyasal parametreye (sıcaklık, pH, basınç, ağ yapılarının boyutu, viskozite vb.) bağlıdır. Sol-gel prosesi ile toryum, uranyum, plütonyum, minör aktinitler ve zirkonyumun oksit, karbür ve nitrürlerinin ve bunların karışımlarının üretimi yapılabilmektedir. Özellikle kompleks yapılarda homojenitenin sağlanması, konvansiyonel toz metalürjisi yöntemleriyle zorluklar arz etmektedir. Homojen yapının sağlanamaması nükleer reaktörlerde homojen olmayan güç dağılımları ve bu durumda reaktör güvenliğini olumsuz yönde etkiler. Ayrıca homojen yapıda olmayan yakıtın yapısal bütünlüğünün korunabilmesi de mümkün değildir. Bu nedenlerle de sol-gel prosesi nükleer yakıt yapımında ayrıca tercih edilmektedir [73].

Bu prosesler tozsuz (dust-free) proseslerdir ve uzaktan kumanda edebilme kolaylığına sahiptir. Sol-gel prosesi ile hazırlanan bu mikrokürecikler hem küresel (sphere-pac) yakıt olarak hem de pelet olarak kullanılabilir. Sol-gel ile üretilen bu tip yakıtlar gaz soğutmalı yüksek sıcaklık reaktörlerinde ve hızlı reaktörlerde de kullanılabilir.

Yeryüzündeki fosil enerji kaynaklarının hızlı bir şekilde tüketildiği mevcut bir durum iken nükleer enerjinin bütün potansiyeli ile birlikte geliştirilmesine ihtiyaç vardır. Nükleer enerji enerjinin en temiz formlarından biridir. Herhangi bir sera gazı üretmemektedir ve çevreye herhangi bir artık bırakmamaktadır. Şu anda kullanılan nükleer reaktörlerin hepsi nükleer fisyon esasına göre çalışmaktadır. Bu reaktörler çok geniş çaplıdır ve 1600 MW'a kadar elektrik üretimi sağlayabilmektedirler. Bugün 434 nükleer reaktör üretimini sürdürmektedir ve dünyanın toplam elektrik üretiminin %11'ine tekabül eden 375 GW elektrik üretmektedir. Fransa ve Belçika

gibi bazı ülkeler elektrik üretiminin %70'ini nükleer enerji kaynaklarından sağlamaktadırlar. Fisyon reaktörüyle üretilen nükleer enerjini tümü reaktördeki nükleer yakıtın içinde üretilir ve elektrik üretiminin gerçekleşebilmesi için uygun bir soğutucu ile gaz formuna taşınır. Bilinir ki, ısının elektriğe dönüşündeki verimlilik soğutucunun çıkış sıcaklığına bağlıdır. Dolayısıyla bu reaktörlerde kullanılan nükleer yakıtların reaktör içinde mevcut bulunan çok yüksek derecedeki sıcaklıklara ve radyasyona dayanıklı dirençli olması gerekmektedir. Ancak bu reaktörlerde kullanılan yakıtların seramik malzeme olmasından dolayı bu tip atmosferlere dayanıklıdır, fakat metaller ve eriyik tuzlar da aynı reaktörlerde yakıt olarak kullanılabilir [74].

Seramik malzemeler çok eski çağlardan beri bilinmektedirler. Toprakta yapılan çömlek ve Çin yapımı sofistike çanak çömlekler ilk ürünlerdendir. Genel olarak seramik malzemeler yüksek sıcaklıklarda fiziksel özelliklerinde geniş çaplı bir değişim olmadan kimyasal kararlılık gösterebilen malzemelerdir. Bu tip özellikler seramik malzemeleri nükleer yakıt malzemesi olarak kullanılması için cazibeli kılar. Uranyum, toryum ve plütonyumun oksit, karbür, nitrat ve silisitleri değişik nükleer reaktörlerde nükleer yakıt olarak kullanılabilir.

Nükleer güç reaktörlerinin birçoğu metal bir çubuk içerisine yığılmış peletlerden oluşan yakıtı kullanmaktadır. Doğal olarak veya az zenginleştirilmiş UO_2 peletleri bütün dünyadaki ticari nükleer güç reaktörlerinde kullanılmaktadır ve pelet üretimi ise toz metalürjik proseslerle yürütülmektedir. Bazı termal reaktörlerde ve bazı hızlı reaktörlerde ise MOX (mixed oxide) denilen plütonyum uranyum karışımı yakıtlar kullanılmaktadır. Uranyumun yanında toryum ve plütonyumun kullanılması uzun periyotlarda nükleer yakıt sürdürülebilirliğini sağlayacaktır. Plütonyumun bazı izotopları çok yüksek gama ve nötron dozlarına sahiptir. Toryum reaktöründen gelen ^{233}U izotopu yüksek gama dozu veren ^{232}U izotopunu da sürekli olarak içermektedir. Bu sebeple yakıt üretim faaliyetleri esnasında gerçekleşen bütün operasyon alfa ve gama kalkanlı sıcak hücre (hotcell) içerisinde uzaktan kumanda ile kontrol edilmesi gerekmektedir [74]. Toz esaslı yöntemler çok fazla sayıda mekanik işlem adımı içerdiğinden dolayı uzaktan kumanda ile kontrolü zordur. Üretilen yakıt peletleri, özellikle hızlı reaktörler için olan daha küçük peletler, yüzey hataları ve boyutsal

toleranslar gibi sıkı kalite kontrolünden geçirmek zorundadır. Hızlı reaktörler için üretilmiş bir milyondan daha fazla peleti uzaktan kumanda ile sıkı bir kontrolden geçirmek çok zordur ve defolu ürün çıkmasına ve dataların sağlıklı çıkmamasına sebep olabilir. Çözelti esaslı yakıt üretim faaliyetleri, tozu el ile kumanda etmeyi azaltmaktadır ve bu yöndeki problemlere çözüm sunmaktadır.

Çözelti esaslı fabrikasyon metodunun gelişimi 60'lı yıllara kadar dayanmaktadır. İlk olarak yüksek sıcaklıklı gaz soğutmalı reaktörlerde kullanılması için Th-²³³U oksit esaslı kaplanmış yakıt üretimi gerçekleştirilmiştir. Daha sonradan yakıt malzemesi küresel çekirdeğinin üzerine karbon esaslı bir kaplama yapılmıştır. Daha sonra bu prosesler hızlı reaktör yakıtlarının fabrikasyonu için geliştirilmiştir. Seramik nükleer yakıtlar için sol-gel prosesinin ismi çözelti/çözelti esaslı yöntemler için genelleştirilmiştir. Sol-gel prosesi koloidal çözelti (solüsyon) damlacığının uygun işlemlerle jelleştirilmesine dayanan bir prosestir. Bu jel mikrokürecikleri bazı proseslerden sonra sinterleme ile yüksek yoğunluklu mikroküreciklere dönüşürler ve sphere-pac yakıt tipinde kullanılırlar. Alternatif olarak yumuşak mikrokürecikler haline dönüştürülerek uygun şekilde preslenip ve sinterlenip yüksek yoğunluklu pelet olarak da kullanılabilirler.

Küresel (sphere-pac) yakıtlar uzaktan kumanda edebilme açısından yakıt fabrikasyon proseslerinin daha kolay ve daha yatkın olabilmesi için alternatif bir yakıt türüdür [75]. Sphere-pac yakıtta küresel bir partikül veya mikrokürecik, metal bir kaplamanın içine sıkıştırılmaktadır. Bu sıkıştırma işlemi titreşim ile olmaktadır. Bu yöntem ticari yakıt fabrikasyonunda endüstriyel olarak henüz uygulanmamasına rağmen, son yıllarda, transmutasyon reaktörleri için ideal bir yapıda olduğu düşünüldüğünden bu proses için yeniden bir ilgi duyulmaktadır. Transmutasyon reaktörleri, hem nükleer silahlardan gelen plütonyum stokunun azaltılmasında hem de yüksek seviyeli nükleer atıklardan meydana gelen amerikyum, kuryum ve neptünyum gibi minör aktinitlerin transmutasyonunu hedeflemektedir. Amerikyumun alfa bozunmasından açığa çıkan çok miktardaki helyum gazı göz önünde bulundurulduğunda helyum gazını hapsedebilecek sphere-pac tipi yakıt dizaynı pelet yerine tercih edilebilir. Dahası kuryumun bozunmasından meydana gelen yüksek miktardaki ısı ve yüksek seviyeli gama ve nötron dozları minör aktinit

fabrikasyonunu gerektirmektedir. Çözelti esaslı fabrikasyon metotları ile üretilmiş sphere-pac yakıt dizaynları bu tip yakıtlar için idealdir [76].

Nükleer teknolojide sol-gel prosesinin en önemli kullanım alanları;

- Hızlı reaktörler için plütonyum yakıt fabrikasyonu
- Minör aktinitlerin dönüştürülmesi için gerekli yakıtlar
- Yüksek sıcaklıklı gaz soğutmalı reaktörler için yakıtlar
- Nükleer silahlardan ortaya çıkan plütonyumun elimine edilmesidir [77].

Hem yüksek sıcaklıklı reaktörler için hem de diğer toryum esaslı reaktörler için bir diğer önemli kullanım alanı ise ^{233}U içeren yakıtlarıdır. Toryumun ışınlanmasıyla meydana çıkan ^{233}U izotopu sürekli olarak ^{232}U ile kontamine olmaktadır. Uranyumun bu hafif yan ürünü kısa ömürlüdür ve onunla ilişkili ürünler yüksek oranda γ radyasyonu yaymaktadır. Dolayısıyla ^{233}U içeren yakıtlar uzaktan kumanda ile fabrikasyon gerektirmektedir ve bu da sol-gel prosesine dayalı yaklaşımların kullanılmasıyla olabilmektedir.

3.2. Sol-Gel Prosesinin Genel Akış Şeması

Nükleer yakıt fabrikasyonu için birçok sol-gel prosesi yöntemi mevcuttur. Yakıt malzemesinin solü veya çözeltisi damlacık halinde üretilir ve üretilen bu damlacık jelleşme prosesiyle (fiziksel veya kimyasal) sert bir jel partikülüne dönüştürülür. Oluşan bu jel partikülü yıkanır, kurutulur, kalsine edilir ve yüksek yoğunluklu mikrokürecikler olarak sinterlenir. Bütün proses adımlarında yakıt malzemeleri partiküllere hasar verebilecek geniş çaplı gerilmeler ile sonuçlanabilecek büzülmelere uğrayabilir. Fakat proses parametreleri çatlaktan yoksun partiküller üretebilecek şekilde ayarlanabilir. Sphere-pac yakıt türünde sinterlenmiş mikrokürecikler metal kaplamanın içine mekanik bir vibrasyonla sıkıştırılır [73]. Sol-gel mikrokürecik peletleme (sol-gel microsphere pelletization, SGMP) prosesinde kalsine edilmiş jel partikülleri pelet formunda preslenir ve sinterlenir. Kaplanmış partikül yakıtlarında ise sinterlenmiş mikrokürecikler çekirdek olarak kullanılır.

3.2.1. Dış jelasyon prosesi (external gelation process)

Dış jelasyon prosesi ilk kez İtalya'da geliştirilmiştir ve jel-destekli çöktürme metodu ve SNAM prosesi olarak da bilinir. Bu proses 500 mikrona kadar olan boyutlarda mikrokürecik üreterek kaplanmış partikül yakıtlarında çekirdek olarak kullanılmasını amaçlayan bir prosestir. Bugünlerde bir çok ülkede kaplanmış partikül yakıtlardaki gelişmeler ilgiyle izlenmektedir ve takip edilmektedir. Dış jelasyon prosesinin akış şeması Şekil 3.1'de verilmiştir. Bu proseste suda çözünebilen bir polimer ağır metal nitrat çözeltisine eklenerek, damlacıklar amonyak gazına maruz bırakılır. Polimer eklenmesinin amacı yüzey geriliminin artırılarak partikülün küresel şeklinin sağlanmasıdır [75]. Amonyak gazı ağır metalin çökmesi için damlacığa nüfuz eder ve küreler sertleşir. Amonyak nötralizasyon için damlacığa nüfuz etmesi gerektiğinden ağır metal konsantrasyonu düşük tutulur (0,7 M). Damlacığın küresel formu gaz-sıvı ara yüzünde veya sıvı-sıvı ara yüzünde deformasyona uğrayabilir. Amonyak gazına maruz kalması yüzeyi sertleştirir ve distorsiyonu önler. Uranyum mikroküreciği hazırlamada bu prosesin önemli bir özelliği herhangi bir ön hazırlık ve ön nötralizasyon gerektirmemesidir. Yüzeyi sertleştirilmiş kürecikler daha sonra bütünlüğünü sağlamak için amonyak çözeltisinin içine bırakılır. Prosesin başlıca adımları;

- Sol veya çözelti hazırlanması
- Küre formu ve jelleşme
- Yaşlandırma, yıkama ve dehidrasyon
- Kalsinasyon ve sinterleme

Çözelti hazırlama esnasında eklenen polimer çok iyi verimli sonuçlar vermektedir. Polimer eklenirken dikkat edilmesi gereken ön koşullar:

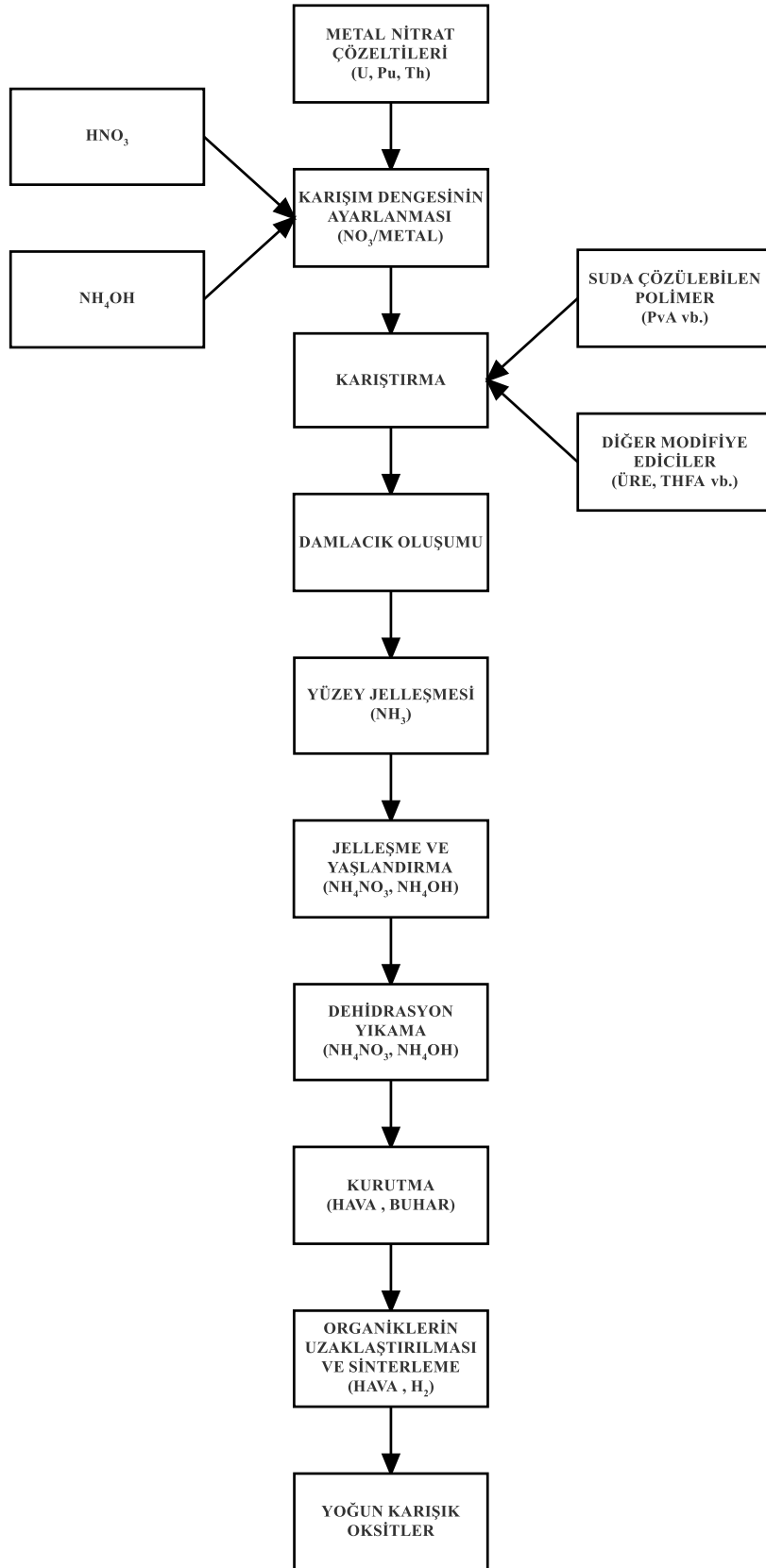
- Suda çözülebilir olmalı ve çözeltinin yüksek iyonik içeriği ile uyumlu olmalı
- Damlacık formunu sağlaması için solüsyonun viskozitesi artırılmalı, fakat aynı zamanda nozuldan geçecek kadar da akışkanlık sağlamalı
- Sıvı yüzeyin etkilerine karşı direnç gösterebilecek jel yapısını çabucak sağlayabilmelidir.

Uranyum çözeltisi hazırlanması bu metotta herhangi bir ön hazırlık gerektirmemektedir. Ancak toryum ve plütonyum nitrat çözeltileri ön hazırlık gerektirmektedir. Methocel polimer olarak ve tetra hedra fulfuril alkol (THFA) ise modifiye edici olarak orijinal SNAM prosesinde kullanılır [78]. Bu prosesin geliştirilmesinde çok çeşitli polimer ve modifiye ediciler kullanılmıştır. Methocel ve THFA en çok kullanılanlarıdır.

Damlacık oluşumunun ikinci adımında damlacık büyüklüğünü kontrol için hava akış oranı ve nozulun çapı kontrol altında tutulur. Hava akışı aynı zamanda nozulun ağzının tıkanmasını, nozulun içinde jelleşmeyi de önler. Amonyak gaz akışı esnasında damlacıkların jelleşmesine imkân verilir.

Yaşlandırma çözeltisi jelleşmenininkiyle aynıdır (%1-30 amonyak) ve yaşlandırma süresi bir gün kadardır. Yıkama, tuzları (amonyum nitrat) uzaklaştırmak için seyreltik amonyak çözeltisi ile yapılır. Aynı zamanda ağır metallerin yeniden peptitleşmesini önlemek içindir. Kurutma için değişik metotlar kullanılır (azeotropik distilasyon, CCl₄ karbon tetraklorid ile yıkama, havada kurutma, vakumla kurutma vb). Kalsinasyon, artan organik bileşiklerin uzaklaştırılması ve metallerin oksit formuna dönüşmesi için hava atmosferinde 450-550 °C'de yapılır, sinterleme ise 1200-2200 °C arasında yapılabilir.

Bu proses İtalya'da keşfedilmesine rağmen Almanya ve UK gibi hızlı reaktörler için kaplanmış yakıt üretimi gerçekleştirmek için faaliyetlerde bulunan birçok ülkede de kullanılmaktadır. Bu proses KFA tarafından toryum esaslı küreler üretebilmek için modifiye edilmiştir, Modifikasyonun amacı organik bileşiklerin eklenmesinin elimine edilmesidir. Modifiye edilmiş prosedürde SNAM prosesine göre daha ağır metal konsantrasyonunda hazırlama yapılmıştır (2 mol/L). Hazırlanan sollar yüksek viskoziteye sahip olacağından herhangi bir organik ilavesine ihtiyaç olmamaktadır. Bir sonraki adımda ise çözeltinin damlacığa dispersiyonu esnasında sabit bir frekansla nozula yatay bir vibrasyonla sağlanmalıdır [79].



Şekil 3.1. Sol-gel dış jelasyon prosesi [74]

KFA prosesinin akış şemasında ise jelleşme için iki varyasyon vardır. İlkinde damlacıklar amonyak içeren hekzon veya metil izobutil ketonun içine disperse edilir ki çökelme burada gerçekleşmektedir. Diğerinde ise damlacıklar amonyak gazına maruz bırakılırlar. Orijinal SNAM prosesinde (Th,U)O₂ mikrokürecikleri üretebilmek için toryum ve uranyum çözeltileri ayrı ayrı hazırlanıp damlacık formundan önce karıştırılır. Ancak KFA prosesinde toryum ve uranyum birlikte işlem görür. KFA prosesi 600 mikrondan daha küçük sinterlenmiş partiküller elde etmek için dizayn edilmiş bir prostestir. Daha geniş çaplı taneler için bu proses kullanılırsa kürecikten ziyade elips şeklinde ürünler ortaya çıkar. Organik bir polimer olan polivinil alkol (PVA) bu problemi gidermek için çözeltiye eklenir. Fakat bu da jelin yumuşamasına neden olur. KFA prosesinde yıkama işleminde ve tuzlar ile PVA'nın giderilmesi için izopropil alkol kullanılır. Prosesin diğer kalan kısımları ise aynıdır.

İngiltere tarafından geliştirilen bir prosesin akış şemasında başlangıç çözeltisi olarak uranil floride dönüştürülmüş uranyum hekza florit kullanıldığı belirtilmektedir. Onlar tarafından kullanılan bir başka modifikasyon ise köpük tekniğidir [80]. Burada amonyak gazı amonyum hidroksit solüsyonu içerisinde köpürtülür ve jelleşme olması sağlanır. Köpük, damlacıklar üzerindeki etkinin azalmasını sağlar ve aynı zamanda kürecikleri sertleştirir. Son dönemlerde bu proses Japonya'da geniş çaplı (800-900 mikron) ve ufak çaplı (50-70 mikron) mikrokürecik üretiminde kullanılmıştır. Bu proses hızlı üretken reaktörlerde kullanılmak için (U,Pu)O₂ mikrokürecikleri üretilmek için üzerinde düşünülmektedir.

Çin'de bulunan Nükleer Enerji Teknoloji Enstitüsünde iç jelasyon yöntemine birkaç özellik eklenerek dış jelasyon prosesi ile birleştirilip bir proses geliştirilmiştir. Bu prosesin HTR-10'un kaplanmış yakıt partikülleri için UO₂ çekirdeklerinin hazırlanmasında kullanılması amaçlanmıştır. Buna toplam jelasyon prosesi denilmektedir.

Dış jelasyon prosesinin bütün versiyonlarında amonyum nitrat ve organikler içeren çok fazla miktarda sıvı atık ortaya çıkmaktadır. Bu yüzden bu atıkların bertaraf edilmesi için uygun atık yönetimi adımları uygulanmalıdır [54].

3.2.2. İç jelasyon prosesi (internal gelation process)

İç jelasyon prosesi (IGP) 1967 yılında Hollanda'da KEMA laboratuvarlarında UO_2 mikroküreciği üretimi için Kanij, Bruggens ve arkadaşları tarafından geliştirilmiştir [76]. İç jelasyon prosesinin şematik adımları ise Şekil 3.2'de verilmiştir. Bu proses heksametilentetramin (Hexamethylenetetramine, HMTA) gibi suda çözülebilen kimyasal kullanır. Damlacıklar ısıtma sağlanarak sıcak bir sıvının içine karışmayacak şekilde damlatılır. Amonyak donörün ve ağır metal iyonlarının aynı çözelti içerisinde çözünmesiyle hızlı ve üniform bir şekilde jelleşme gerçekleşir. Jelleşme oranı kimyasalların ve çözeltinin konsantrasyona bağlıdır. Bu prosesin başlıca adımları şunlardır:

- Çözelti hazırlanması
- Küre formu oluşturma ve jelasyon
- Yıkama ve kurutma
- Kalsinasyon ve sinterleme

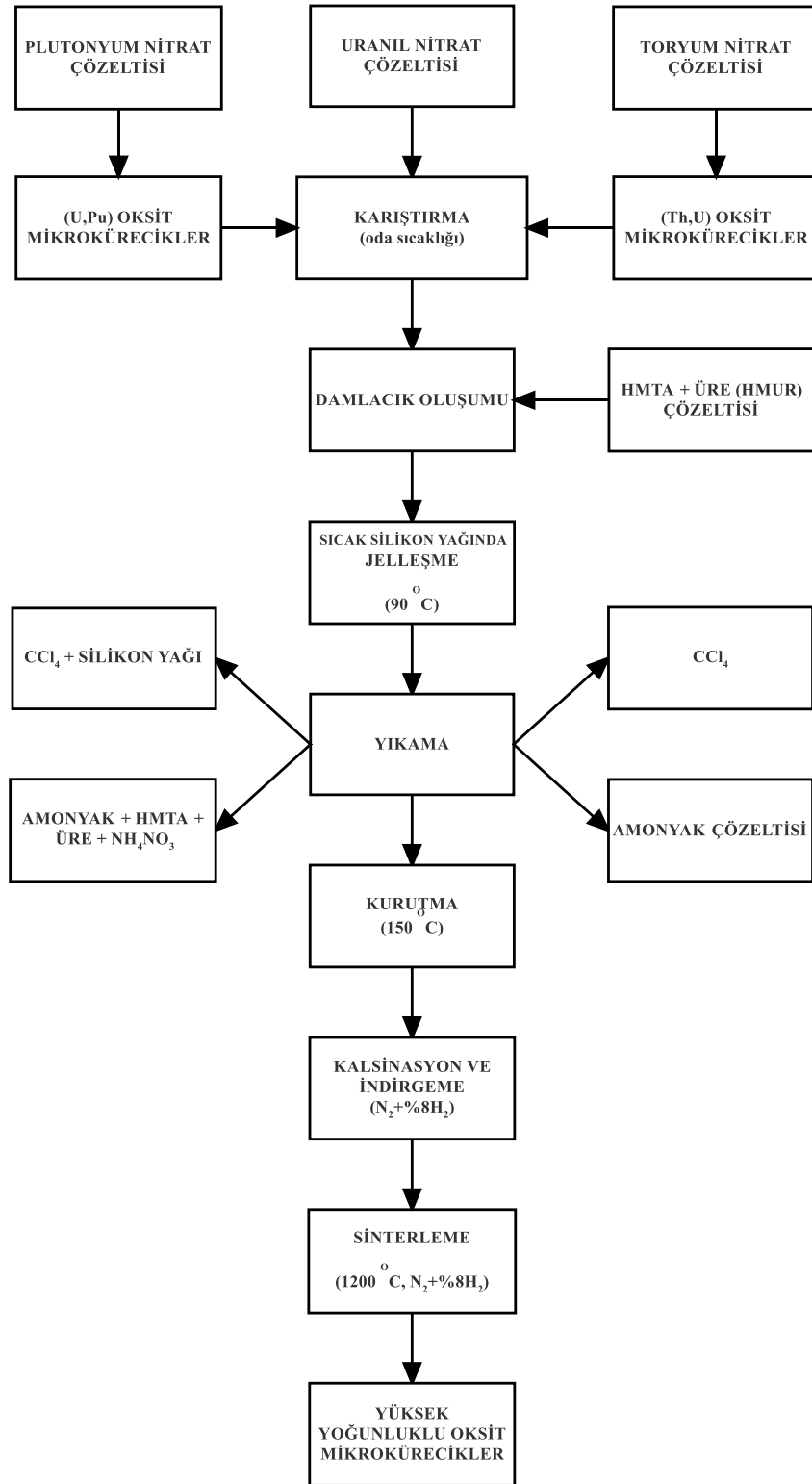
Uranyum mikroküreciklerinin oluşturulmasında ADUN (Acid Deficient Uranyl Nitrate) çözeltisi 1,5-1,7 mol oranına sahip NO_3/UO_2 ile ilk adım olarak hazırlanır. Bu oran ADU çözeltisinde 2'dir ve amonyak ile 1,5-1,7 aralığına getirilir. Bu işleme ön nötralizasyon denir. Bu, suda yüksek çözünebilirlik sağlar. Aşağıdaki yolların takip edilmesiyle yapılır:

- Stokiyometrik miktarda nitrik aside (HNO_3) UO_3 eklenmesi veya uranil nitratın stokiyometrik çözeltisi
- Stokiyometrik miktarda nitrik aside (HNO_3) U_3O_8 eklenmesi
- Stokiyometrik miktarda nitrik aside (HNO_3) UO_2 eklenmesi
- Uranil nitrat çözeltisinden asidin amin ekstraksiyonu

UO_2 ve U_3O_8 kullanılarak yapılan ADUN çözeltisinin içindeki NO_2 den kurtulmak için havalandırılmaya ihtiyaç vardır. 3 M HMTA ve üre (1:1,4) karışım çözeltisiyle 3 M ADUN çözeltisi hazırlanır. Bu asidik şartlar altında amonyak ve formaldehite dönüşen HMTA'nın hidrolizi prematüre bir jelleşmeye yol açar [77]. Bu reaksiyonu

korumak için uranil iyonlarına üre eklenir. HMTA'nın dekompozisyon oranını azaltmak ve uranil-üre ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{-CH}_4\text{N}_2\text{O}$) bileşiğinin stabilitesini arttırmak için solüsyon 0 °C civarına soğutulur. Böylece çözelti hazırlanması soğuk uranil nitrat çözeltisi ile soğuk HMTA/üre çözeltisinin karışımıyla gerçekleşir. Jelleşme çok geniş aralıkta çözelti kompozisyonunda (uranyum molaritesi 0,7-1,6) ve çok geniş molar oranlarda (HMUR/Uranyum 0,75-2,3) gerçekleşebilir. Ancak iyi kalitede, çatlaksız ve sert mikrokürecikler üretebilmek için bütün adımlarda iyi bir davranış sergileyecek sert ve opak jel oluşumu için işlem parametreleri daralmaktadır. Uranyum molaritesinin 1 ve 1,4 M aralığında alınmasının amacı 500-700 mikron boyutlarında iyi kalitede UO_2 mikrokürecikleri elde etmeyi sağlamaktadır ve uranyum mikroküreciklerinin kg başına harcanan HMTA ve üre miktarı gereksinimlerini azaltmaktadır [82]. Daha düşük molaritede uranyum (0,7-0,9 M) kullanılması durumunda ise 70-100 mikron boyutlu mikrokürecikler elde edilir.

Jelleşme için katılan organik sıvılar küre şeklinin oluşması için yüksek yoğunluklu olmalıdır. Trikloretillen yaklaşık 90 °C kaynama noktası sıcaklığına sahip olmasına rağmen, 65-80 °C arasında sıcaklıklarda organik katkı olarak kullanılır. Trikloretilden başka perkloretilen (kaynama noktası: 111 °C) ve silikon yağı da kullanılabilir [83]. Mikroküreciklerin kaymasını engellediğinden dolayı 1,55 M ve daha üstü uranyum konsantrasyonu gerektirdiğinden perkloretilenin yoğunluğu bir dezavantajdır. Ayrıca klorlanmış hidrokarbon içinde özellikle perkloretilende HMTA ve ürenin çözünürlüğü çok yüksektir. Dolayısıyla perkloretilen kullanışlı değildir. İsviçre ve Hindistan gibi birçok ülkede silikon yağı kullanılmaktadır. Silikon yağının akışkan oluşu damlacıkların küresel şekilde olmasına yardımcı olur ve küçük bile olsa tek bir temas sağlar.



Şekil 3.2. Sol-gel iç jelasyon prosesi [74]

3.2.3.Sol-gel mikrokürecik peletleme yöntemi (SGMP)

Daha önce de belirtildiği gibi termal ve hızlı reaktör yakıtları için pelet şekillendirme fabrikasyonu teknikleri açısından çok büyük ölçüde tecrübeli olunmasına rağmen ^{233}U ve ^{239}Pu içeren peletlerin fabrikasyonundaki zorluklara vurgu yapılmıştır. Bu yakıt malzemelerinin tozlarına temasın elimine edilmesi yakıt fabrikasyon teknikleri açısından çok büyük bir avantaj sağlamaktadır. Bu yüzden Oak Ridge National Laboratory (ORNL, ABD) ve KFA (Almanya) sol-gel prosesi kullanılarak pelet olarak sıkıştırılabilen yumuşak mikrokürecikler üretilmiştir. Bu proses besleme malzemesi olarak sol-gel mikroküreciklerinin kullanıldığı hatasız yakıt peleti meydana getirme amacıyla dış jelasyon prosesi (EGP) kullanılarak Zimmer tarafından (KFA, Julich) geliştirilmiştir ve SGMP (sol-gel microsphere pelletization) olarak adlandırılmıştır [84].

Genel olarak yakıt malzemelerinin sol-gel mikrokürecikleri, kurutma işleminden sonra sert bir yapıya sahiptirler ve SGMP yöntemiyle pelet yapmak için presleme esnasında tamamen sıkıştırılmaz ve ezilmez. Sinterlenmiş SGMP peletlerinin mikroyapısı besleme malzemesinin mikroküreciklerinin küresel yapısından dolayı toz metalürjik yöntemlerle üretilmiş peletlerin mikroyapısından farklıdır. Mikrokürecikler peletleme sonrası bir böğürtlenin dış görüntüsü şeklinde görüntü verir. Buna (blackberry structure) yapısı denmektedir. Aynı zamanda sinterlenmiş peletler oldukça düşük bir yoğunluğa sahiptirler. Mikroküreciklerin yumuşak olmasından kaynaklı peletlerin yassı uçlarında laminasyonlar mevcuttur. Mathews ve Hart adlı kişiler dış jelasyonla hazırlanmış UO_2 ve ThO_2 , ve $(\text{U,Th})\text{O}_2$ mikroküreciklerinin işlem esnasında çatladığını ve buruştuklarını gözlemlemiştir. Bu problemi çözmek için birçok girişimde bulunmuşlardır [79]. Proses parametreleri kontrol edilerek istenilen nitelikte pelet üretimi gerçekleştirilebilir.

KFA'da geliştirilen bir diğer metotta ise dış jelleşme esnasında jel içerisinde gözenek formu gibi bir form elde etmek için karbon toz eklenmiştir. Bu karbon içeren jel mikrokürecikler preslenebilir ve yumuşak mikrokürecikler haline dönüşebilmek ve karbonu yok etmek için oksidize olurlar. Bu prosesle üretilen peletler hatasızdır ve (blackberry structure) yapısında değildirler. Bu prosesin kullanım alanı değişik oksit

peletleri üretmek için genişletilmiştir. Bu prosesin iki önemli dezavantajı bulunmaktadır. İlki, besleme çözeltisine eklenen karbonun damla oluşumu esnasında kontrol edilmesi çok zordur. Çünkü nozulda tıkanmalara sebep olmaktadır. İkincisi ise gaz bileşiminin itina ile kontrolü için 48 saatten fazla bir süreyle ısı işlem gerektirmektedir [85, 86].

3.2.4. Transmutasyon yakıtları için sol-gel prosesi

Nükleer atıklarda bulunan ve çok uzun yarılanma süresine sahip olan Neptünyum, Amerikyum, ve Kuriyum gibi minör aktinitler transmutasyon ile daha kısa yarılanma süreli izotoplara dönüştürülür. Bu elementler hızlı reaktörlerde MOX (mixed oxide) yakıt olarak kullanılarak elimine edilebilir. Fakat ışınlanma esnasında uranyum ve plütonyumun tekrar nötron absorblamasıyla yeni minör aktinitler üretilmektedir. Diğer bir yöntem ise inert matriks yakıtlardır. İnert matriks yakıtlar daha fazla avantaj sunmaktadır. Fabrikasyon proseslerini kolaylaştırmaktadır. Sol-gel prosesinin uzaktan kumanda yöntemine uygunluğu, minör aktinitlerin dönüşümü için gerekli yakıt türüne aday olduğunu göstermektedir [87].

3.2.5. Damlacık oluşumu

Sol damlacıkları; basınçlama, gravitasyon, santrifüj, arayüzey basıncı, elektrostatik itme yüzey gerilimi, viskozite kuvvetlerinden biri veya bir kaçını kullanarak elde edilebilir. Damlacık oluşturulan kapiler akış sistemlerinde çözeltinin geçişi uniform hızda olmalıdır. Damlacık çapı nozul çapının yaklaşık iki katı kadardır. Akış hızları nozul çapına bağlı olarak değişir. Örneğin 1000 mikron çapındaki nozul için akış hızı 0.3 ml/dakika iken 3000 mikronluk nozul çapı için bu değer 10 ml/dakikadır. Lokal etkileşimleri önlemenin en iyi yolu bir dış vibratör kullanarak nozul kısmını titreştirmektir. Vibrasyon üniform kürecik eldesinde çok önemli bir parametredir. Genlik ve frekans değerleri optimum olacak şekilde deneysel çalışmalarla nozul çapına bağlı olarak belirlenir.

Damlacığın jelleşme ortamına yüksekten düşmesiyle parçalanması ve bu damlacıkların birleşmesi olayları meydana gelebilir. Çok yüksekten damlacık

düşürmek doğru değildir. 10 cm veya daha az yükseklik çalışmaları için yeterlidir. Jelleşme ortamını görevi ısı kaynağı ve süspansiyon görevi yapmasıdır. Sol-gel çalışmalarında kürecik elde edilmesi amaçlanıyorsa, en önemli adımlardan birisi damlacık oluşturulmasıdır. Jelleştirilecek çözelti; ölçüleri genellikle 1 mm'nin altında olan bir nozulun memesinden jelleşme ortamına damlacık halinde düşürülür. Damlacık oluşumu basınç, nozul çapı, çözeltinin viskozitesi, sıcaklık, vibrasyon frekansı gibi birçok fiziksel parametreye bağlıdır [73].

3.3. Sol-Gel Metodunun Avantajları ve Dezavantajları

60'lı yılların başlarında Th-²³³U yakıtlarının üretimi için çözelti esaslı yakıt fabrikasyonu geliştirme girişimlerinde bulunulmuştur. Çözelti esaslı yöntemler ilk olarak yüksek sıcaklıklı gaz soğutmalı reaktörlerde kullanılması amacıyla küresel kaplanmış partikül yakıtlarında incelenmiştir. Kaplanmış yakıt mikrokürecikleri sol-gel adı verilen prosesle çözelti esaslı olarak üretilmiştir. Sol-gel prosesi standart toz üretim yöntemlerine göre aşağıdaki avantajlara sahiptir [88].

- Sol-gel prosesi sadece çözelti esaslı proses olduğundan toz ile temas etme ortadan kaldırılmıştır.
- Kullanılmış yakıtların yeniden işlenmesi sonucu ortaya çıkan form, uranyum ve plütonyumun nitrat çözeltileridir ve bu sol-gel prosesinin başlangıç çözeltileri ile aynıdır. Bu yeniden işleme faaliyetlerinin ve yeniden işlenmiş uranyum-plütonyum dioksit tozlarının taşınmasını elimine etme faaliyetlerinin sol-gel yakıt fabrikasyonu ile birlikte ele alınmasını sağlamaktadır. Sol-gel prosesi ile hem yeniden işleme hem de yakıt fabrikasyonu aynı çatı altında toplanmış olacaktır ve yayılma riskine karşı önemli bir direnç sağlayacaktır.
- SGMP prosesi ise toz ile teması ortadan kaldırmakla beraber pelet formunda yakıt üretimi sağlamakta ve arzu edilen ışınlanma davranışlarını garanti etmektedir.
- Akışkan veya akışkana yakın mikrokürecikler ile işlem yapmayı kapsar. Akışkanların transferi toza nazaran daha kolaydır, özellikle uzaktan kumanda

edilmeye kolaylık sağlar. Bu yüzden sol-gel prosesi uzaktan kumanda edilmeye elverişli bir prosesdir.

- Oksalat çöktürme ve aktinit oksitlere dönüştürme gibi birçok proses adımını azaltarak besleme olarak yeniden işleme prosesinden gelen nitrat solüsyonlarını kullanır.

Bunların yanında sol-gel prosesinin bazı dezavantajları da bulunmaktadır. Sol-gel prosesi çok miktarda düşük seviyeli atık üretmektedir. Ancak sol-gel prosesi için henüz yeterli miktarda yakıt fabrikasyon çalışmaları yapılmamıştır. Işınlama deneyleri ve tecrübeleri yeterli değildir ve daha iyi kavranması için daha fazla deneye ihtiyaç vardır. Fakat bütün bu zorluklarla beraber Pu ve Th-²³³U yakıtları için tek alternatif yol olarak sol-gel yakıt fabrikasyonu gözükmektedir.

Ayrıca pelet tipindeki yakıtlar için ışınlama tecrübesi son derece iyi seviyededir. Ancak sphere-pac türündeki ileri seviye yakıtlar için henüz ışınlama tecrübesi daha gelişmemiştir.

BÖLÜM 4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

4.1. Başlangıç Malzemeleri ve Özellikleri

Deneyde kullanılan malzemelerin bir kısmı radyoaktif özellikte olduğundan dolayı ilgili yönetmelik gereği akredite olmuş laboratuvar ve ortamlarda bu deneyler ve analizler gerçekleştirilebilmektedir. Ayrıca kullanılan sarf malzemeler radyoaktif özellik taşıdığından elde edinilmesi de bazı yönetmeliklere ve izinlere tabidir. Bu sebeple yapılan tüm deneyler, bu yetkilere sahip olan, Türkiye Atom Enerjisi Kurumu'na bağlı İstanbul Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'nde gerçekleştirilmiştir.

Aşağıda deneyde ve karakterizasyon işlemlerinde kullanılan malzemelerin ve cihazların listesi verilmiştir. Kullanılan sarf malzemelerin temin edildiği yerler ve bazı özellikleri belirtilmiştir.

Toryum Nitrat, $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, Merck (analitik saflıkta)

Seryum Nitrat, $\text{CeN}_4\text{O}_{12}$, Merck (analitik saflıkta)

Alüminyum Nitrat, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, Merck (analitik saflıkta)

Magnezyum Nitrat, $(\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O})$, Merck (analitik saflıkta)

Amonyak, NH_3 , Merck (analitik saflıkta, %25)

Polivinil alkol (PVA), Merck

Tetra hedra fulfuril alkol (THFA), Alfa Aesar (%98)

Iso propil alkol ($\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$), Merck (%99)

Distile su

NH_3 , N_2 , Ar gazları

m-ksilen, $\text{C}_6\text{H}_4(\text{CH}_3)_2$, Merck (analitik saflıkta)

Terazi. (0,0001g hassasiyet)

Sinter fırını, (NABERTHERM P310, ± 3 °C)

Dilatometre, (NETZSCH DIL 402 C)
TG/DTA cihazı. (NETZSCH)
SEM cihazı, (SEM-JEOL JSM 639OLV)
XRD cihazı, (XRD-Bruker AXS D8 Advance)
Manuel pres (10 ton)
Kurutma fırını (etüv).

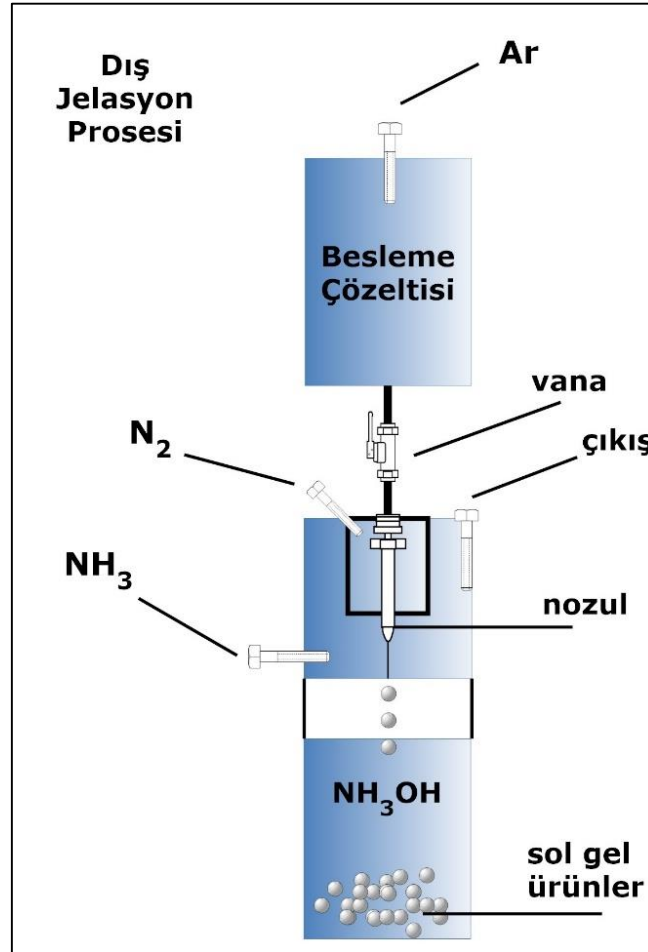
4.2. Genel Proses

Bu çalışmada öncelikle sol-gel prosesiyle istenilen özelliklerde toz üretiminin gerçekleştirilebilmesi için gerekli deney düzeneği hazırlanmıştır. Deneyde kullanılacak akış şeması Şekil 4.1’de gösterilmiştir.

Nükleer yakıt üretimi gerçekleştirebilmek için ise nihai olarak elde edilecek oksit toz oranları (Al_2O_3 %10 ve MgO %5) sabit olmak üzere ThO_2 sırasıyla %80, %70, %60 ve CeO_2 sırasıyla %5, %15, %25 oranlarında olacak şekilde başlangıç nitrat çözeltileri hazırlanmıştır.

Hazırlanan başlangıç ya da besleme çözeltisi sol-gel prosesi deney düzeneğinden geçirildikten sonra elde edilen ürünler bir dizi işlemlerden geçirilerek oksit tozlar elde edilmiştir. Daha sonra elde edilen bu oksit tozlar ile yakıt peletleri hazırlanıp değişik sıcaklıklarda sinterlenmiştir. Sinterleme işlemlerinden sonra ise gerekli karakterizasyon çalışmaları (yoğunluk analizleri, sinterleme davranışları, termal analizler, görüntü ve element analizleri) X-ışınları difraktometresi (XRD), gravimetrik ve diferansiyel termal analiz (TG/DTA), taramalı elektron mikroskop (SEM), enerji dağılımlı X-ışınları analizi (EDS) cihazları ile gerçekleştirilmiştir.

besleme tankından basınçla aşağıya doğru nozuldan süzülmekte olan damlacık önce azot gazı perdesi ile temas eder ve ön sertleşme gerçekleşir. Daha sonra ortamda bulunan amonyak gazı ile temas edip üçüncü bölüm olan amonyak çözeltisinin içine düşerek jelleşme sağlanır. İkinci bölümde aynı zamanda mevcut gazların ortamdan uzaklaştırılması için bir gaz çıkış bölümü de bulunmaktadır. Deney düzeneğinin resmi ise Şekil 4.3’de gösterilmiştir.



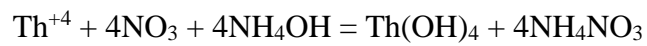
Şekil 4.2. Deney düzeneğinin şematik görünümü



Şekil 4.3. Deney düzeneği

4.4. Başlangıç Çözeltilerinin Hazırlanması

Her bir çözeltinin başlangıç metal konsantrasyonu 2M olacak şekilde oda sıcaklığında distile su ile metal nitrat çözeltileri olarak hazırlanmıştır. Toryum nitrat çözeltisi hazırlanırken NH_3/Th oranı 4'ten 3'e düşürülerek kısmi çökmeleri engellemek amacıyla nötralizasyon yapılmıştır. Nötralizasyon çözeltinin pH değeri 3,2-3,5 civarında olacak şekilde gerçekleştirilmiştir. Başlangıç çözeltisinde bulunan diğer materyaller için nötralizasyona ihtiyaç duyulmamıştır.



Çözeltilerin nihai metal nitrat çözelti konsantrasyonu yaklaşık 1 M olacak şekilde karışım hazırlanmıştır. Karışıma viskozitenin ayarlanması için %20 oranında polivinil alkol (PVA) ilavesi yapılmıştır. Buna ilaveten modifiye edici olarak ise tetra hedra fulfural alkol (THFA) hacimce %30 oranında katılmıştır. Geri kalan %50'lik çözelti ise toplam metal nitrat çözeltisinden oluşmaktadır. Jelleşmenin gerçekleşmesinde ve oluşan jellerin biriktirilmesinde gerekli ortamın hazırlanması için %50 derişik oranda amonyak çözeltisi de (NH_4OH) hazırlanmıştır.

Polivinil alkol (PVA) çözelti viskozitesini arttırmak için önemli bir yardımcı malzemedir. Aynı zamanda PVA presleme esnasında parçalanmayı daha kolay hale getirmek için çekirdeklerin mekanik dayanımının azaltılmasında da fayda sağlamaktadır. Oluşabilecek karbon siyahının aglomerasyonundan korumak için besleme çözeltisine tetrahidrofulfuralalkol (THFA) eklenir [89].

Seryum dioksit (CeO_2), plütonyum dioksitin (PuO_2) veya +4 değerlikli diğer malzemelerin yerine vekil (simule) malzeme olarak kullanılabilir [85, 86]. CeO_2 ve PuO_2 özellikle oktahedral ve kübik koordinasyonda, iyonik boyutlarda ve ergime noktasında benzer fiziko-kimyasal özelliklere sahiptir. Kristalin düzeneklerdeki çözünme davranışları genel olarak tutarlıdır ve temel sinterleme şartlarındaki esas büzülme oranları ile aynıdır. Bu nedenle çok yüksek radyoaktiviteye sahip olan PuO_2 yerine CeO_2 'nin kullanılmasıyla plütonyum kimyasal olarak tam manasıyla simule edilmiş olur [92, 93].

4.5. Damlacık Oluşumu ve Jelleşme

Sol-gel düzeneğinin önemli kısımlarından biri olan ve besleme çözeltisinden damlacık oluşturmak için kullanılan nozul sistemi paslanmaz çelikten ve iğnesinin delik çapı yaklaşık 0,5 mm olacak şekilde üretilmiştir. Damlacık oluşumu jelleşme öncesi gerçekleşmesi gereken bir safhadır. Öncelikle besleme tankına hazırlanan çözelti konur ve gerekli basınç verilerek nozuldaki akış sağlanır. Nozuldaki besleme çözeltisi damlacık halinde iken ilk önce azot gazı, daha sonra amonyak gazı ortamından geçer ve ön sertleşmeye uğrar. Amonyak gazı ağır metal nitrat çözeltisinin çökmesi için damlacığa nüfuz eder ve damlacık sertleşir. Damlacığın

şekli gaz-sıvı ara yüzünde veya sıvı-sıvı ara yüzünde deformasyona uğrayabilir. Amonyak gazına maruz kalması yüzeyi sertleştirir ve deformasyonu önlemede yardımcı olur [87]. Yüzeyi sertleştirilmiş damlacıklar daha sonra bütünlüğünü sağlamak için %50 derişik amonyak çözeltilsinin içine bırakılır ve biriktirilir.

4.6. Yaşlandırma, Yıkama ve Kurutma

Elde edilen jellerin kurutma esnasında çatlamasını ve dağılmasını engellemek amacıyla jeller yaşlandırma adı verilen bir işlemde geçirilir. Bu safhada jeller biriktiği amonyak çözeltilsinde 24 saat süreyle bekletilir. Oluşan jeller çöktürme reaksiyonundan dolayı amonyum nitrat (NH_4NO_3) içerirler. Amonyum nitratın temizlenmesi gerekmektedir. Bu nedenle yaşlandırma sonrası jeller amonyak çözeltilsinden süzülerek başka bir kaba alınır. Bu kaptaki yıkama işlemi için izopropil alkol kullanılarak amonyum nitrat uzaklaştırılmaya çalışılır [74]. Yıkama işlemi aynı zamanda besleme çözeltilsinin hazırlanırken viskozite ayarlama amacıyla eklenen polivinil alkolün de uzaklaşmasını sağlar.

Yıkanan jellerin kurutulma işlemi ise 50 °C'de ve oldukça yavaş bir ısıtma rejimiyle gerçekleştirilir. Bu işlem esnasında ürünler mümkün olduğu kadar geniş alana yayılarak tek tabakada kurutmanın gerçekleşmesi sağlanır.

4.7. Isıl İşlem ve Kalsinasyon

Etüvde kurutulan tozlar daha sonra sırasıyla 100, 150, 350 ve 500 °C'de ısıl işleme tabi tutulmuştur. Her bir sıcaklıktan sonra elde edilen tozun görünümü aşağıdaki Şekil 4.4'de görülmektedir. Şekil 4.4 c ve d resimlerinde gözükmekte olan tozların siyahlaşmasının sebebi bu sıcaklıklarda ortamdan uzaklaşan polivinil alkol ve karbon içeren benzeri bileşiklerin ortamdan düşük sıcaklıklarda uzaklaşmaması ve serbest karbon açığa çıkmasıdır [79]. Daha sonra 1000 °C sıcaklıkta organik bileşiklerin tozdan uzaklaştırılması ve metallerin oksit formuna dönüştürülmesi için kalsinasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Kalsinasyon işleminden sonra elde edilen toz peletleme ve sinterleme çalışmaları için hazır hale gelmiştir.



Şekil 4.4. Sol-gel metodu ile elde edilen jelin a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C'de işlem görmüş toz halinin makro görüntüleri

4.8. Peletleme ve Sinterleme

Kalsinasyon sonucu elde edilen oksit tozlar 6 mm çapında karbür esaslı kalıpta ve manuel pres kullanılarak tek yönlü sıkıştırma tekniği ile 500 MPa basınçla pelet haline getirilmiştir. Peletleme esnasında her bir pelet için yaklaşık olarak 0,5 gr toz kullanılmıştır. Kalıpta sıkışmayı önlemek amacıyla cidar yağlama için stearik asit çözeltisi kullanılmıştır [94]. Hazırlanan peletlerin her bir aşamasında geometrik yoğunlukları ölçülmüştür.

Literatürdeki yapılan çalışmalara göz attığımızda toryum esaslı tozların preslenmesi için çok değişik basınç değerlerinin kullanıldığı gözlemlenmektedir [95, 96, 97]. Takahashi ve arkadaşlarının yapmış olduğu çalışmada peletlerin preslenmesi için ideal basınç değerinin belirlenmesinde toryum esaslı hammaddenin nem içeriğine göre bir inceleme yapılmıştır. Buna göre %10 ve üzeri nem içeriğinde 300 MPa basınç yeterli görülmüştür. %10'dan daha az nem içeriğinde ise 300 MPa'dan daha düşük basınç değerlerinde preslemenin uygun olacağını tespit etmişlerdir [98].

Sinterleme işlemleri ise hava atmosferinde 1200, 1300, 1400, 1500, 1600 ve 1700 °C sıcaklıklarda 4 saat süreyle ve 5 °C/dak ısıtma hızıyla gerçekleştirilmiştir. Bu işlem NABERTHERM P310 (± 3 °C) marka ve modelinde fırında yapılmıştır. Sinterlenmiş peletlerin resimleri Şekil 4.5'de gösterilmiştir.

Peletlerin sinterleme davranışları dilatometrede (NETZSCH DIL 402 C) incelenmiştir. Burada sinterleme işlemleri 1500 °C'de 4 saat süre ile argon atmosferinde gerçekleşmiştir. Yine ısıtma hızı 5 °C/dak olarak belirlenmiştir. İnceleme esnasında referans materyal olarak aynı yöntemle üretilen ThO₂ kullanılmıştır. 1500 °C'ye kadar ısıtılan peletlerin büzülme eğrileri ve termal davranışları incelenmiştir.



Şekil 4.5. Sinterlenmiş IMF ve ThO₂ peletlerinin görüntüsü

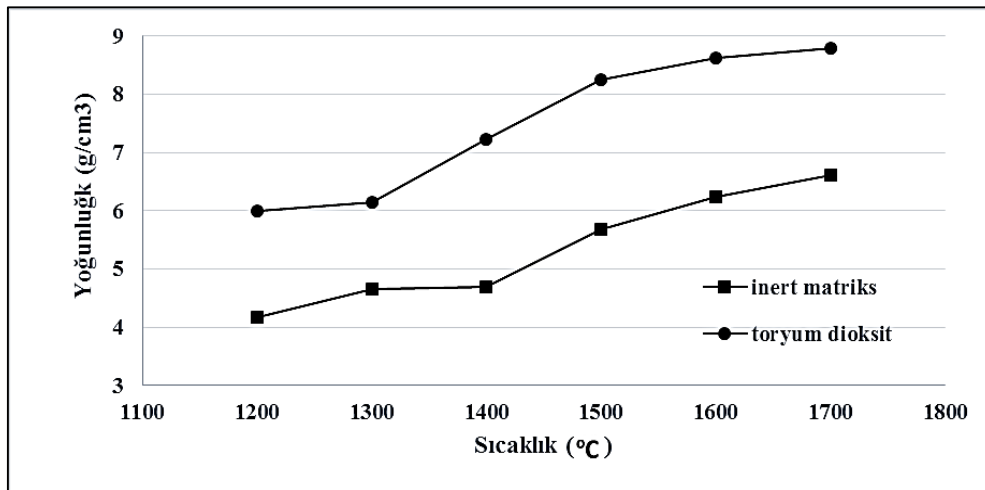
Sol-gel prosesi ile elde edilen ürünlerin termal bozunmaları hava atmosferinde termogravimetrik yöntemle (NETZSCH STA 449C) TG/DTA cihazında gerçekleştirilmiştir. Saf ThO₂ ve IMF jelleri 5 °C/dak ısıtma hızıyla 1000 °C'ye kadar ısıtılmışlardır. Elde edilen verilere göre jelin ve dolayısıyla tozun termal davranışı incelenmiştir.

4.9. Karakterizasyon Çalışmaları

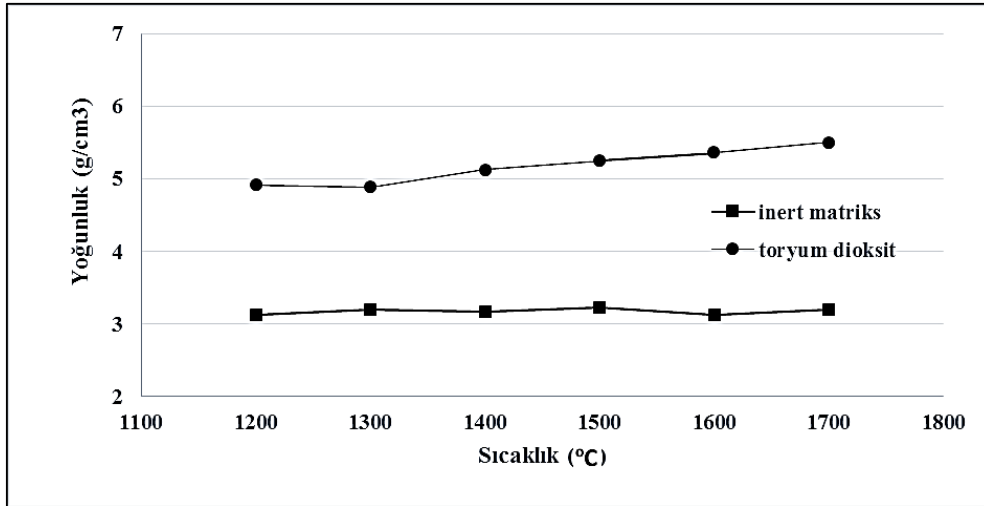
4.9.1. Yoğunluk ve porozite değerlerinin incelenmesi

Belirtilen sıcaklıklarda sinterlenen peletler daha sonra ilk olarak çap, yükseklik ve ağırlık değerleri ölçülerek geometrik yoğunluk hesaplamaları yapılmıştır. Arşimet yöntemiyle bağıl yoğunluk ölçümleri yapılarak peletlerdeki gözeneklilik miktarı da hesaplanmıştır. Arşimet (m-ksilen daldırma) yöntemi ile yoğunluk ölçme işlemleri m-ksilen kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

Şekil 4.6 de ve Şekil 4.7’de belirtilen sıcaklıklarda sinterlenen peletlerin geometrik ve m-ksilen daldırma metotlarıyla elde edilmiş olan yoğunluk değerleri verilmiştir. Bu hesaplamalar aynı yöntemle üretilen katışıksız ThO_2 peletleri ile karşılaştırılmıştır. IMF peletlerinin yoğunluk değerleri daldırma yöntemine göre 4,18 ile 6,61 g/cm^3 aralığında, geometrik yöntemle göre ise 3,13 ile 3,20 g/cm^3 aralığında değişmektedir. Her iki yönteme göre de katışıksız ThO_2 peletlerinin yoğunluğunun IMF peletlerine göre daha yüksek yoğunluklu peletler olduğu gözlemlenmektedir. Bu da katışık malzemelerin yoğunluklarının düşük olmasından kaynaklanmaktadır.

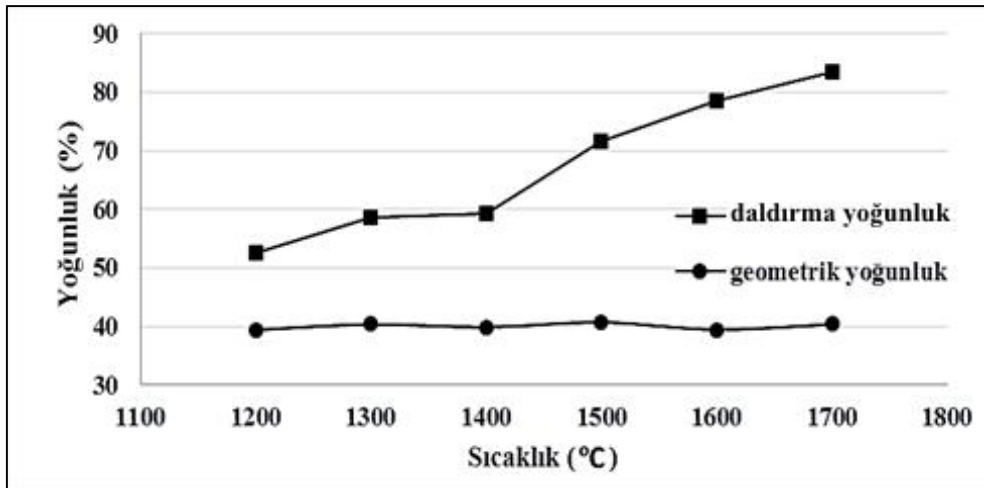


Şekil 4.6. ThO_2 ve %5 CeO_2 içeren IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak daldırma yoğunluklarının değişimi



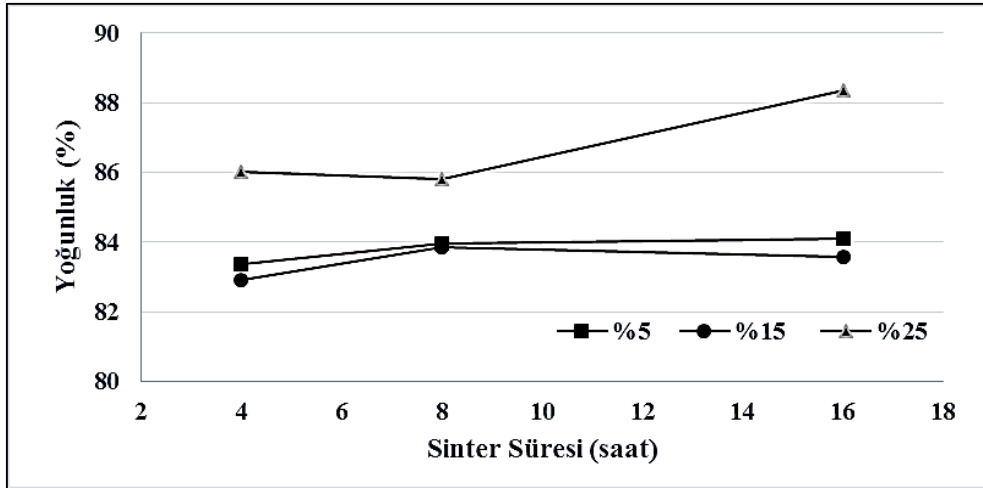
Şekil 4.7. ThO₂ ve %5 CeO₂ içeren IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak geometrik yoğunluklarının değişimi

Şekil 4.8’de ise yine aynı sıcaklıklarda sinterlenmiş peletlerin yoğunluklarının değişimi yüzdesel olarak gösterilmiştir. Geometrik yöntemle göre %40 civarında görülen pelet yoğunluğu daldırma yöntemine göre %84’lerde olduğu gözlemlenmiştir.

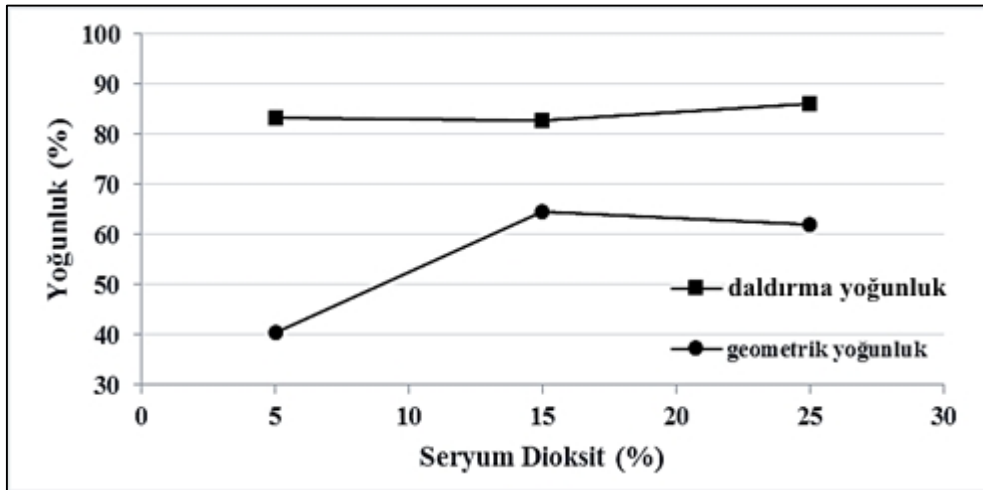


Şekil 4.8. %5 CeO₂ IMF peletlerinin sinter sıcaklığına bağlı olarak geometrik ve daldırma yoğunluk ilişkisi

Şekil 4.9’da üretilen bütün peletler için (%5, 15 ve 25 CeO₂ katkılı) sinterleme süresinin daldırma yoğunluk değerleri üzerine etkilerini gösteren bir grafik gösterilmiştir. Şekil 4.10’da ise %25’lere kadar olan CeO₂ ilavesinin yine daldırma yoğunluk değerleri üzerine etkisi verilmiştir. CeO₂ yoğunluk üzerinde çok fazla etki yapmadığı görülmektedir.



Şekil 4.9. %5, 15 ve 25 CeO₂ katkıli peletlerde sinterleme süresinin daldırma yoğunluk üzerine etkileri



Şekil 4.10. CeO₂ katkısının daldırma ve geometrik yoğunluk üzerine etkileri

Farklı sıcaklıklarda sinterlenen katkısız ThO₂ ve %5 CeO₂ katkıli peletlerin ayrıntılı olarak yoğunluk ve porozite verileri Tablo 4.1'de verilmiştir. Artan sinterleme sıcaklığı ile birlikte taneler büyümekte ve porozite azalmaktadır. Boşlukların küçülmesi ve porozitenin azalmasıyla birlikte peletlerin daldırma yoğunluklarının arttığı gözlemlenmektedir. Değerlendirmeler için esas alınacak olan katkısız ThO₂'nin yoğunluk değerleri ise IMF peletlerine göre daha yüksek değerdedir. ThO₂'nin yoğunluğu tüm katışık malzemelerden daha yüksektir. ThO₂'e ilave edilen seryum, alüminyum ve magnezyum oksit, daha poroz bir yapı oluşturmuşlardır. Tablo 4.2'de malzemelerin literatürde bulunan teorik yoğunlukları da verilmiştir.

Sinterleme esnasında bilindiği gibi malzeme içerisinde porlar meydana gelir. Yakıtların ışınlanması esnasında yakıt performansı açısından bu porların önemi ve etkisi çok fazladır. Örnek olarak ışınlanma esnasında porlardaki herhangi artış veya azalış yakıt içerisinde bir yoğunlaşma ve şişme meydana getirebilir. Dolayısıyla yakıtların yanma esnasındaki bütünlüğü kısmen içindeki mevcut bulunan porlara dayanmaktadır [99]. Çıkan fisyon gazlarının yapı içerisinde tutulması için nükleer yakıt yapısında %3-5 kadar porozite istenir. Sinterlemeyi aktive etmek için malzeme içerisinde hata oluşturulur veya atmosfer değişikliği ile hızlandırma yapılır. Seryum dioksit katkısı sinter aktif bir dopant etkisi meydana getirmiştir.

Tablo 4.1. ThO₂ ve %5 CeO₂ içeren IMF peletlerinin yoğunluk değerleri (TD: Teorik Yoğunluk)

	Sinter Sıcaklığı °C	Ham Pelet		Sinterlenmiş Pelet						
		ρ g/cm ³	TD %	ρ (daldırma) g/cm ³	ρ (geometrik) g/cm ³	TD (daldırma) %	% TD (geometrik) %	Porozite (toplam) %	Porozite (açık) %	Porozite (kapalı) %
ThO ₂	1200	6,03	60,30	6,00	4,92	60,05	49,20	39,95	38,20	1,75
	1300	5,99	59,90	6,14	4,89	61,37	48,90	38,63	36,55	2,09
	1400	5,92	59,20	7,23	5,13	72,26	51,30	27,74	26,49	1,25
	1500	5,97	59,70	8,25	5,25	82,47	52,50	17,53	13,28	4,25
	1600	6,01	60,10	8,62	5,36	86,20	53,60	13,80	6,40	7,40
	1700	5,98	59,80	8,79	5,50	87,92	55,00	12,08	1,39	10,68
IMF	1200	2,85	35,93	4,18	3,13	52,67	39,42	47,33	38,49	8,84
	1300	2,89	36,44	4,65	3,20	58,59	40,38	41,41	33,70	7,72
	1400	2,99	37,70	4,70	3,17	59,21	39,91	40,79	32,47	8,32
	1500	3,01	37,95	5,68	3,23	71,61	40,71	28,39	19,04	9,35
	1600	2,92	36,82	6,23	3,13	78,61	39,47	21,39	8,07	13,32
	1700	2,93	36,94	6,61	3,20	83,35	40,39	16,65	3,95	12,70

Barrier ve arkadaşlarının yaptığı bir çalışmada ThO₂ ve seryum dioksit malzemelerinin belli oranlarda karışımının incelendiğini ve bunun sonucunda saf ThO₂'e nazaran seryum dioksit ilaveli ThO₂'in yoğunluğunda önemli bir artış meydana geldiği belirtilmektedir. %5 seryum dioksit ilavesi yoğunluğu %94'lere kadar çıkarmıştır. Bunun sonucunu ise seryum dioksit tozlarının ilavesiyle tozlardaki yığılma yoğunluğunun azalmasına ve bundan dolayı da çökmenin ve tozların yeniden

yerleşmelerinin kolaylaşmasına bağlamaktadır. Seryum dioksit ilavesi ThO_2 'in sinterlenebilirliğini arttırmaktadır [94, 100].

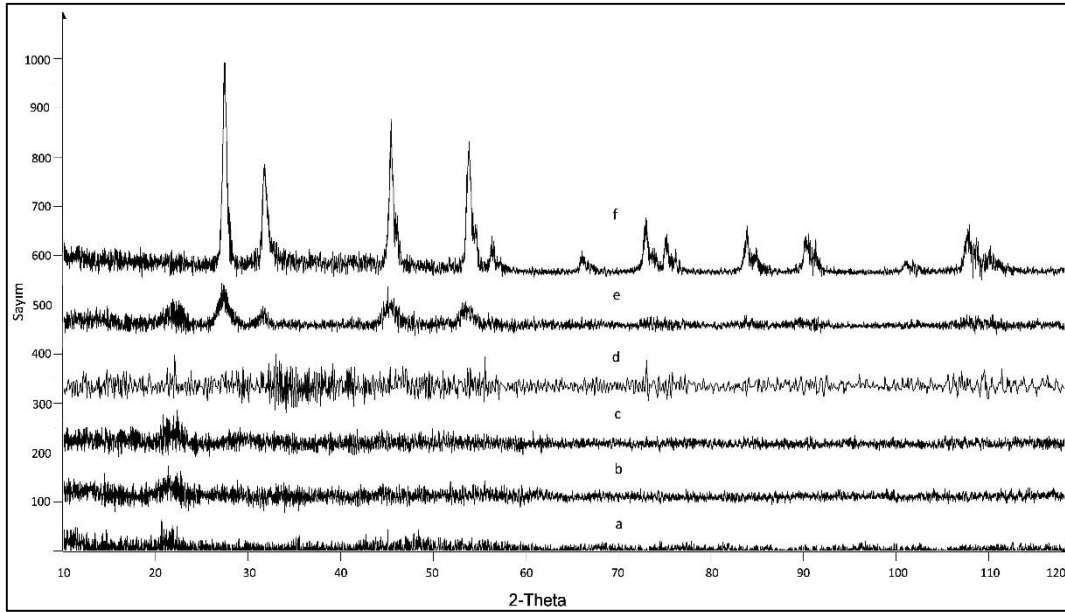
Tablo 4.2. Denejde kullanılan malzemelerin literatürdeki teorik yoğunlukları

Malzeme	Teorik Yoğunluğu (g/cm^3)
ThO_2	10,00
CeO_2	7,22
Al_2O_3	3,97
MgO	3,58

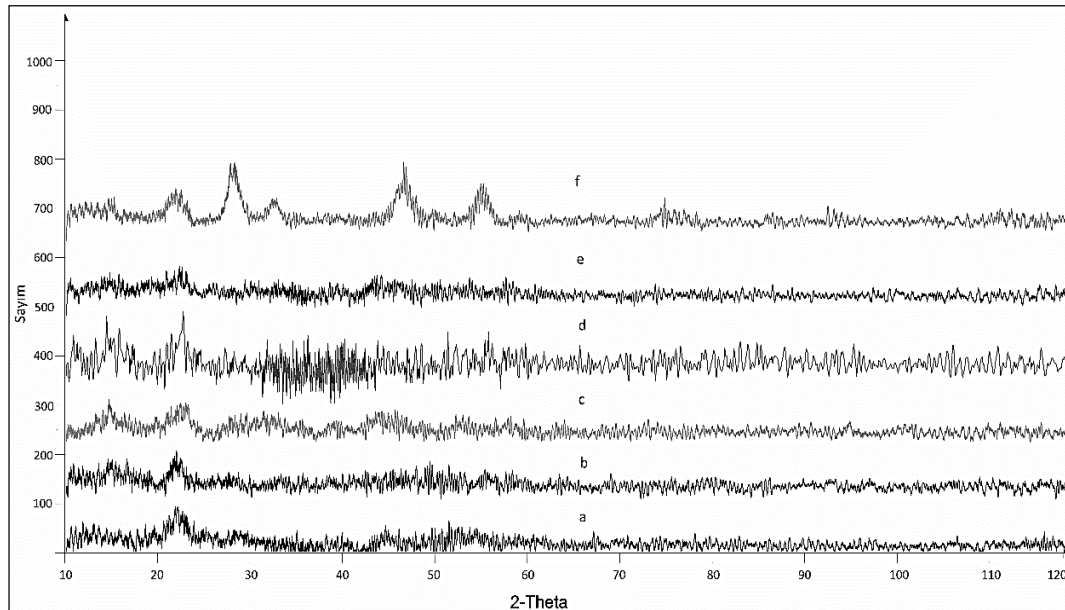
4.9.2. Katı hal incelemeleri

Sol-gel prosesi ile elde edilen ürünler, kalsine edilen tozlar ve sinterlenen peletlerin katı hal incelemeleri X-ışını difraksiyonu ile yapılmıştır. X-ışını difraksiyon analizi Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'nde bulunan (XRD-Bruker AXS D8 Advance) cihazında gerçekleştirilmiştir. Sol-gel metodu ile üretilen ve değişik sıcaklıkta kalsine edilen tozların ve değişik sıcaklıklarda sinterlenen peletlerin X-ışını difraksiyon analizleri ile kristal yapı parametreleri incelenmiştir. Referans malzeme olan ThO_2 ile karşılaştırmaları yapılarak değerlendirmelerde bulunulmuştur.

Literatürden de bilindiği kadarıyla ThO_2 - CeO_2 ve ThO_2 - PuO_2 sistemleri yüksek sıcaklıklarda yüzey merkezli kübik yapıda kristalize olurlar [94, 101, 102]. Şekil 4.11'de sol-gel yöntemi ile elde edildikten sonra sırasıyla 50, 100, 150, 250, 350, 500 °C'de ısıtılma tabii tutulan ve daha sonra 1000 °C'de kalsine edilen sol-gel ürünlerinin XRD grafiği gösterilmiştir. Grafiklerden anlaşılacağı üzere düşük sıcaklıklarda ısıtılma gören ürünlerde henüz kristal yapı gözükmemektedir, amorf haldedirler. Sıcaklık arttıkça kristalin yapı oluşmaktadır.

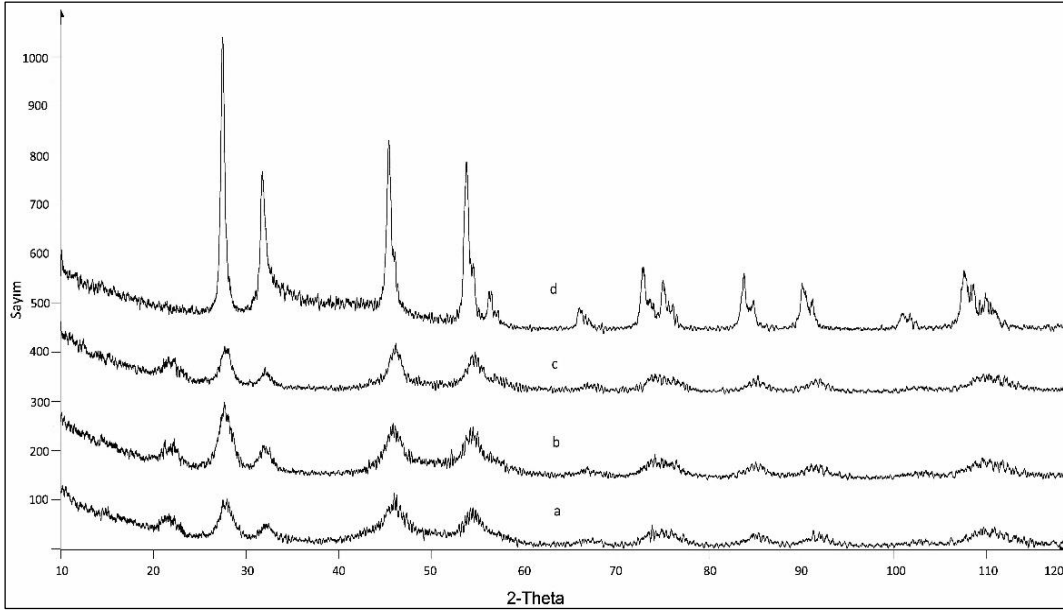


Şekil 4.11. a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C'de işlem görmüş ThO₂ tozlarının XRD grafiği



Şekil 4.12. a) 50, b) 100, c) 150, d) 350, e) 500, f) 1000 °C'de işlem görmüş %5 CeO₂ katkılı IMF tozlarının XRD grafiği

Şekil 4.12'de ise sol-gel dış jelasyon yöntemi ile elde edildikten sonra sırasıyla 50, 100, 150, 250, 350, 500 °C'de ısıtılmasına tabi tutulan ve daha sonra 1000 °C'de kalsine edilen inert matriks bileşiklerinin XRD grafiği verilmiştir. ThO₂'te olduğu gibi grafiklerden anlaşılacağı üzere düşük sıcaklıklarda ısıtılmasına tabi tutulan tozlar henüz kristal yapıda değildir, amorf turlar. Sıcaklık arttıkça kristal yapı oluşmaktadır, ancak bileşimlerin kristalleşmeyi geciktirdiği açıkça görülmektedir.



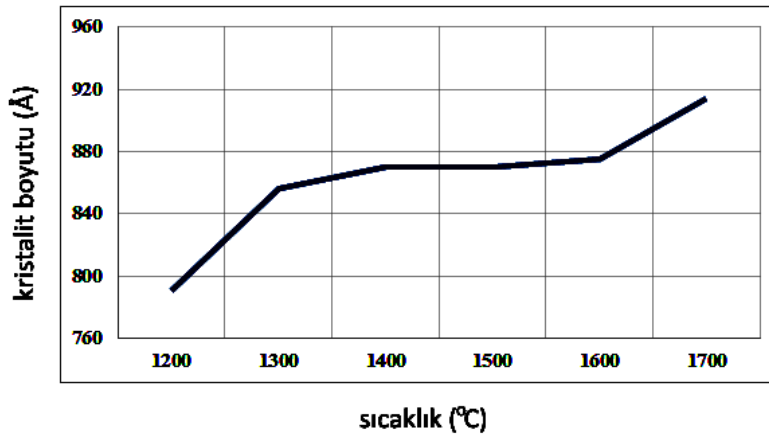
Şekil 4.13. a) %5, b) %15, c) %25 CeO₂ katkılı IMF tozlarının d) ThO₂ tozunun 1000 °C'de kalsinasyonu sonucu elde edilen XRD grafiği

1000 °C'de kalsine edilmiş tozların XRD incelemelerinden elde edilen veriler saf ThO₂ tozunun tanelerinin katkılı diğer tozlara nazaran daha iri yapıda olduğu söylenebilir (Şekil 4.13). İnert matriks tozlarının ise aynı sıcaklıkta daha ince taneli bir yapıya sahip oldukları gözlemlenmiştir. Buna katkı malzemelerinin neden olduğunu söyleyebiliriz.

Tablo 4.3'de sol-gel metoduyla elde edilmiş IMF peletlerinden XRD grafiklerinden çıkarılan Bragg açıları, FWHM (pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik), tabakalar arası mesafe (d), birim hücre boyutu (a) ve kristalitin boyutları (t) gösterilmiştir. Tablo 4.3'deki verilerden de anlaşılacağı üzere sıcaklık artışı ile kristalitin (t) boyutundaki artış açıkça gözlemlenmektedir. 1200 °C'de 790.37 Å olan kristalit boyutu 1700 °C'de 914,02 Å boyutlarına ulaşmıştır. Bu değerler Olsen ve arkadaşlarının yapmış oldukları çalışma ile uyumluluk göstermektedir [103].

Tablo 4.3. Farklı sıcaklıklarda sinterlenen %5 CeO₂ içeren IMF peletlerinin kristal parametreleri

T (°C)	Θ_B	FWHM (°2theta)	t (Å)	d (Å)	a (Å)
Sıcaklık	Bragg açısı	Pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik	Kristalitin boyutları	Tabakalar arası mesafe	Birim hücre boyutu
1700	27,665	0,179	914,02	3,2198	5,5700
1600	27,706	0,187	874,99	3,2203	5,5759
1500	27,691	0,188	870,31	3,2166	5,5771
1400	27,654	0,188	870,24	3,2179	5,5659
1300	26,659	0,191	856,58	3,2201	5,5759
1200	27,691	0,201	790,37	3,2189	5,5759

Şekil 4.14. %5 CeO₂ içeren IMF peletlerinin kristalit boyutunun sıcaklık ile değişimi

Şekil 4.14'te %5 CeO₂ içeren ve tabloda belirtilen sıcaklıklarda 4 saat süreyle sinterleme sonucu elde edilen peletlerin kristalit boyutları grafik halinde gösterilmiştir.

Tablo 4.4'de ise IMF peletlerinin %5, 15 ve 25 CeO₂ içeren peletlerinin 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletlerinin XRD grafiklerinden çıkarılan Bragg açıları, FWHM (pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik), tabakalar arası mesafe (d), kristalitin boyutları (t) ve birim hücre boyutu (a) gösterilmiştir. Referans malzeme olan ThO₂ verileri de eklenmiştir.

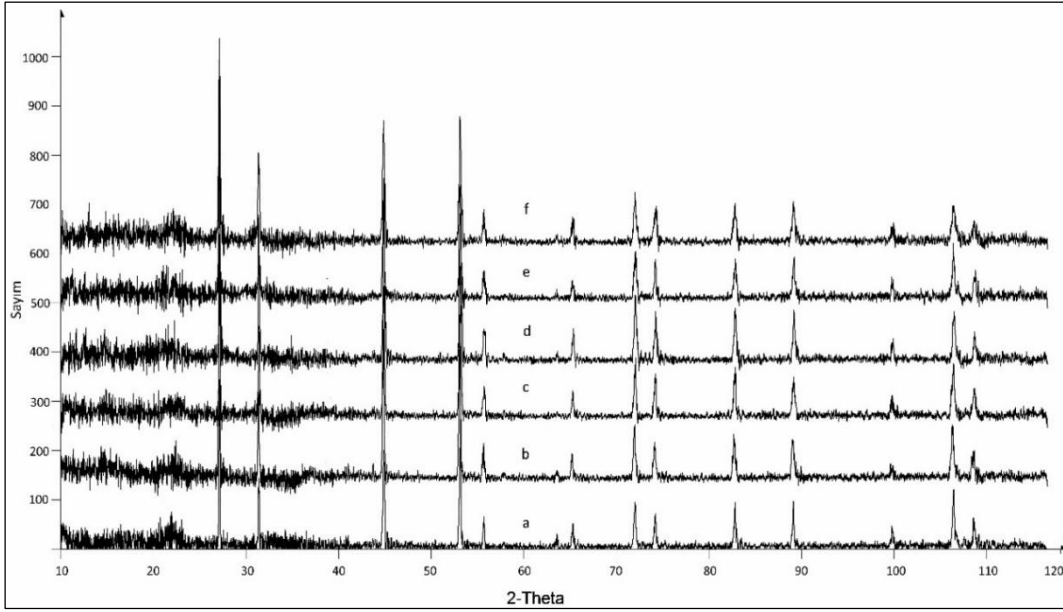
Tablo 4.4. 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletlerin kristal parametreleri

Ürün	Θ_B	FWHM ($^{\circ}2\theta$)	t (Å)	d (Å)	a (Å)
	Bragg açısı	Pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik	Kristalitin boyutları	Tabakalar arası mesafe	Birim hücre boyutu
ThO ₂ (referans)	27,69	0,215	765,91	3,2215	5,5759
%5 CeO ₂ IMF	27,67	0,179	909,11	3,2198	5,5700
%15 CeO ₂ IMF	27,68	0,216	753,40	3,2212	5,5759
%25 CeO ₂ IMF	27,72	0,181	899,15	3,2162	5,5641

Tablo 4.5’de ise 1000 °C’de kalsine edilmiş IMF tozlarını ve katışıksız ThO₂ tozunun XRD grafiklerinden elde edilen verilerle Bragg açıları, FWHM (pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik), tabakalar arası mesafe (d), kristalitin boyutları (t) ve birim hücre boyutu (a) gösterilmiştir. Referans malzeme olan ThO₂ verileri de eklenmiştir.

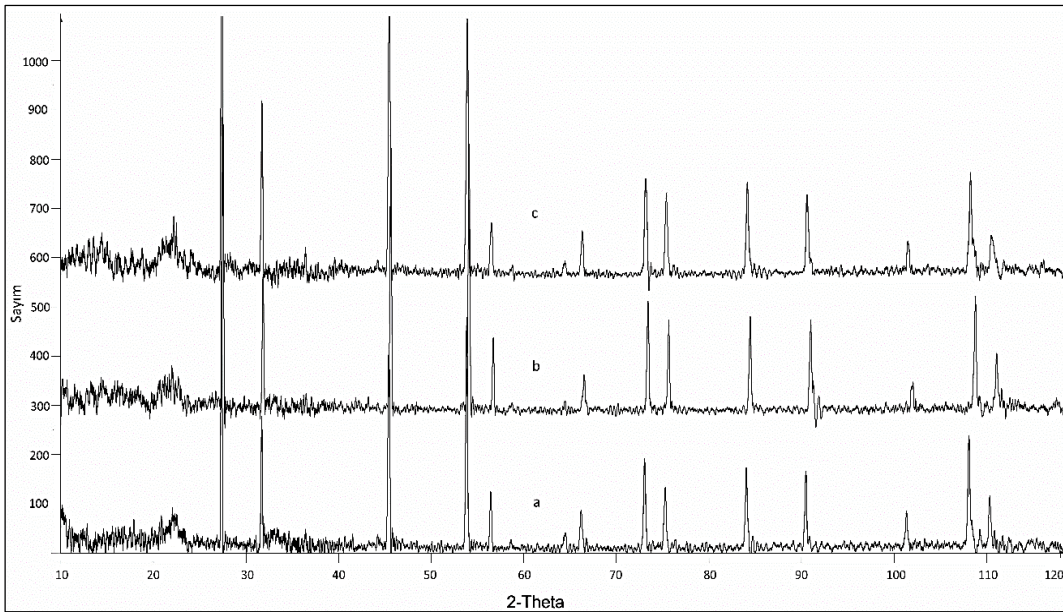
Tablo 4.5. 1000 °C’de kalsine edilmiş tozların kristal parametreleri

Ürün	Θ_B	FWHM ($^{\circ}2\theta$)	t (Å)	d (Å)	a (Å)
	Bragg açısı	Pik yarı yüksekliğindeki tam genişlik	Kristalitin boyutları	Tabakalar arası mesafe	Birim hücre boyutu
ThO ₂ (referans)	27,79	0,480	339,09	3,2067	5,5527
%5 CeO ₂ IMF	28,22	0,705	231,04	3,1591	5,4778
%15 CeO ₂ IMF	28,22	0,705	231,04	3,1591	5,5144
%25 CeO ₂ IMF	28,24	0,499	326,44	3,1571	5,4774



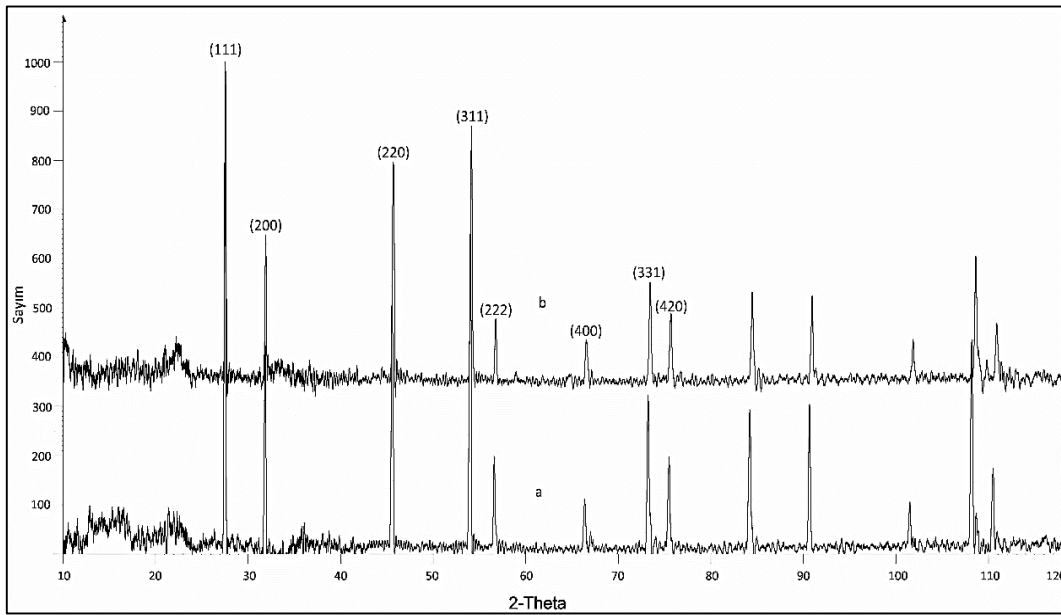
Şekil 4.15. a) 1200, b) 1300, c) 1400, d) 1500, e) 1600, f) 1700 °C’de sinterlenmiş %5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin XRD grafiği

Şekil 4.15’de sırasıyla 1200, 1300, 1400, 1500, 1600 ve 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletlerin XRD diyagramları verilmiştir. Sıcaklık arttıkça kristalit çaplarının arttığı gözlemlenmiştir. Burada küçük kristallerin birleşerek daha büyük kristaller meydana getirdiği görülmektedir.



Şekil 4.16. a) %5, b) %15, c) %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiği

Seryum dioksit miktarının artışı ile büzülmenin başladığı sıcaklıklar daha düşük sıcaklıklar olarak görülmektedir. Bu durum seryum dioksitin yapıda sinteraktif bir dopant bir etkisi oluşturduğunu göstermektedir. Seryum dioksitin bu etkisini XRD diyagramlarında da görmek mümkündür. Seryum dioksit miktarı arttıkça daha hızlı bir kristalit büyümesi açıkça görülmektedir. Şekil 4.16'de görüldüğü gibi XRD sonuçlarına göre bütün bileşimler başlangıç bileşimine göre katı eriyik formda şekillenmişlerdir [94]. Katkılar ThO_2 matriksi içerisinde katı eriyik oluşturmuş ve ikili faz (dual phase) yapısındadır. Bu incelemeler SEM görüntü analizlerinde de ortaya çıkmış ve iki farklı fazdaki bileşimler belirlenmiştir. Ancak XRD incelemelerinde ThO_2 matriksindeki çözülmüş katı eriyik yapısında diğer bileşimlerin pikleri gözükmemektedir.

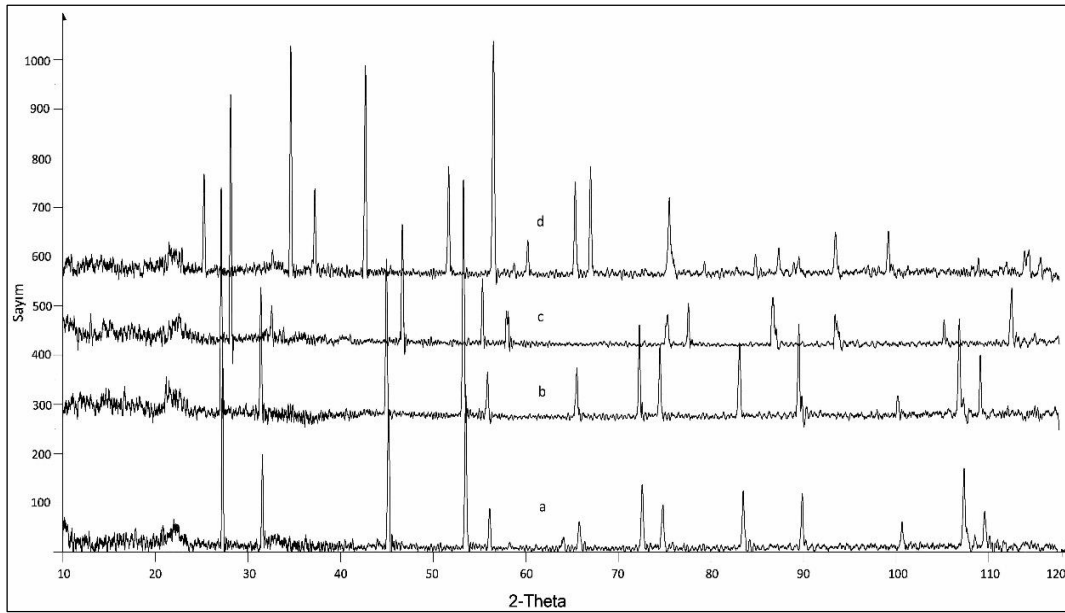


Şekil 4.17. a) ThO_2 ile b) %5 CeO_2 katkılı IMF peletlerinin $1700\text{ }^\circ\text{C}$ 'de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiklerinin karşılaştırılması

Şekil 4.17'da gözlemlenebileceği gibi IMF bileşiminin peletlerinin sinterlenmesi sonucunda yapılan XRD incelemelerine göre bileşimin XRD grafiği, katıksız ThO_2 'nin grafiği ile bire bir örtüşmektedir. Karışımın diğer ürünlerinin (MgO , CeO_2 ve Al_2O_3) pikleri X-ışınları kırınımı grafiğinde gözükmemektedir. Bu ise bileşiklerin ThO_2 kristal yapı içerisinde katı eriyik oluşturduğunu göstermektedir [94].

XRD grafiklerinden elde edilen verilere göre bu karışım yüzey merkezli kübik yapıdadır ve Naik ve arkadaşlarının yaptığı çalışmayla uyumlu gözükmetedir [100]. %5 CeO₂ içeren IMF bileşimi için birim hücre değeri 5,4778 Å, %15 CeO₂ içeren IMF bileşimi için birim hücre değeri 5,5144 Å, %25 CeO₂ içeren IMF bileşimi için birim hücre değeri ise 5,4774 Å'dur. CeO₂ içermeyen saf ThO₂'in ise birim hücre değeri 5,5527 Å olarak hesaplanmıştır. Bu değer Grover ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmada 5,5597 Å olarak ele alınmıştır ve çalışmamızla uyumluluk göstermektedir [106].

Şekil 4.18'de spinel yapı olan (MgAl₂O₄) ile bileşimin yapısı karşılaştırılmıştır. SEM ve EDS incelemelerinde iki farklı tane yapısı göze çarpmış ve Al ile Mg aynı tane içinde buluşarak spinel yapıyı meydana getirmişlerdir [107, 108]. Spinel yapı oda sıcaklığında kübik bir yapıya sahiptir ve latis parametresi 8,0831 Å'dur.



Şekil 4.18. a) %5 CeO₂ katkılı IMF, b) ThO₂, c) CeO₂, d) Spinel (MgAl₂O₄) peletlerinin 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen XRD grafiklerinin karşılaştırılması

4.9.3. Termal davranış (TG/DTA) incelemeleri

Elde edilen ürünlerin termogravimetrik (TG) analizi (NETZSCH STA 449C) cihaz ile gerçekleştirilmiştir. Bu analizle genel olarak malzemelerde bir fonksiyonu olarak meydana gelen kütle azalmasının ve/veya artışlarının incelenmesi hedeflenmektedir.

Bu analizde numune sabit ısıtma hızında ısıtılmakta ve kütle değişimi, sıcaklığın bir fonksiyonu olarak ölçülüp kaydedilmektedir. Deney numunesinde kütle değişimine sebep olabilecek reaksiyonlar genellikle; bozunma, yükseltgenme reaksiyonları veya numunede mevcut bir bileşenin buharlaşarak uzaklaşmasıdır. Sıcaklıkla ağırlık değişimi ve bu esnada oluşan reaksiyonların karakteristikleri (endotermik, ekzotermik) incelenerek ağırlık kaybının olup olmadığı en düşük sıcaklıklarda tespit edilir. Oluşan reaksiyon kademeleri hakkında bilgi verir. Düşük sıcaklıklarda kurutulmuş numunelerde yüksek ağırlık kayıplarının büyük bir kısmı su kaybı nedeniyledir. Daha sonra amonyak esaslı organik bozunma reaksiyonları akabinde numune oksit formuna ulaşarak kararlı bir yapıya ulaşır.

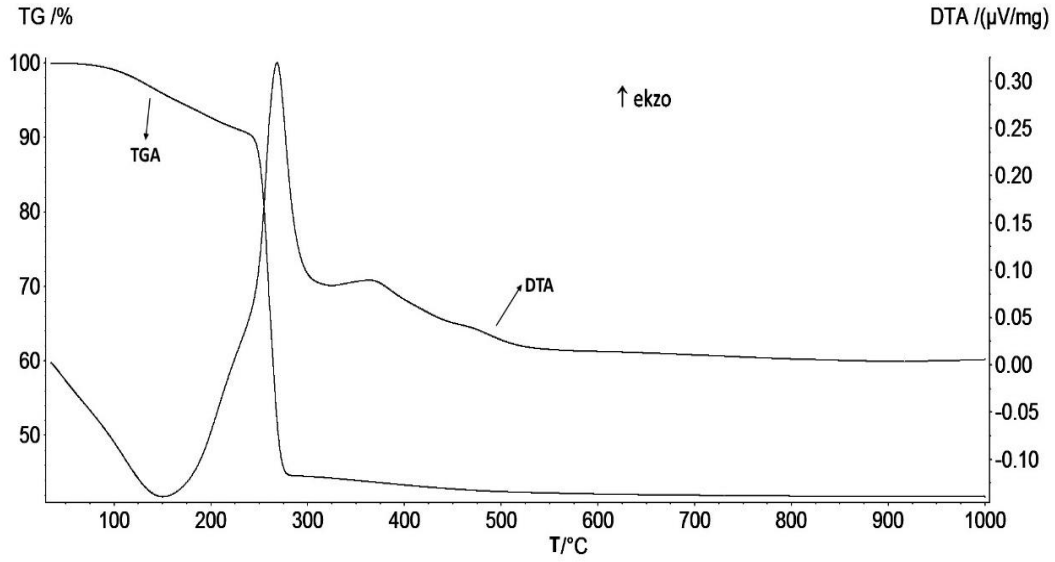
Bu analiz sonrasında elde edilen verilerle zamana veya sıcaklığa karşı numunenin davranışlarını gösteren eğri TG eğrisidir. Sıcaklığın fonksiyonu olarak malzemenin kütledeki değişim ve bu değişimin yayıldığı aralık malzemenin termal kararlılığının göstergesidir. Buradan elde edilen verilerle gerekli kalsinasyon sıcaklık ve süreleri belirlenmiş olur.

Sol-gel dış jelasyon yöntemiyle elde edilen IMF ürünlerine ve ThO₂ tozlarına argon atmosferinde 1000 °C'ye kadar olan yapılan analiz Şekil 4.19 ve 4.20'de görülmektedir. Isıtma 10 °C/dak. hızla ve argon atmosferinde gerçekleştirilmiştir.

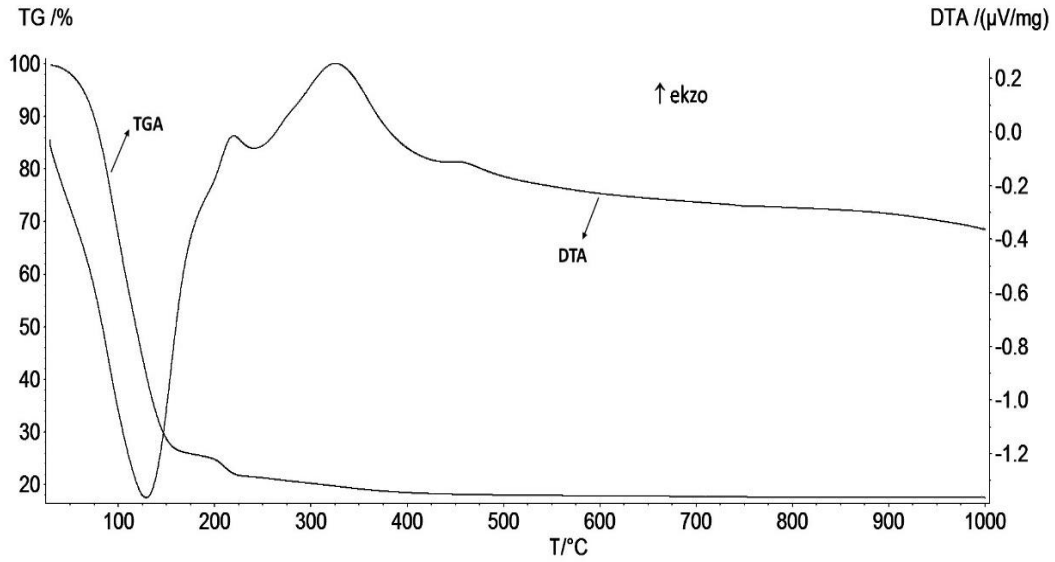
Elde edilen verilere göre bozunma reaksiyonları 600 °C civarında tamamlanmaktadır. Ancak bu sıcaklıkta elde edilen tozlar çok ince olup serbest akıcılıkları yoktur. Bunu önlemek için kalsinasyon sıcaklıkları 900-1000 °C olarak alınmaktadır.

Şekil 4.19'da referans malzememiz olan katışıksız ThO₂ tozunun TG/DTA eğrisi gösterilmiştir. TGA eğrisinde 100 °C civarında yapıdaki su ve nemin uzaklaştığını görmekteyiz. Aynı sıcaklık civarında DTA eğrisinde endotermik pik de gözükmemektedir. Suyun ve nemin uzaklaşmasından sonra 220 °C civarında ise karışımda vizkozite ayarlama ve modifiye etme amacıyla kullandığımız malzemelerden olan amonyum nitrat (NH₄NO₃), PVA, THFA bozunması ve kristal suların uzaklaşması meydana gelmiştir. Bu eğri TG grafiğinde ve ilgili ekzotermik

pik de DTA eğrisinde gözükmemektedir. Bu sıcaklıklarda kütle kaybı yaklaşık olarak %55 civarındadır.



Şekil 4.19. ThO_2 'nin TG/DTA grafikleri



Şekil 4.20. %5 CeO_2 katkılı IMF tozunun TG/DTA eğrisi

Şekil 4.20'de ise %5 CeO_2 katkılı IMF jelinin TG/DTA eğrisi verilmiştir. TG eğrisinde 100 °C civarında görülen eğrilik, sistemden suyun uzaklaşmasını ve nem kaybını göstermektedir. Bununla ilgili endotermik pik de DTA eğrisinde mevcuttur.

210 °C civarında ise amonyum nitrat, PVA ve THFA bünyeden uzaklaşarak yaklaşık olarak %80 kadar kütle kaybı yaşanmıştır. Bu sıcaklıktan sonra dikkate değer bir kütle kaybı meydana gelmemiştir.

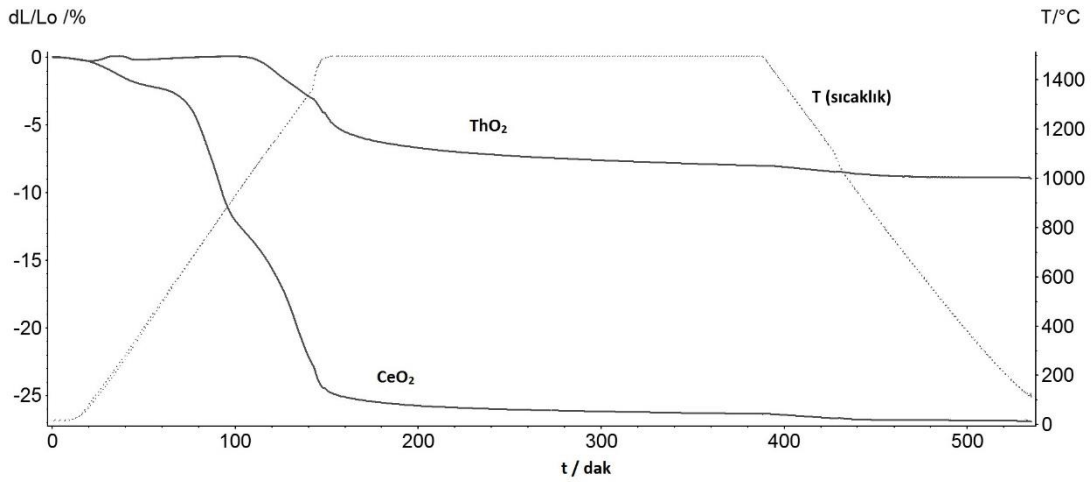
Bu analiz sonuçları aynı zamanda yapıda ilerleyen sıcaklıklarda herhangi bir ağırlık kaybının olmadığını ve bozunma reaksiyonlarının tamamlandığını göstermektedir.

4.9.4. Dilatometrik analiz

Dilatometre, sıcaklıkla zamanın bir fonksiyonu olarak boyut ölçülerindeki değişimini ölçer ve elde edilen bu veriler teknik malzemelerin doğrusal genişleme katsayılarının saptanmasında kullanılır. Referans olarak alınan ThO₂ peletleri ve %5, 15, 25 CeO₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizleri 1500 °C sıcaklıkta argon atmosferinde 4 saat süreyle (NETZSCH DIL 402 C) dilatometre cihazında incelenmiştir. Sinterleme esnasında ısıtma hızı 10 °C/dak olarak belirlenmiştir.

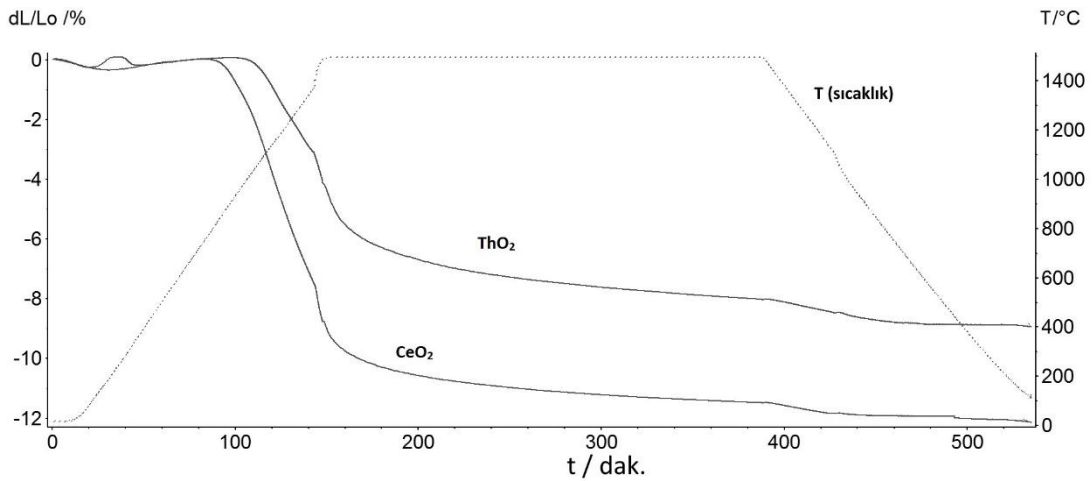
4.9.4.1. %5 CeO₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi

Şekil 4.21’de bu çalışmada 1500 °C’de 4 saat süreyle izoterm koşullarda argon atmosferi altında %5 CeO₂ katkılı IMF peletleri ile katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülme eğrileri gösterilmiştir. Sinterleme sonucunda katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülmesi yaklaşık olarak %8 civarında iken bu oran %5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde yaklaşık olarak %26 civarındadır. %5 CeO₂ katkılı IMF peletinin büzülmesi 600 °C civarında başlarken saf ThO₂ peletinin büzülmesi 1000 °C’lerde başlamaktadır. Bu da daha önce XRD analizlerinde belirttiğimiz gibi katışıklar ThO₂ peletlerine sinteraktif dopant rolü oynamaktadır.



Şekil 4.21. %5 CeO₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi

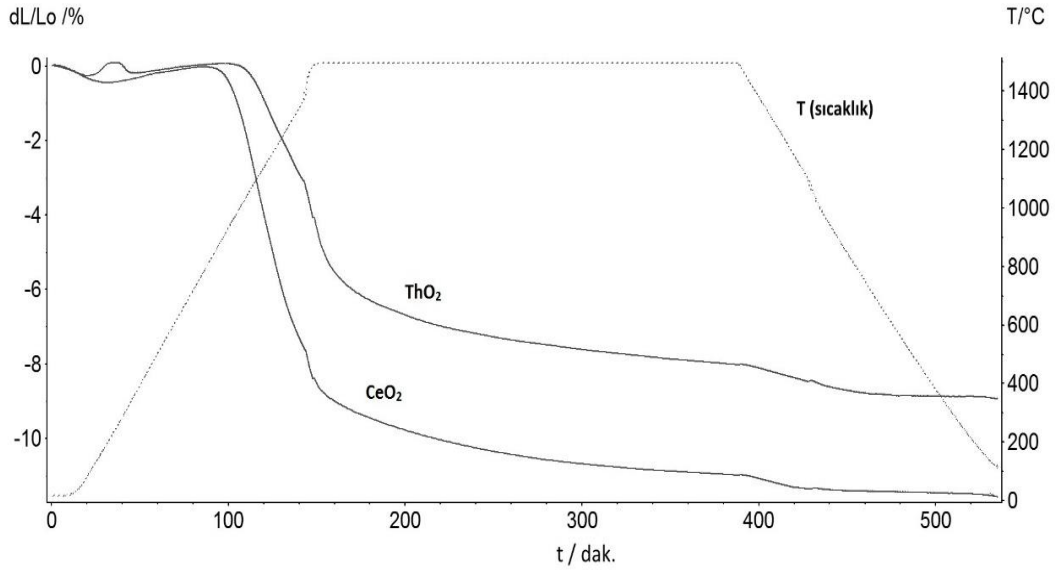
4.9.4.2. %15 CeO₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi



Şekil 4.22. %15 CeO₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi

Şekil 4.22’de ise aynı şartlarda analizi yapılan %15 CeO₂ katkılı IMF peletleri ile katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülme eğrileri gösterilmiştir. Sinterleme sonucunda katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülmesi yaklaşık olarak %8 civarında iken bu oran %15 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde yaklaşık olarak %12’lere kadar çıkmıştır. %15 CeO₂ katkılı IMF peletinin büzülmesi 800 °C civarında başlarken saf ThO₂ peletinin büzülmesi 1000 °C’lerde başlamaktadır.

4.9.4.3. %25 CeO₂ içeren IMF peletlerinin dilatometrik analizi

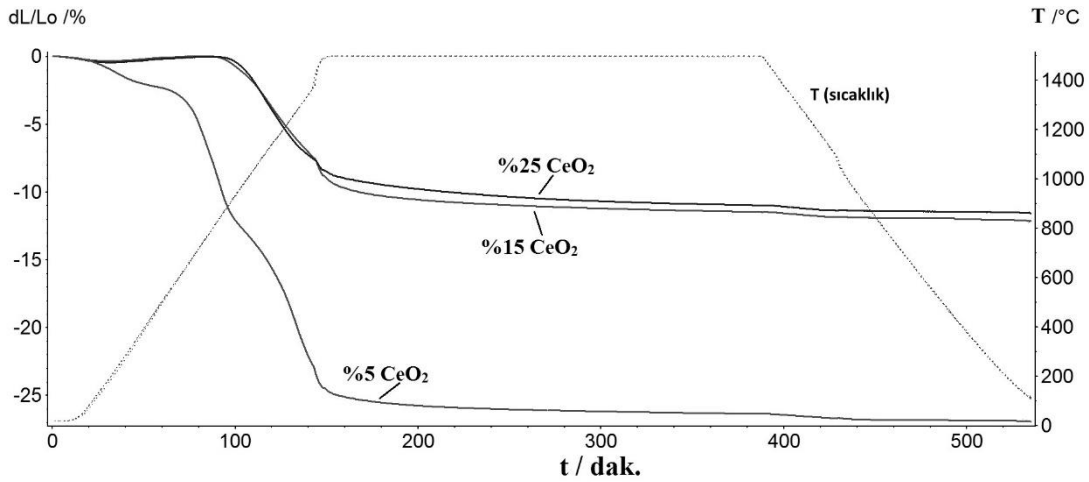


Şekil 4.23. %25 CeO₂ katkılı IMF peletinin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrisi

Şekil 4.23’de ise aynı şartlarda analizi yapılan %25 CeO₂ katkılı IMF peletleri ile katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülme eğrileri gösterilmiştir. Sinterleme sonucunda katışıksız ThO₂ peletlerinin büzülmesi yaklaşık olarak %8 civarında iken bu oran %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde yaklaşık olarak %12’lere kadar çıkmıştır. %25 CeO₂ katkılı IMF peletinin büzülmesi 800 °C civarında başlarken saf ThO₂ peletinin büzülmesi 1000 °C’lerde başlamaktadır.

Sonuç olarak Şekil 4.24’de %5, 15 ve 25 CeO₂ katkılı IMF peletleri ile katışıksız ThO₂ peletinin dilatometrik analizi karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Burada en çok büzülme oranının %5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde olduğu açıkça gözlemlenmektedir. CeO₂ ilavesinin %15-20’lere kadar yoğunluğu arttırdığı daha önceki bölümlerde de değinilmiştir ve bu grafik de bunu desteklemektedir.

Barrier ve Yıldız tarafından yapılan iki farklı çalışmada seryum ilavesinin %20-25’lere kadar CeO₂ ilavesinin yoğunluğu arttırdığı ve sinterleme üzerinde olumlu etkilerinin olduğu belirtilmiştir [94, 114].

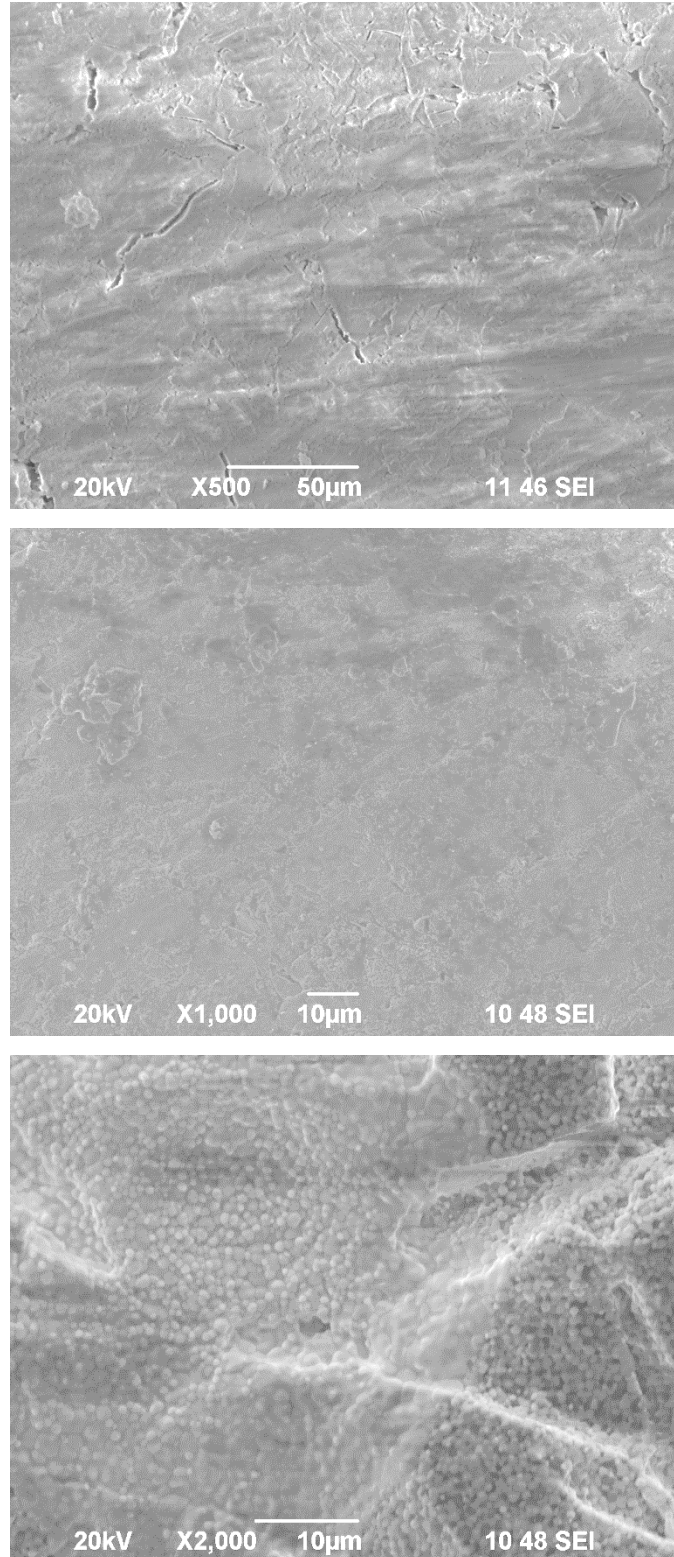


Şekil 4.24. %5, %15 ve %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin inin argon atmosferindeki dilatometrik analiz eğrilerinin karşılaştırılması

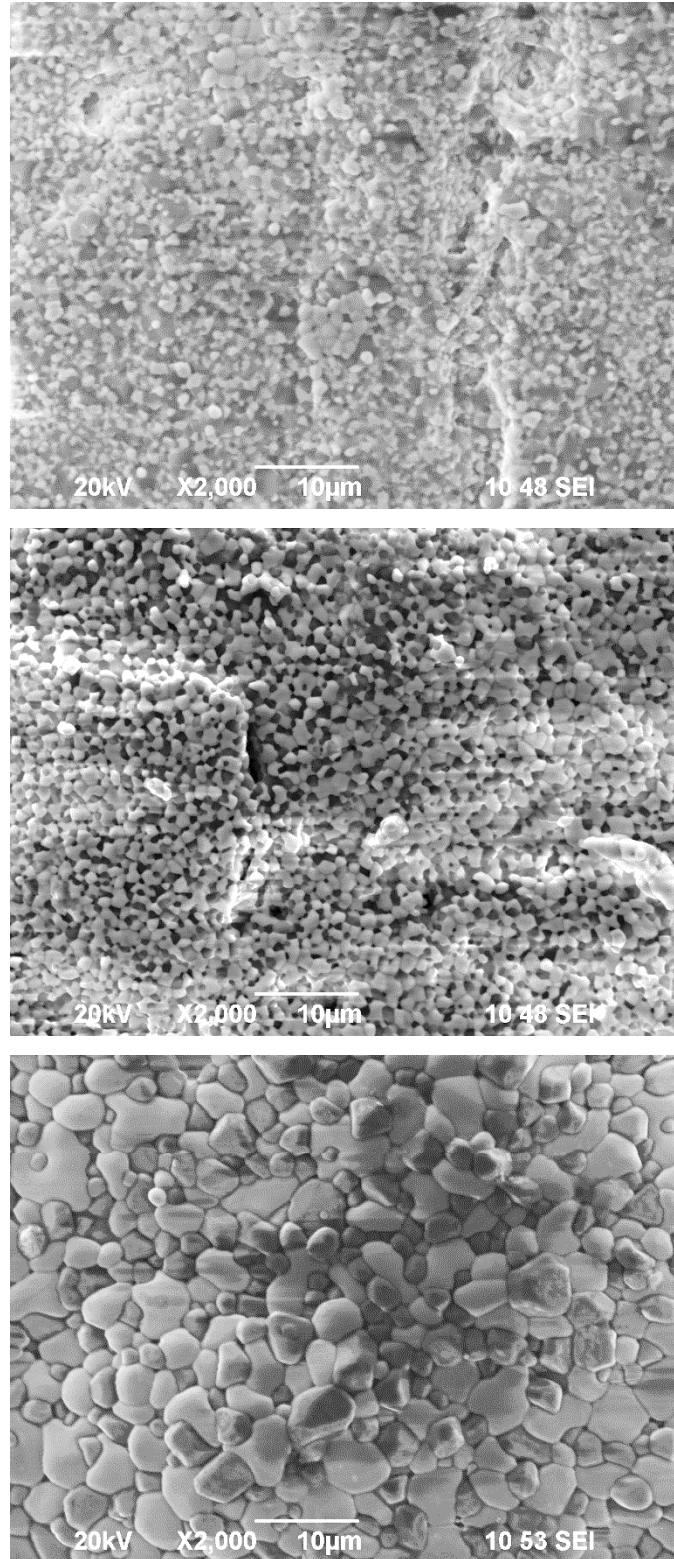
4.9.5. Mikroyapı ve yüzey incelemeleri

Değişik sıcaklık ve sürelerde sinterlenen peletlerin SEM görüntü incelemeleri seramografik yöntemle (SEM-JEOL JSM 639OLV) cihazında gerçekleştirilmiştir. Bu inceleme tane yapısı, tane boyutu ve bunlar üzerinde sinterleme sıcaklığının ve sürelerinin etkileri ile ilgili bilgiler vermektedir.

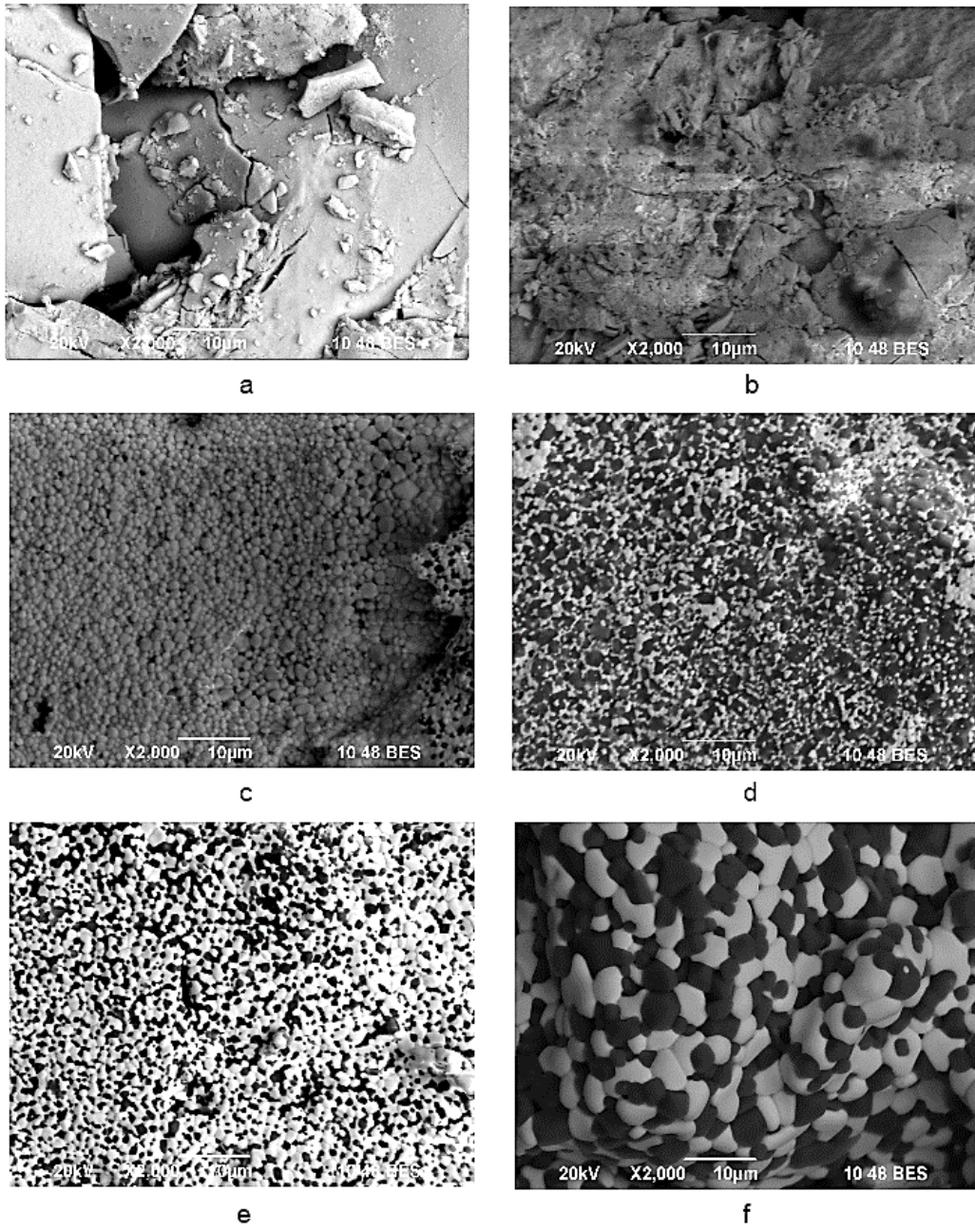
Şekil 4.25, 4.26 ve 4.27’de 1200 ile 1700 °C arasında 4 saat süreyle sinterlenmiş %5 CeO₂ içeren yakıt peletlerinin SEM görüntüleri hem SEI (secondary electron imaging) hem de BES (back-scattered electrons) şeklinde verilmiştir. Bu görüntülerden yoğunluk hesaplamaları bölümünde de bahsedildiği gibi peletlerin düşük sıcaklıklarda teorik yoğunluk olarak düşük yoğunlukta oldukları (%60) gözlemlenmektedir. 1500 °C’ye kadar olan sıcaklıklarda tane sınırları belirgin değildir. Sıcaklık artışı gerçekleştikçe tane yapıları ve tane sınırları daha belirgin bir şekilde görülmektedir. Buna bağlı olarak bu peletler için 1700 °C sinterleme sıcaklığının hem yoğunluk değerlerine hem de tane yapısı görüntülerine bakıldığında diğer düşük sıcaklıklara nazaran daha ideal bir sinterleme sıcaklığı olduğu söylenebilir.



Şekil 4.25. %5 CeO₂ içeren bileşimin SEM SEI sırasıyla 1200, 1300 ve 1400 °C’de sinterlenmiş peletlerinin (secondary electron imaging) görüntüleri



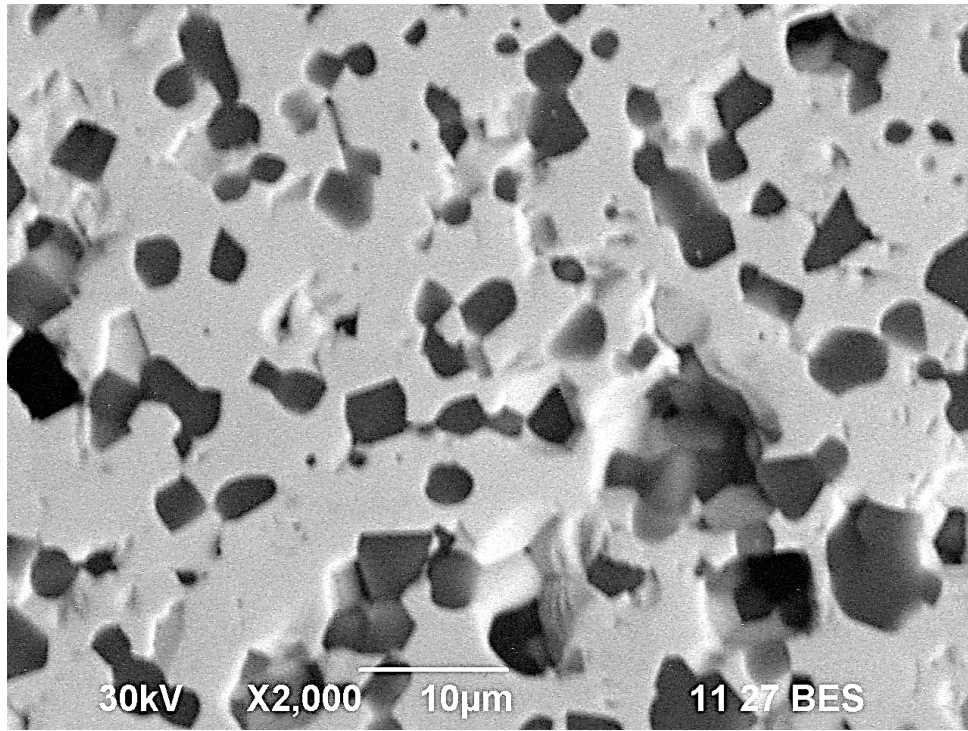
Şekil 4.26. %5 CeO₂ içeren bileşimin SEM SEI sırasıyla 1500, 1600 ve 1700 °C’de sinterlenmiş peletlerinin (secondary electron imaging) görüntüleri



Şekil 4.27. %5 CeO₂ içeren bileşimin SEM BES (back-scattered electrons) görüntüleri a) 1200, b) 1300, c) 1400, d) 1500, e) 1600, f) 1700 °C

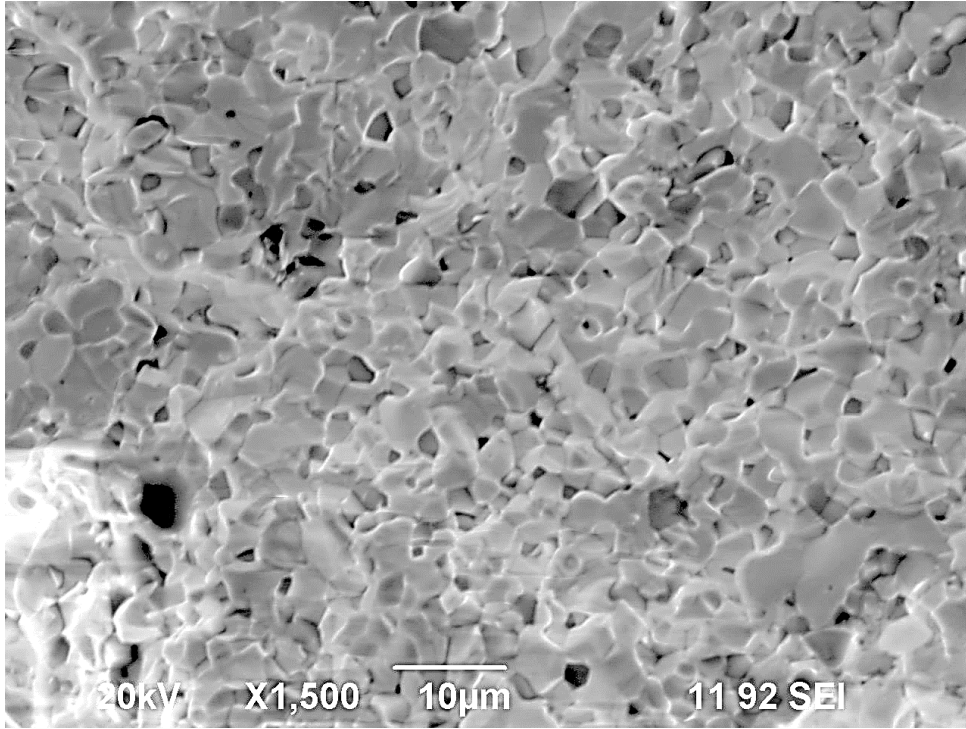
Sinterlenmiş peletlerin dış yüzeylerinden yapılan incelemeye göre peletlerin homojen bir yapıda olduğu açıkça görülmektedir. 1700 °C’de sinterlenmiş olan ve yoğunluğun en fazla olduğu peletlerde poroziteler nispeten gözlemlenmektedir. BES görüntülerinin analizine göre 4 farklı maddeden oluşan bileşimin iki farklı yapıda (dual-phase) taneleri oluşturduğu söylenebilir. Siyah renkli ve beyaz renkli tanelerden bu anlaşılmaktadır. 1700 °C’de yüzey incelemelerinden yüzeydeki poroziteler de açıkça gözlemlenmektedir. Tane sınırları da belirgin şekilde görülmektedir.

Şekil 4.28’de ise seramografik yöntemlerle parlatılmış pelet yüzeyinin SEM’de elde edilen görüntüsü verilmiştir. Bu yapıda yüzeydeki poroziteler ve tane sınırları daha belirgin bir şekilde görülmektedir. 1700 °C’de sinterlenmiş bu peletin yüksek yoğunluk değeri de düşük sıcaklıktaki sinterlenen peletlerden daha fazladır.



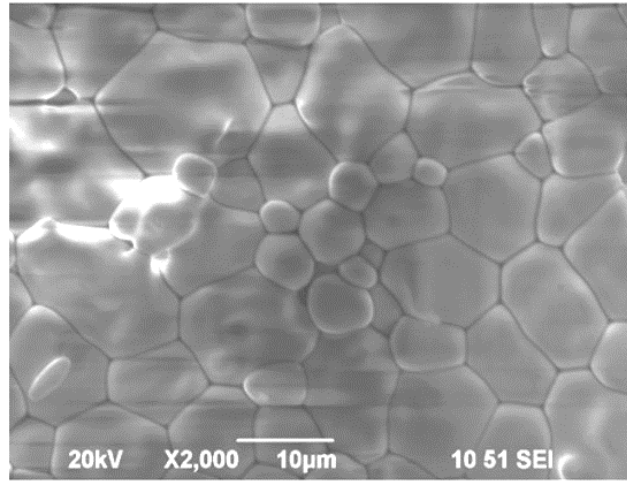
Şekil 4.28. 1700 °C’de 4 saat süreyle sinterlenmiş %5 CeO₂ içeren IMF peletinin parlatılmış yüzeyinin SEM BES görüntüsü

Şekil 4.29'da %5 CeO₂ içeren IMF peletinin kırılarak elde edilmiş iç yüzeyinin elektron mikroskopunda elde edilen görüntüsü verilmiştir. İçyapının da homojen yapıda olduğu açıkça söylenebilir. Tane sınırları da net bir şekilde görülebilmektedir. İç yüzey incelemesinde de poroziteler açık bir şekilde görülebilmektedir. Dış yüzeyden de görüldüğü gibi aynı şekilde iç yüzeyden de 1700 °C'de sinterlenmiş bu peletin yoğun bir yapıda olduğu belirtilebilir.

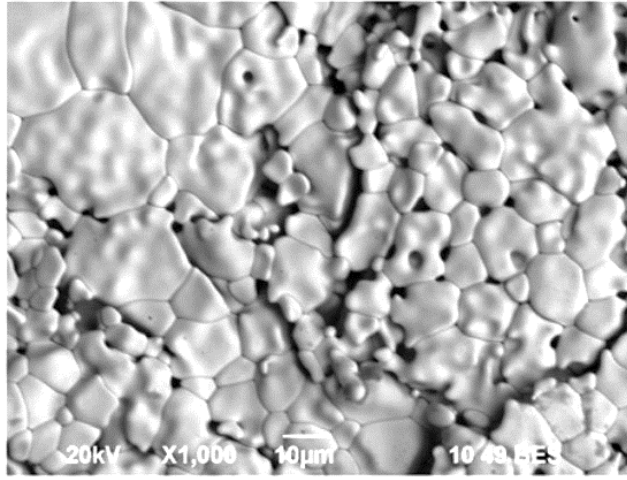


Şekil 4.29. 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş %5 CeO₂ içeren IMF peletinin iç yüzeyinin yüzeyinin SEM SEI görüntüsü

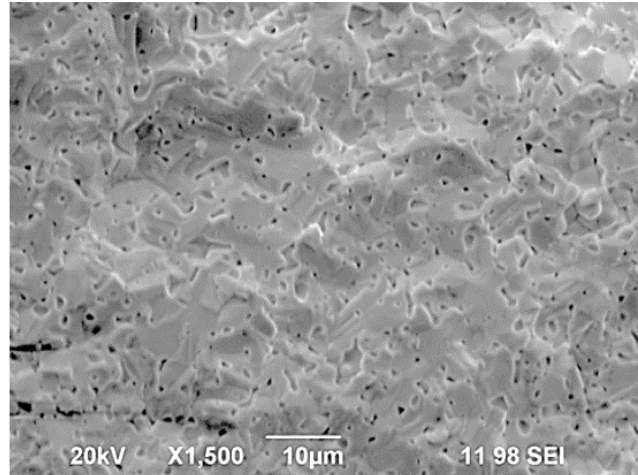
Şekil 4.30'da ise saf ThO₂ peletinin pelet yüzeyinin ve içyapısının görüntüsü verilmiştir. Poroziteler, tane yapısı ve tane sınırları açıkça görülmekte ve homojen bir yapıda olduğu da gözlemlenmektedir.



a



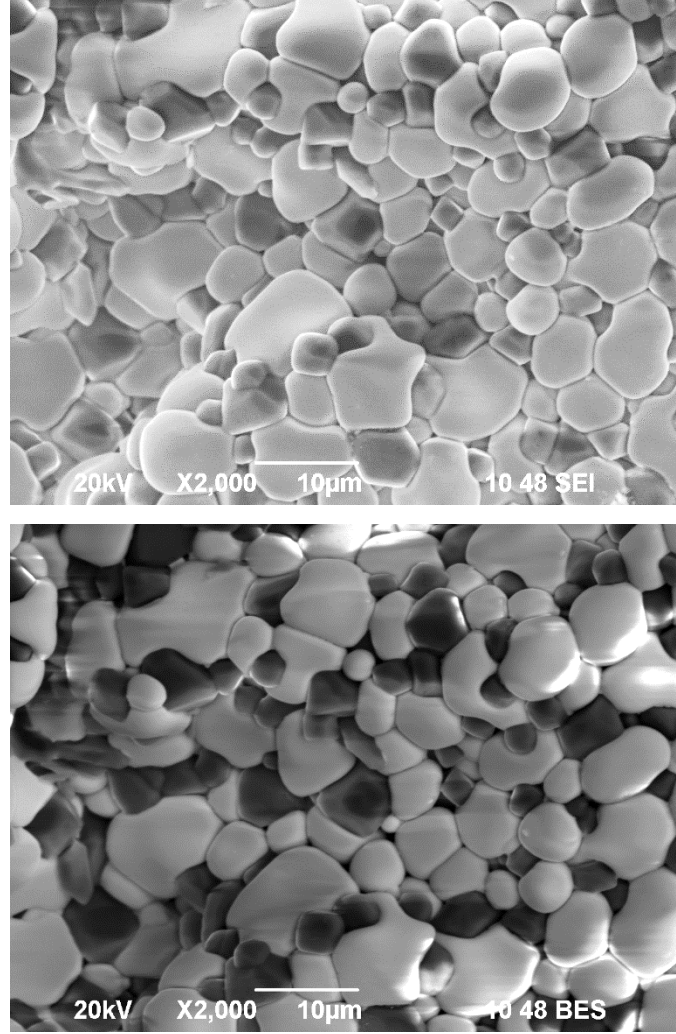
b



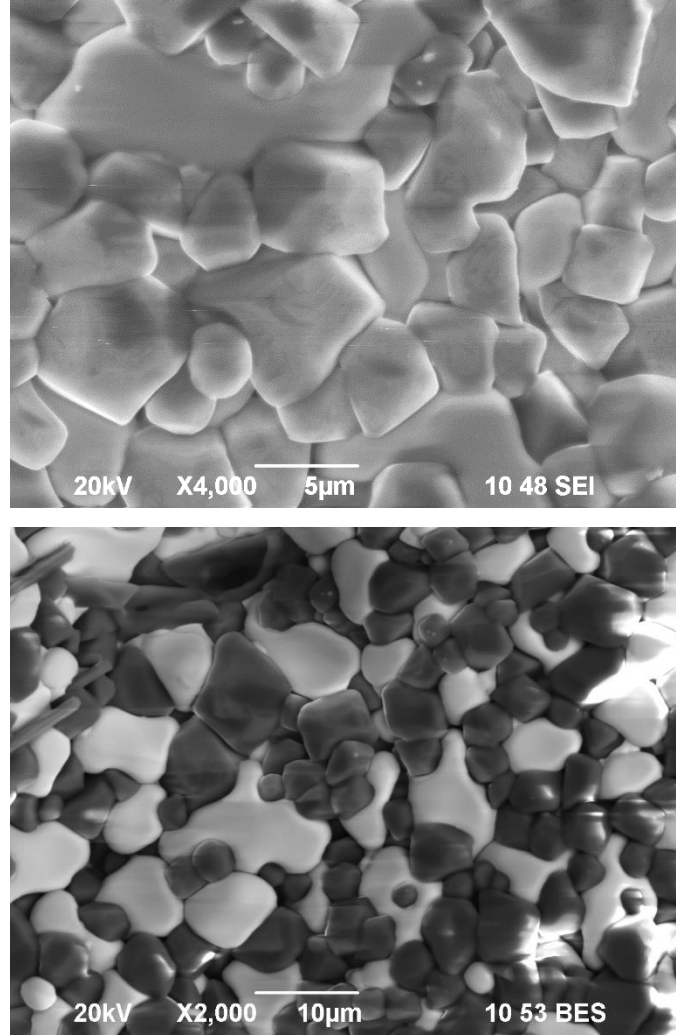
c

Şekil 4.30. ThO_2 'nin $1700\text{ }^\circ\text{C}$ de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletinin a) dış yüzeyinin SEI, b) dış yüzeyinin BES, c) iç yüzeyinin SEI görüntüsü

Şekil 4.31 de %15 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de sırasıyla 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucunda yüzeylerinin incelenmesiyle ortaya çıkan SEM görüntüleri verilmiştir. 4 saat süreyle sinterlemenin sonucunda yüzeydeki porozitelerin diğerlerine nazaran çokluğu dikkat çekmektedir.

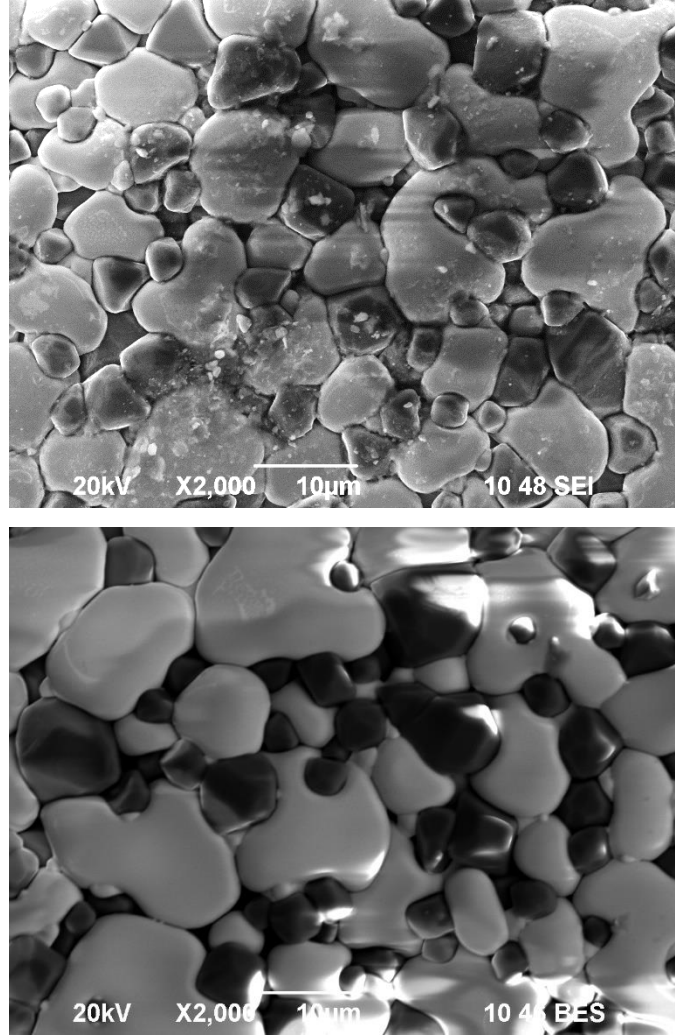


Şekil 4.31. %15 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C’de 4 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri



Şekil 4.32. % 15 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 8 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri

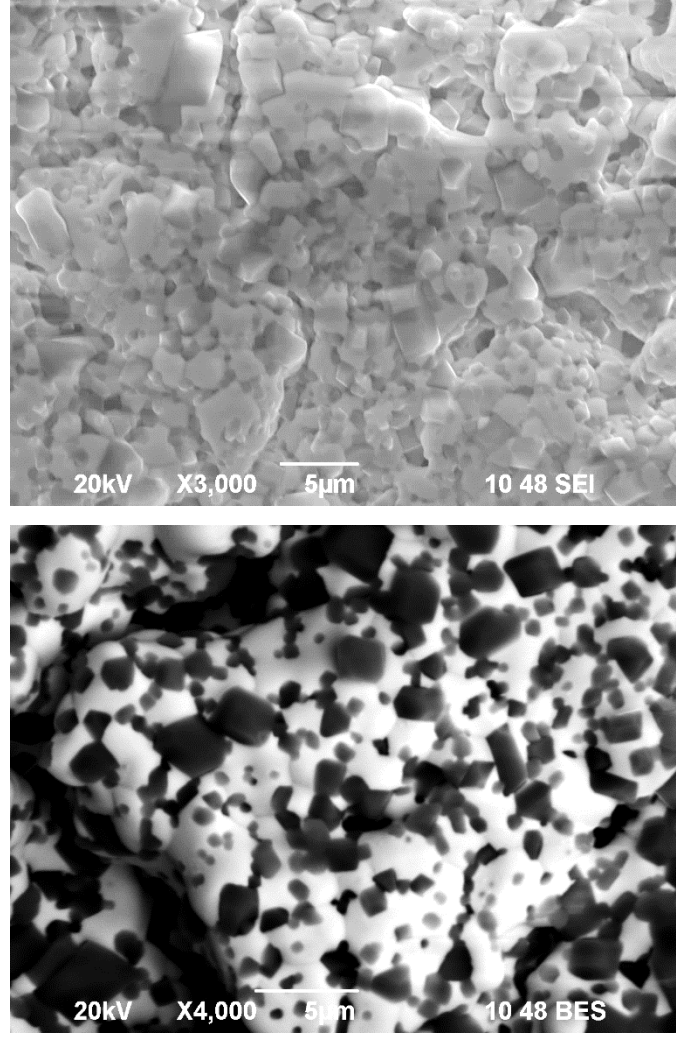
Şekil 4.32'de % 15 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C'de sırasıyla 8 saat süreyle sinterlenmesi sonucunda yüzeylerinin incelenmesiyle ortaya çıkan SEM görüntüleri verilmiştir. Sinterleme süresi 8 saate çıkınca porozitenin azaldığı, hatta şekilde beyaz tanelerle gözlemlenen ThO₂-CeO₂ ağırlıklı tanelerin yüzey boşluklarına diğer alüminyum oksit-magnezyum oksit ağırlıklı yapıların yerleştiği gözlemlenmektedir.



Şekil 4.33. %15 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C’de 16 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri

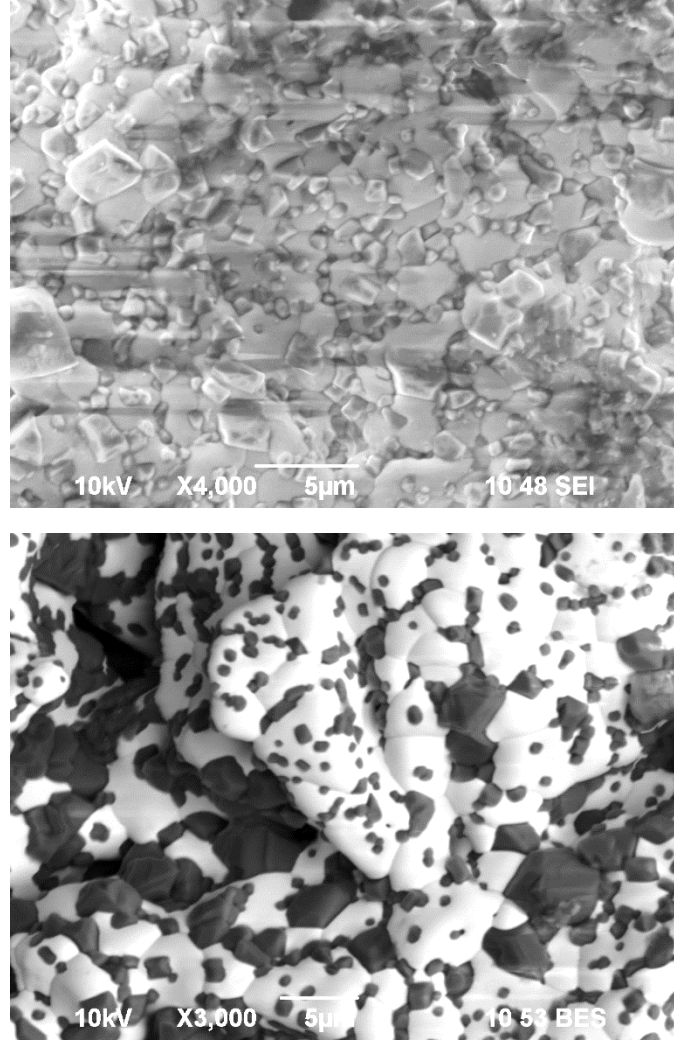
Şekil 4.33’de ise %15 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de sırasıyla 16 saat süreyle sinterlenmesi sonucunda yüzeylerinin incelenmesiyle ortaya çıkan SEM görüntüleri verilmiştir. 16 saat sinterleme sonucunda da 8 saat sinterlemeye nazaran porozitenin azaldığı görülmektedir. Sinterleme süresi arttıkça poroziteler azalmış ve yoğunlukta artış meydana gelmiştir.

Şekil 4.34 ve 4.35’de %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de sırasıyla 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucunda yüzeylerinin incelenmesiyle ortaya çıkan SEM görüntüleri verilmiştir ve sinterleme süresinin etkilerinin gözlemlenmesi amaçlanmıştır. 4 saat sinterleme süresi ile 8 saat sinterleme süresinin arasında hemen hemen önemli bir yoğunluk farkı bulunmamaktadır.



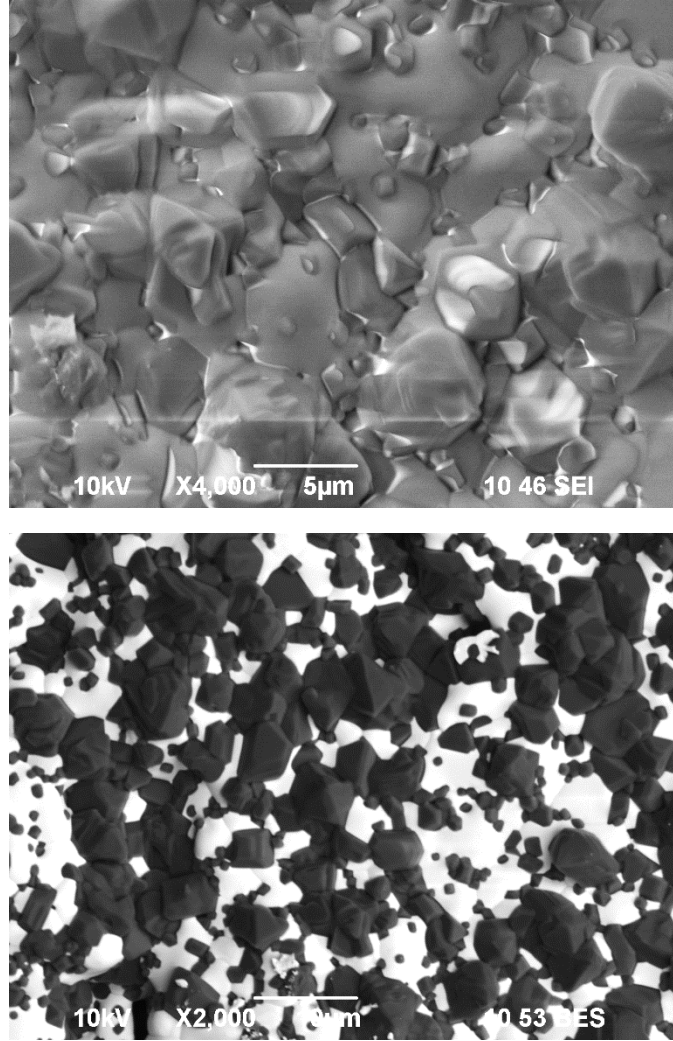
Şekil 4.34. %25 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C’de 4 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri

Şekil 4.36’da %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C’de sırasıyla 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucunda yüzeylerinin incelenmesiyle ortaya çıkan SEM görüntüleri verilmiştir. Sinterleme süresinin 16 saate çıkmasıyla yoğunluk hesaplama bölümünde de görüleceği üzere önemli bir artış meydana gelmiştir (Şekil 4.9).



Şekil 4.35. %25 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C'de 8 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri

%25'lere kadar olan seryum dioksit ilavesi, spesifik yüzey alanı değerlerinin azalmasına rağmen sinterlenebilirlik üzerinde pozitif etkileri vardır. Ancak bu seryum dioksit miktarındaki artış, yüzey alanının azalmasıyla düşen yoğunluğu telafi edecek bir artış değildir [109]. Barrier ve arkadaşları da %20'lere kadar CeO₂ ilavesinin toryumun sinterlenebilirliğini arttırdığını incelemiştir [94]. Aynı özellik seryum dioksidi simüle etmek için kullandığımız plütonyum dioksit için de Kutty ve arkadaşları tarafından incelenmiştir [110].



Şekil 4.36. %25 CeO₂ içeren bileşimin 1700 °C’de 16 saat sinterlenmiş peletlerinin SEM SEI ve BES görüntüleri

Sinterlenen peletlerin elementel analizi (EDS) ise IXRF500 cihazında gerçekleştirilmiştir. Herhangi bir örnek veya örnek üzerindeki ilgili küçük bir alanda elementel kompozisyonu tanımlamak için kullanılan bir tekniktir. EDS ile elementel analiz, örnek üzerine taramalı bir elektron demeti düşürülerek gerçekleştirilir. Bu elektronların bazıları numune içindeki elektronlar ile çarpışarak elektronların yörüngelerinden çıkması sağlanır. Boşalan pozisyonlar x-ışınları yayan yüksek enerjili elektron tarafından doldurulur. Yayılan x-ışınları analize edilerek, numunenin elementel kompozisyonu tespit edilebilmektedir.

Bu çalışmada Şekil 4.37’de görüldüğü gibi IMF peletleri içerisinde bulunan 4 farklı oksit, yoğunluklu olarak ikili şekilde birleşerek yeni taneler meydana getirmiştir. Şekilden de görüleceği üzere beyaz renkli taneler toryum-seryum esaslı yapıyı, siyah

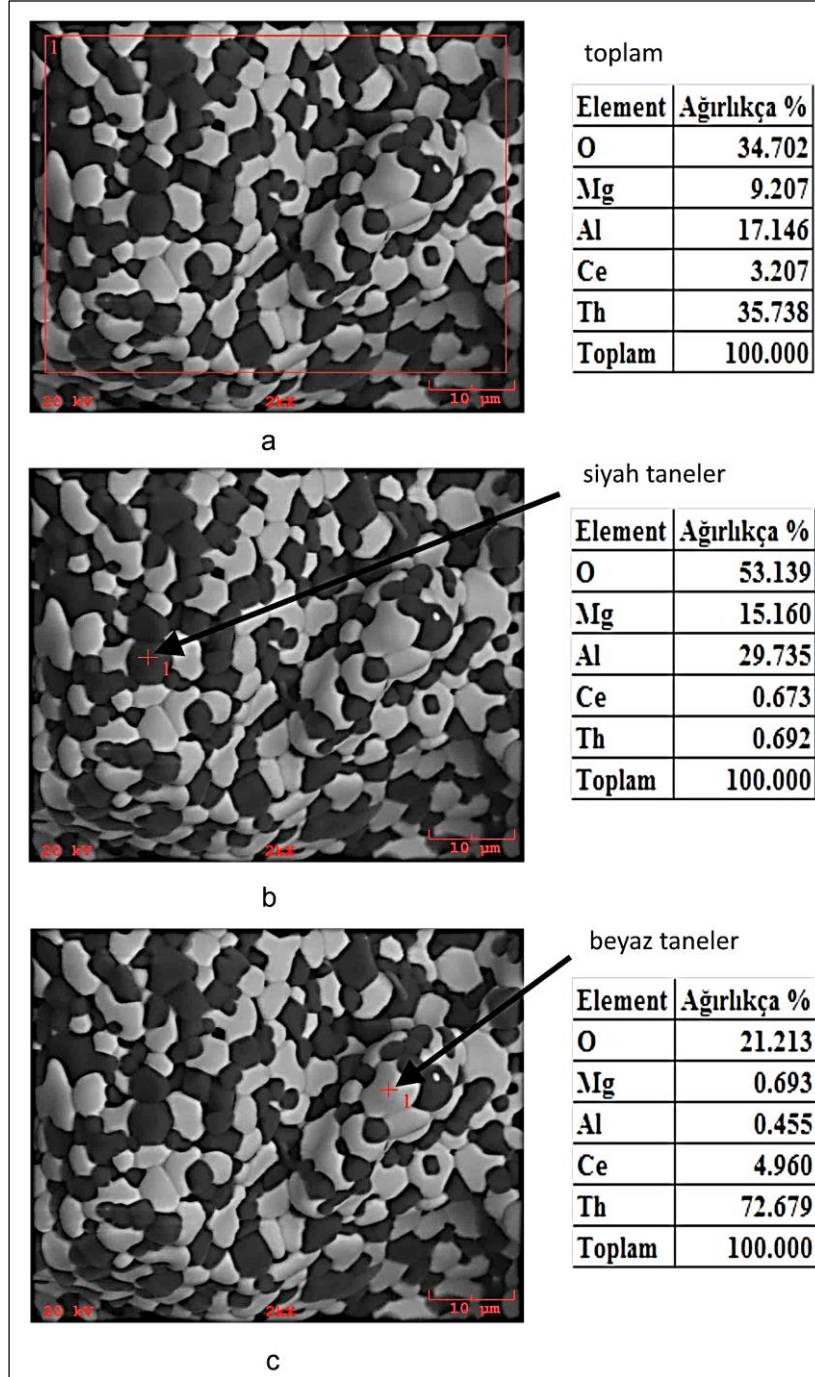
renkli taneler ise magnezyum-alüminyum esaslı yapıyı oluşturmaktadırlar. Magnezyum-alüminyum esaslı yapı bileneceği üzere spinel yapıyı teşkil etmektedir. Burada magnezyum-alüminyum ağırlıklı yapıda bulunan siyah tanelerde spinel yapı ($MgAl_2O_4$) oluşumu söz konusudur.

Nükleer bilimde magnezyum-alüminyum spinel yapısı iyi fiziko-kimyasal kararlılığından, nötron ışınlanmasına karşı direncinden ve termal iletkenlik değerinin yüksekliğinden dolayı en çok incelenen inert matriks yapılardan birisidir [111]. IMF ve ROX yakıtlarında inert matrix bir yapı olarak spinel yapının ($MgAl_2O_4$) başlıca görevi adı geçen yakıtların termal iletkenliğinin arttırılmasına yardımcı olmasıdır [94]. Nükleer reaktörlerin güvenilirliğinin arttırılması ve nükleer enerjiden kaynaklanan çevresel problemlerin giderilmesi amacıyla inert matriks nükleer yakıt yapımında magnezyum-alüminyum spinel yapı uygulamaları önem kazanmaktadır. Bu yapının kullanılmasındaki hedef aktinitlerin transmutasyonu (dönüştürülmesi) ve radyoaktif atık izolasyonu için matriks oluşturulmasıdır [112, 113].

Minör aktinitler (özellikle Cm, Np ve Am) nükleer reaktörlerde yanma sonucu meydana gelen önemli bozunma ürünleridir ve bu ürünler nihai bertaraf için uzun dönem riskleri de belirleyici unsurlar olmuşlardır [114].

Magnezyum-alüminyum spinel yapısı nötron yakalama sonucu ya da nükleer reaktördeki fisyon sonucu ortaya çıkan minör aktinitlerin dönüştürülmesinde kullanılabilecek önemli bir matriks malzeme olarak dikkat çekmektedir. Yüksek radyotoksik orana sahip transuranyum elementlerinden (Np, Am, Cm,) ve dahası uzun ömürlü fisyon ürünlerinin (^{99}Tc , ^{129}I) elimine edilmesi, nükleer enerjinin geleceği için önemli yer teşkil etmektedir. Bu yüksek seviyeli atıklardan kurtulmanın yollarından bir tanesi güç reaktöründe fisyon sonucu oluşmasını müteakip kimyasal bir proses ile dönüşümünün sağlanmasıdır. Eğer elementler bu dönüşüm esnasında yeni aktinitler üretmeyecekse bu kısmen efektif bir yol olarak değerlendirilebilir. Magnezyum-alüminyum spinel yapısı nükleer reaktör yakıtlarında inert matriks olarak olması gereken kriterleri yerine getirdiğinden matriks malzeme olarak kullanıma kazandırılabilir. Spinel yapı şimdiki kullanılan mevcut UO_2 yakıtlarına göre daha iyi termal iletkenlik özelliği göstermektedir. Yüksek ergime sıcaklığı ve nötron

ışınlanması esnasında kararlı bir davranış sergilemesi ekstra özellikler olarak ön plana çıkmaktadır [115, 116].



Şekil 4.37. %5 CeO₂ içeren IMF 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmiş peletinin elemental analizi a) toplam yüzey, b) siyah taneler, c) beyaz taneler

Spinel yapı nükleer reaktörlerde radyotoksik aktinitlerin transmutasyonu için önemli bir adaydır. Uzun ömürlü olan (Np, Am ve Cm) gibi minör aktinitlerin ayrıştırılması veya dönüştürülmesi nükleer reaktörde nötronların etkileşimi ile gerçekleştirilebilir. Nitekim amerikyumun nükleer reaktörlerde transmutasyonu birçok uluslararası programlarda çalışılmıştır (EFFTRA-Experimeantal Feasibility of Targets for Transmutation-France, JRC-ITU-FZK-Germany, vb). Termal ve mekanik davranışları, kaplama ve soğutma suyu ile olan uyumluluğu ve radyasyona karşı dayanımı özelliklerine bakılarak birçok malzeme inert matriks olarak incelenmiştir. Bunlardan en önde geleni nötron ışınlarına karşı üst düzey bir kararlılık gösteren spinel yapı $MgAl_2O_4$ bileşimidir. Nükleer reaktörde operasyon aşamasında matriks malzeme fisyon ürünlerinin etkisine maruz kalır. Bunların birçoğu açığa çıkan gaz ürünlerdir ve bu gazlar yakıt çubuğunda depolanmak zorundadır. Çok yüksek miktarlarda gaz ürünleri spinel esaslı yapı içerisinde kalabilir [117, 118, 119].

Akie ve arkadaşları tarafından yapılan bir çalışmada iki farklı çoklu bileşim sistemi üzerinde deneyler yapmıştır. Bunlardan biri $PuO_2-ThO_2-Al_2O_3-MgO$, diğeri ise $PuO_2-ZrO_2-Al_2O_3-MgO$ sistemleridir. Bu yakıtın içermiş olduğu mineral benzeri bileşiklerin kararlı bir yapıda olmalarından dolayı fazla plütonyumun jeolojik olarak bertaraf edilmesi konusunda uygun olduğunu gözlemlemişlerdir [120].

BÖLÜM 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada sol-gel prosesinin dış jelasyon tekniği kullanılarak toryum esaslı inert matriks bir malzeme içerikli nükleer yakıt peletlerinin elde edilmesi amaçlanmıştır. Deneyde toryum nitrat ($\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$), seryum nitrat ($\text{CeN}_4\text{O}_{12}$), magnezyum nitrat ($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ve alüminyum nitrat ($\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) başlangıç malzemesi olarak kullanılmıştır. Bütün başlangıç malzemelerinden uygun şartlarda distile su ile çözelti hazırlanmıştır. Bu başlangıç çözeltisinden istenilen şekilde jel üretiminin sağlanabilmesi amacıyla çözeltiye viskozitesini arttırmak için polivinil alkol (PVA), modifiye edici olarak da tetra hedra fulfuril alkol (THFA) eklenmiştir. %10'luk olarak hazırlanan PVA çözeltisinin oranı %20, THFA oranı ise %30 kadardır. Deneyde seryum dioksit, yüksek radyasyon aktivitesine sahip plütonyum dioksitin yerine kullanılmıştır. Seryum dioksitin ilavesinin etkilerini görmek amacıyla sırasıyla %5, 15 ve 25 olacak şekilde farklı bileşimler hazırlanmıştır. Seryum dioksit arttıkça ThO_2 'in yüzdesi düşürülmüştür. Aynı deney katışıksız ThO_2 için de yapılmıştır ve referans değer olarak kullanılmıştır. Besleme çözeltisi hazırlandıktan sonra deney düzeneğinde elde edilen jellerin biriktirildiği amonyak çözeltisi hazırlanmıştır. Deney düzeneği için gerekli çalışmalar yapılmış; besleme çözeltisinden uygun şekilde jel elde etmek amacıyla damlacık oluşumu ve ön sertleşme için gerekli incelemeler sonucunda optimum koşullar belirlenerek; besleme tankı, gaz girişleri ve çıkışları, ön sertleşme ortamı, jelleşme ortamı ve jellerin birikme ortamı tasarlanmıştır. Jel üretimi için yapılan denemelerin üçüncüsünde istenen sonuca ulaşılmış ve uygun deney düzenek imali gerçekleştirilmiştir.

Sol-gel prosesinin dış jelasyon tekniği ile deney düzeneğinden geçirilen besleme çözeltisinden elde edilen jeller yaşlandırma, yıkama, kurutma aşamalarından geçirilmiştir. Yaşlandırma amonyak çözeltisi içerisinde 24 saat bekletilme ile yıkama ise izopropil alkol ile gerçekleştirilmiştir. Kurutma yavaş bir ısı rejimi ile $50\text{ }^\circ\text{C}$ 'de

yapılmıştır. Elde edilen jel öncelikle TG/DTA analizi yapılarak termal davranışları incelenmiştir. Kurutulan jeller sırasıyla 100-150-350-500 -1000 °C’de ısıtılma tabii tutulmuşlardır. Her ısıtılma işlemi sonrası karakterizasyon incelemeleri (XRD, SEM) yapılmıştır. XRD ile kristal parametreleri hesaplanmış ve literatürle olan uyumu irdelenmiştir.

Isıtılma işlemi tabii tutulmuş tozların XRD grafikleri incelenmiş ve buna göre düşük sıcaklıklarda kristal yapının oluşmadığı, 1000 °C civarında ise XRD piklerinin daha belirgin şekilde olduğu gözlemlenmiştir. Referans malzememiz olan katışıksız ThO₂ ile yapılan karşılaştırma neticesinde; 1000 °C’de kalsine edilen saf ThO₂ tozlarının kristal yapısının bu sıcaklıkta oluştuğu, ancak diğer IMF bileşiklerinin henüz bu sıcaklıkta kristalize olmadığı sonucuna ulaşılmıştır. Bu tozların kristal parametreleri incelendiğinde ise saf ThO₂, %5 CeO₂, %15 CeO₂ ve %25 CeO₂, içeren IMF tozlarının birim hücre boyutlarının sırasıyla 5,5527 Å, 5,5144 Å 5,5144 Å 5,4774 Å değerlerinde olduğu saptanmıştır. Buna göre toryum içeriği arttıkça birim hücre boyutları da artış göstermektedir. Kristal yapı içerisinde toryum daha fazla yer kaplamaktadır.

1000 °C’de kalsinasyon sonucu elde edilen oksit tozlar 6 mm çapında kalıp kullanılarak 500 MPa basınçla tek yönlü olarak sıkıştırılarak pelet haline getirilmişlerdir. Peletlerin kalıptan kolay çıkartılabilmesini sağlamak için kalıp, stearik asit çözeltisi ile yağlanmıştır. Peletler değişik sıcaklıklarda ve sürelerde sinterlemeye tabii tutulmuş ve davranışları incelenmiştir. Elde edilen peletlere karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır. Ham peletlerin geometrik yoğunlukları, sinterlenmiş peletlerin geometrik ve daldırma yoğunluk değerleri hesaplanmış ve porozite değerleri değerlendirilmiştir. 1500 °C’de dilatometrik analiz yapılarak peletin davranışları incelenmiştir. Değişik sıcaklık ve sürelerde sinterlenmiş peletlerin SEM görüntüleri incelenmiş ve tane oluşumu gözlemlenmiştir.

Sinterlenen peletlerin XRD incelemelerine göre yüksek sıcaklıklarda sinterlenen peletlerin grafiklerinde piklerin şiddetini arttığı ve daraldığı gözlemlenmiştir. Birim hücre boyutlarının sinterleme sıcaklığı ile değişimi hesaplanmıştır. Buna göre 1200 °C’de 5,5779 Å olan birim hücre boyutu 1700 °C’de 5,5700 Å olarak hesaplanmıştır.

%5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin sinterleme sıcaklık değişimine göre yapılan bu inceleme sonucunda kristalit boyutları da hesaplanmıştır. 1200 °C'de 790,37 Å olan kristalit boyutu 1700 °C'de 914,02 Å olarak hesaplanmıştır. XRD incelemelerinde CeO₂ ilavesinin etkileri de araştırılmıştır. Saf ThO₂ ile %5, 15 ve 25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin 1700 °C'de 4 saat süreyle sinterlenmesi sonucu elde edilen peletlerin X-ışını kırınım grafiklerinden birim hücre boyutu ve kristalit boyutları hesaplamaları da yapılmıştır. Birim hücre boyutları sırasıyla 5,5759 Å, 5,5700 Å, 5,5759 Å, 5,5641 Å olarak hesaplanmıştır.

Sol-gel prosesiyle imal edilen oksit tozların sıkıştırılması sonucu elde edilen peletlerin geometrik ham yoğunlukları hesaplanmıştır. Katıksız ThO₂ peletlerin ham yoğunlukları yaklaşık %60 civarında iken IMF peletlerinin ise ham yoğunlukları yaklaşık %35-40 civarındadır. Eklenen bileşimlerin düşük yoğunluklu, yüksek poroziteli olduğunu göstermektedir. Değişik sıcaklık ve sürelerde sinterlenen peletlerin hem geometrik hem de daldırma yöntemi ile yoğunlukları hesaplanmıştır. Buna göre %5 CeO₂ katkılı 1200 ile 1700 °C arasında sinterlenmiş IMF peletlerinin yoğunlukları geometrik olarak %39-40 arasında iken daldırma yoğunlukları %52-84 arasında değişmiştir. Buna karşın saf ThO₂ peletlerini yoğunlukları da geometrik olarak %49-55 arasında, daldırma yoğunluk değerleri ise %60-88 arasında değişmiştir. Yoğunluk incelemelerinde sıcaklığın yanında CeO₂ ilavesinin ve sinterleme sürelerinin de etkileri irdelenmiştir.

Sol-gel prosesi ile elde edilen jelin TG/DTA incelemeleri 1000 °C sıcaklığa kadar 10 °C/dak ısıtma hızıyla yapılmıştır. Elde edilen ThO₂ tozu da incelenmiştir. Her iki inceleme sonucunda TG/DTA eğrilerinde 100 °C civarında suyun, 220 °C civarında ise kristal suyun ve bileşiklerin yapıdan uzaklaştığı gözlemlenmiştir.

Presleme sonucu elde edilen peletlerin dilatometrik analizleri ise 1500 °C'de 4 saat süreyle argon atmosferinde yapılmıştır. Burada ısıtma hızı 10 °C/dak olarak belirlenmiştir. Bu sonuçlara göre saf ThO₂ peletlerinde %8 kadar büzülme oranı gözlemlenirken %5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde %26, %15 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde %11, %25 CeO₂ katkılı IMF peletlerinde ise %12 kadar büzülme

gözlemlenmiştir. %25'lere kadar seryum dioksit ilavesinin sinterlenebilirliği arttırdığı bilinmektedir [89].

Değişik sıcaklık ve sürelerde sinterlenen peletlerin SEM ve EDS incelemeleri de yapılmıştır. 1200, 1300, 1400, 1500, 1600 ve 1700 °C'de sinterlenmiş %5 CeO₂ katkılı IMF peletlerinin sinterleme sıcaklığı ile mikroyapılarındaki değişim gözlemlenmiştir. Buna göre düşük sıcaklıklarda tane yapılarının henüz oluşmadığı dolayısıyla sinterleme sıcaklığının yetersiz kaldığı sonucuna varılmıştır. 1700 °C'de ise tane yapısı, tane sınırları ve homojen bir yapı net bir şekilde gözlemlenmiştir ve sinterleme için uygun sıcaklık olduğu düşünülmektedir. İncelemeler hem peletin dış yüzeyinden hem de iç yüzeyinden olmak üzere yapılmıştır. Hem dış yüzey hem de iç yüzey görüntülerinde tane yapısı, tane sınırları ve gözenekler görülmektedir. Görüntüler saf ThO₂ görüntüleri ile kıyaslamalı değerlendirilmiştir. Bunun sonucuna göre yoğunluk analizlerinde de hesaplandığı gibi saf ThO₂ peletlerinin IMF peletlerine göre daha yoğun olduğu gözlemlenmektedir.

SEM incelemelerinin özellikle BES görüntülerine göre yapıda iki farklı oluşum meydana geldiği görülmüştür. Alüminyum oksit ve magnezyum oksit bileşiklerinin bir araya gelip tane yapısını oluşturduğu, diğer taraftan ThO₂ ve CeO₂ bileşiklerinin ise bir araya gelip başka bir tane yapısı oluşturduğu gözlemlenmektedir. Elementel analiz (EDS) sonuçları da bunu göstermektedir. Magnezyum ve alüminyum oksit bir araya gelerek spinel yapıyı (MgAl₂O₄) meydana getirmişlerdir.

Çalışmalarımızda sol-gel prosesinin dış jelasyon yöntemi ile toz üretimi ve karakterizasyonu hedeflenmiştir. Toryum nitrat esaslı 4 farklı besleme çözeltisi üzerinden deneyler başarılı bir şekilde yapılmış olup, elde edilen neticeler kıyaslamalı olarak değerlendirilmiştir.

Nükleer enerjiye geçiş aşamasında bulunan ülkemiz için önümüzdeki yıllar nükleer teknoloji açısından gelişim gösterilecek yıllar olarak değerlendirilmektedir. Toryum kaynakları açısından oldukça zengin olan ülkemizde de bu yönde nükleer araştırma ve geliştirme faaliyetlerinin de artış göstermesi beklenmektedir.

KAYNAKLAR

- [1] <http://www.iea.org>, Eriřim Tarihi: 05.06.2014.
- [2] Enerji Raporu, World Energy Council, Dünya Enerji Konseyi Türk Milli Komitesi, Aralık 2013, Ankara.
- [3] Güvenek, B., Alptekin, V., Enerji tüketimi ve büyüme ilişkisi: OECD ülkelerine ilişkin bir panel veri analizi, Enerji, Piyasa ve Düzenleme, Cilt 1, Sayı 2, pp. 172-193, 2010.
- [4] Esmer, O., Enerji politikaları, TMMOB Türkiye Enerji Sempozyumu, TMMOB Yayınları, Ankara, 1996.
- [5] Kösekahyaođlu, L., Enerji tüketimi ve büyüme arasında nedensellik ilişkisi, Süleyman Demirel Üniversitesi, Uluslararası Davraz Kongresi, 2009.
- [6] <http://enerjitr.com>, Eriřim Tarihi: 03.07.2014.
- [7] Günümüzde Nükleer Enerji, Türkiye Atom Enerjisi Kurumu, Teknik Rapor, 2010.
- [8] www.nukleer.web.tr, Eriřim Tarihi: 12.07.2014.
- [9] Nükleer Santraller, World Energy Council, Dünya Enerji Konseyi Türk Milli Komitesi, Ankara, pp. 1-50, 2010.
- [10] I. Ulusal Nükleer Yakıt Teknolojisi Sempozyumu Bildiriler Kitabı, TAEK- Çekmece Nükleer Arařtırma ve Eđitim Merkezi, pp. 1-32, İstanbul, 1997.
- [11] www.iaea.org, Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı Resmi Web Sitesi, Eriřim Tarihi: 11.07.2014.
- [12] Yaylı A., UO₂ Nükleer yakıt çevrimleri, TAEK-Çekmece Nükleer Arařtırma ve Eđitim Merkezi Teknik Rapor, İstanbul, 2011.
- [13] Türkiye Enerji Politikalarımız, Enerji ve Tabii Kaynaklar Bakanlığı Bildirgesi, Ankara, Kasım 2011.
- [14] www.wna.org, Thorium (September 2014), Eriřim Tarihi: 05.12.2014.

- [15] Kaya, M., Global and Turkish perspectives of thorium fuel for nuclear energy, Thorium Energy Conference (ThEC13), CERN Globe of Science and Innovation, Switzerland, 2013.
- [16] Toryum arařtırmaları etüdü projesi sonuç raporu, Devlet Planlama Teřkilatı, Ankara, 1993-1995.
- [17] Adams, R.E., Douglas, D.A., Properties of thorium its alloys and its compounds, OAK Ridge National Laboratory, Tecnical Report, USA, 1995.
- [18] Jiang, Y., Kan, W., Gong, S., Thorium fuel cycle of a thorium based advanced nuclear energy system, Progress in Nuclear Energy, 1: 71-84, 2004.
- [19] Use of thorium in the nuclear fuel cycle, GIF (GenIV International Forum), Symposium Publications, 2010.
- [20] Balakrishna, P., ThO₂ and (U,Th)O₂ processing-a review, Natural Science, 4:943-949, 2012.
- [21] Weissert, L.R., Schileo, G., Fabrication of fuel elements, American Nuclear Society, s:33-41, 1968.
- [22] Kang, K.W., Yang, J.H., (Th,U)O₂ pellets: fabrication and thermal properties, Journal of Korean Nuclear Society, 35:299-308, 2003.
- [23] Todosow, M., Galperin, A. Herring, S. Kazimi, M. Downar, T. Morozov, A., Use of thorium in light water reactors, Nuclear Technology, 151(2):168-176, 2005.
- [24] Lau, C.W. Improved PWR core characteristic with thorium containing fuel, Thesis for PhD, Chalmers University of Technology, Sweden, 2014.
- [25] Maitra, R., Thorium: preferred nuclear fuel of the future, Nuclear Report, 2005.
- [26] Anantharaman, K., Shrivakumar, V., Saha D., Utilisation of thorium in reactors, Journal of Nuclear Materials, 388: 19-21, 2008.
- [27] Rosenstock, W., Schumann, O., Thorium for nuclear energy-a proliferation risk?, Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich Technische Trendanalysen, Euskirchen, Germany, 2013.
- [28] www.taek.gov.tr, Eriřim Tarihi: 05.06.2014.
- [29] www.iaea.org, Eriřim Tarihi: 08.04.2014.

- [30] The thorium fuel cycle, Australian Nuclear Science And Technology Organisation, Technical Report, 2013.
- [31] Margeanu, C.A., Rizoiu, A., New perspective on using thorium based fuel in CANDU reactors, Journal of Nuclear Research and Development 1, 2011.
- [32] Lung, M., Gremm, O., Perspectives on the thorium fuel cycle, Nuclear Engineering and Design, 180: 133-146, 1998.
- [33] Thorium fuel cycle-potential benefits and challenges, IAEA (International Atomic Energy Agency) TECDOC-1450, 2005.
- [34] Basu, T.K., Srinivasan, M., Thorium fuel cycle development in India, Bhabha Atomic Research Center, Technical Report, Bombay, 1990.
- [35] Todosow, M., Thorium based fuel for PWRs, Thorium Energy Conference, New York City, 2011.
- [36] Thorium fuel utilization: options and trends, IAEA (International Atomic Energy Agency) TECDOC-1319, pp. 21-38, 2002.
- [37] On the practical use of lightbridge thorium based fuels for nuclear power generation, USA Lightbridge Corporation, Revision 1, 2010.
- [38] Eschbach, E.A., Deonigi, D.E., Possible optimum use of thorium and uranium employing crossed-progeny fuel cycles, Second International Symposium on Thorium Fuel Cycle, Gatlinburg, USA, 2003.
- [39] Ünak, T., What is The potential use of thorium in the future energy production technology, Progress in Nuclear Energy, 37:137-144, 2000.
- [40] Demirbaş, A., Options and trends of thorium fuel utilization, Energy Sources, 27:597-603, 2005.
- [41] Capturing thorium-fuelled ADSR energy technology for Britain, THOREA (Thorium Energy Amplifier Association), Technical Report, 2010.
- [42] Howarth, P., The thorium fuel cycle, An Independent Assessment by UK National Nuclear Laboratory, 2010.
- [43] Raj, B., Plutonium and the Indian atomic energy programme, Journal of Nuclear Materials, 385: 142-147, 2009.
- [44] Kokadkar, A., Nuclear power in India: an inevitable option for sustainable of a sixth of humanity, World Nuclear Association Annual Symposium, London, 2002.

- [45] Jeong, K.C., Oh, S.C., Kim, Y.K., Lee, Y.W., ADU compound particle preparation for HTGR nuclear fuel in Korea, *Journal of Ind. Eng. Chem.*, 13: 744-750, 2007.
- [46] Lombardi, C., Luzzi, L., Padovani, E., Vettrai, F., Thoria and inert matrix fuels for a sustainable nuclear power, *Progress in Nuclear Energy*, 50: 944-953, 2008.
- [47] Vettrai F., Magnani, G., Torretta, T.L., Marmo, E., Preliminary fabrication and characterization of inert matrix fuels for plutonium disposition in light water reactors, *Journal of Nuclear Materials*, 274: 23-33, 1999.
- [48] A Review by the OECD/NEA Working Party on the Physics of Plutonium Fuels and Innovative Fuel Cycles (WPPR), Plutonium management in the medium term, Nuclear Energy Agency Organisation For Economic Co-Operation And Development, 2003.
- [49] Schram, R.P.C., Klaassen, F.C., Plutonium management with thorium-based and inert matrix fuel in thermal reactor systems, *Progress in Nuclear Energy*, 49: 617-622, 2007.
- [50] Holliday, K.S., Zirconia-magnesia inert matrix fuel and waste form: synthesis, characterization and chemical performance in an advanced fuel cycle, PhD, University of Nevada, 2009.
- [51] Lee, Y.W., Joung, C.Y., Kim, S.H., Lee, S.C., Inert matrix fuel – a new challenge for material technology in the nuclear fuel cycle, *Metals and Materials*, 7: 159-164, 2001.
- [52] Degueldre, C., Paratte, J.M., Concepts for an inert matrix fuel, an overview, *Journal of Nuclear Materials*, 274:1-6, 1999.
- [53] www.world-nuclear.org, Erişim Tarihi: 05.01.2015.
- [54] Osmanlioğlu, A.E., Radyoaktif atık yönetimi, Nobel Yayınevi, sh.150-160, 2014.
- [55] Degueldre, C., Yamashita, T., Inert matrix fuel strategies in the nuclear fuel cycle, *Journal of Nuclear Materials*, 319: 1-5, 2003.
- [56] Osaka, M., Miwa, S., Tachi, Y., Simple fabrication process for CeO₂-MgO composites as surrogate for actinide-containing target for use in nuclear fuel, *Ceramics International*, 32:659-663, 2006.
- [57] Konings, R.J.M., Kloosterman, J.L., A view of strategies for transmutation of actinides, *Progress in Nuclear Energy*, 38:331-334, 2001.

- [58] Lim, J.Y., Kim, M.H., A nuclear characteristics study of inert matrix fuel for MA transmutation in thermal spectrum, Proceeding of the Korean Autumn Meeting, Korea, 2002.
- [59] Ewing, R.C., Wang, L., Inert matrix fuel: actinide “burning” and direct disposal, Final Project Report, Department of Nuclear Engineering and Radiological Sciences, University of Michigan, 2002.
- [60] Ledergerber, G., Degueldre, C., Heimgartner, P., Pouchon, M.A., Kasemeyer, U., Inert matrix fuel for the utilization of plutonium, Progress in Nuclear Energy, 38:301-308, 2001.
- [61] Finucane, J.S., Ledergerber, G., Methodology to identify proliferation concerns in nuclear fuel cycle activities, Science and Global Security, Prince University, 2002.
- [62] Haas, D., Hamilton, D.J., Fuel cycle strategies and plutonium management in Europe, Progress in Nuclear Energy, 49: 574-582, 2007.
- [63] Verrall, R.A, Andrews, H.R., Chan, P.S.W., George, I.M., Candu inert matrix fuel, IAEA Tech Doc, 30/057, 1999.
- [64] Doriath, J.Y., Grouiller J.P., Pavageau, J., Scenario with inert matrix fuel: a specific study, Progress in Nuclear Energy, 38: 419-422, 2001.
- [65] Akie, H., Takano, T., Muromura, T., Nitani, N., A new idea of excess plutonium one-through burning in light water reactor, Progress in Nuclear Energy, 29:345-352, 1995.
- [66] Allbright, D., Berkhout, F., Walker, W., World inventory of plutonium and highly enriched uranium, Oxford University Press, pp. 23-46, 1992.
- [67] Yaylı, A. Nükleer yakıt raporu, TAEK Teknik Doküman, Mayıs 2013.
- [68] Sease, J:D:, Pratt, R., B., Latts, A., L., Remote fabrication of thorium fuels, OAK National Laboratory, ORNL-TM-1501, USA, 1996.
- [69] Glodeanu, F., Fabrication of high density thoria-urania fuel pellets, Journal of nuclear materials, 126:181-183, 1984.
- [70] Zimmer, E., Ringel, H., D., The external gelation of thorium process for preparation of ThO₂ and (ThU)O₂ fuels, Nuclear Technology, 45:287-298, 1989.
- [71] Mathews, R., B., Hart, P., E., Nuclear fuel pellets fabricated from gel-derived microspheres, Journal of Nuclear Materials, 92:207-216, 1990.
- [72] Pope, E.J.A., Sakka, S., Klein, L.C., Sol-Gel science and technology, Ceramic Transactions, V:55, The American Ceramic Society, 1995.

- [73] Yaylı, A., Çekmece Nükleer Araştırma Merkezinde sol-gel çalışmaları, TAEK Teknik Rapor, Mart 2012.
- [74] Vaidya, V.N., Nagarajan, K., Sol-gel process for nuclear fuel fabrication, Sol-gel Processing for Conventional and Alternative Energy, s:341-373, 2012.
- [75] Deptula, A., Brykala, M., Lada, W., Olczak, T., Synthesis of uranium and thorium dioxides by complex sol-gel process, First ACSEPT International Workshop, Portugal, 2010.
- [76] Del, G.D., Cul, C.H., Mattus, A.S. Icenhour, L.K. Felker, D.F. Williams, Fuel fabrication development surrogate sphere-pac rodlet, OAK Ridge National Laboratory, USA, 2005.
- [77] Sood, D.D., The role of sol-gel process for nuclear fuels-an overview, Journal of Sol-Gel Science and Technology, 10:2273, 2010.
- [78] Vaidya, V.N., Sol-gel process for ceramic nuclear fuels, BARC Newsletter-Fuel Chemistry Division, India, 2006.
- [79] Matthews, R.B., Hart, P.E., Nuclear fuel pellets fabricated from gel derived microspheres, Journal of Nuclear Materials, 92:207-216, 1987.
- [80] Kumar, A., Rao, T.V., Mukerjee, S.K., Vaidya, V.N., Recycling of chemicals from alkaline waste generated during preparation of UO_3 microspheres by sol-gel process, Journal of Nuclear Materials, 350: 254-263, 2006.
- [81] Kanij, J.B.W., Noothout, A.J., Votocek, O., (U)VI process for the production of UO_2 microspheres, in sol-gel process for fuel fabrication, IAEA Report-161, pp. 185-195, Vienna, 1974.
- [82] Kumar, A., Radhakrishna, J., Kumar, N., Deb, A.C., Studies on preparation of (U,Pu) O_2 microspheres by internal gelation process, Journal of Nuclear Materials, 434: 162-169, 2013.
- [83] Fu, X., Liang, T., Tang, Y. Xu, Z., Tang, C., Preparation of UO_2 kernel for HTR-10 fuel element, Journal of Nuclear Science and Technology, 41:943-948, 2004.
- [84] Zimmer, E., Ganguly, C., Borchardt, J., Langen, H., SGMP-an advanced method for fabrication of UO_2 and MOX pellets, Journal of Nuclear Material, 152:169-177, 1988.
- [85] Kumar, N., Pai, R.V., Joshi, J.K., Mukerjee, S.K., Preparation of (U,Pu) O_2 pellets through sol-gel microsphere pelletisation technique, Journal of Nuclear Materials, 359: 69-79, 2006.

- [86] Ganguly, C., Hedge, P.V., Sol-gel microsphere pelletisation for fabrication of (U,Pu)O₂, (U,Pu)C and (U,Pu)N fuel pellets for the prototype fast breeder reactor in India, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 9: 285-294, 1997.
- [87] Icenhour, A.S., Williams, D.F., Sphere-pac evaluation for transmutation, Oak Ridge National Laboratory Report, TM:41, USA, 2005.
- [88] Vaidya, V.N., Status of sol-gel process for nuclear fuels, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 46: 369-381, 2008.
- [89] Ferreira, R.A.N., Jordao, E., A model for the behavior of thorium uranium mixed oxide kernels in the pelletizing process, *Journal of Nuclear Materials*, 350: 271-283, 2006.
- [90] Mathews, M.D., Ambekar, B.R., Tyagi, A.K., Bulk and lattice thermal expansion of (Th-Ce)O_x, *Journal of Nuclear Materials*, 280:246, 2000.
- [91] Lee, Y.W., Kim, H.S., Young, C.Y., Na, S.H., Ledergerber, G., Heimharbner, P., Pouchon, M., Burghartz, M., Simulated inert matrix fuel with different powders by dry milling method, *Journal of Nuclear Materials*, 274:7, 1999.
- [92] Marra, J.C., Cozzi, A.D., Pierce, R.A., Pareizs, J.M., Jurgensen, A.R., Missimer, D.M., Cerium is a surrogate in the plutonium immobilized form, WSRC-MS, 2001.
- [93] Ganguly, C., Second international conference on CANDU fuel, Pembroke, p.398, Canada, 1989.
- [94] Barrier, D., Bukaemskiy, A.A., Modolo, G., Thoria a quasi-inert matrix for actinide dispositions, *Journal of Nuclear Materials*, 352: 357-364, 2006.
- [95] Kutty, T.R.G., Hedge, P.V., Banarjee, J., Khan, K.B., Sengupta, A.K., Jain, G.C., Majumdar, S., Kamath, H.S., Densification behavior of ThO₂-PuO₂ pellets with varying PuO₂ content using dilatometry, *Journal of Nuclear Materials*, 312:224-235, 2003.
- [96] Kutty, T.G., Khan, K.B., Kutty, P.S., Basak, C., Sengupta, B., Mehrotra, A.K., Densification behavior of sintering kinetics of (U_{0.45}Pu_{0.55}) pellets, *Journal of Nuclear Materials*, 340:113-118, 2004.
- [97] Matthews, R.B., Hart, P.E., Nuclear fuel pellets fabricated from gel derived microspheres, *Journal of Nuclear Materials*, 92:207-216, 1980.
- [98] Yamagishi, S., Takahashi, Y., Shiba, K., Preparation of ThO₂ sols having colloid-size distribution suitable for generation into microspheres, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 217:528-537, 1984.

- [99] Yanagisava, K., Ohmichi, T., Shirasu, N., Muromura, T., Matsuda, T., A study on density, melting point, thermal expansion, creep, thermal diffusivity and thermal conductivity of the simulated rock-like oxide (ROX) fuels, Jaeri-Tech 99-032, Mart 1999.
- [100] Pinheiro, R.B., Lameiras F.S., Peehs, M., Maly, V., Thorium utilization in LWRs, Final Report (1979-1988), KFA Jül-Spez 488: 152, 1988.
- [101] Pepin, J.G., Mccarthy, G.J., Journal of Ceramic Society, 64: 9,511, 1981.
- [102] Tyagi, A.K., Ambekar, B.G., Mathews, M.D., Journal of Alloys and Compound, 337:277, 2002.
- [103] Olsen, S.J., Gerward, L., Kanchana, V., Vaitheeswaran, G., The bulk modulus of ThO₂-an experimental and theoretical study, Journal of Alloys and Compounds, 381:37-40, 2004.
- [104] Chen, C.F., Kelly, J., Asphjell, Q., Papin, P.A., Forsyth, R.T., Guidry, D.R., Safarik, D.J., Liobet, A., Processing of ThO₂/CeO₂ ceramic fuel, Journal of American Ceramic Society, 97:3062-3070, 2014.
- [105] Naik, Y.P., Ramarao, G.A., Banthiya, A., Chaudhary, D., Arora, C., Synthesis and characterization of nano-structured Th_{1-x}Ce_xO₂ mixed oxide, Journal of Thermal Analysis Calorimetry, 107:105-110, 2012.
- [106] Grover, V., Tyagi, A.K., Sub-solidus phase equilibria in the CeO₂-ThO₂-ZrO₂ system, Journal of Nuclear Materials, 305:83-89, 2002.
- [107] Damen, P.M.G., Helium and fission gas behavior in magnesium aluminate spinel and zirconia for actinide transmutation, Ter verkrijging van de grad van doctor, Delft University Press, 2003.
- [108] Freudenreich, W.E., Bakker, K., Kloosterman, J.L., Konings, R.J.M., Physical and chemical properties of some inert matrices for PuO₂ fuel, Technical Report, ECN-R95-030, 1996.
- [109] Yıldız, Ö., Modolo, G., Telle, R., Compactibility and sintering behavior of nanocrystalline (Th-Ce)O_x powders synthesized by co-precipitation process, Journal of Nuclear Material, 377: 396-400, 2008.
- [110] Kutty, T.R.G., Khan, K.B., Hedge, P.V., Sengupta, A.K., Majumdar, S., Purushotham, D.S.C., Densification behavior and sintering kinetics of PuO₂ pellets, Journal of Nuclear Materials, 297: 120-128, 2001.
- [111] Klaassen, F.C., Schram, R.P.C., Bakker, K., Neeft, E.A.C., Spinel inert matrix fuel testing at the HFR Petten, Nuclear Research and Consultancy Group-Institut for Energy, The Netherlands.

- [112] Gabelkov, S.V., Tarasov, R.V., Poltavtsev, N.S., Bereznyak, E.P., Pilipenko, A.V., Mironova, A.G., Makarenko, V.V., Sintering of magnesium-aluminum spinel-inert matrix for isolation of highly active waste, Institute of safety problems of NPP, Ukraine, UDC, 90:107, 2014.
- [113] Akie, H., Takano, H., Neutronic double heterogeneity effect in particle dispersed type inert matrix fuel, Journal of nuclear materials, 352: 256-262, 2006.
- [114] Yıldız, Ö., Characterization of nanocrystalline (Th-Ce)O_x powders synthesized by co-precipitation process, Journal of Nuclear Materials, 366: 266-271, 2007.
- [115] Wiss, T., Matzke, HJ., Heavy ion induced damage in spinel, an inert matrix candidate for the transmutation of minor actinides, Radiation Measurement, 31: 507-514, 1999.
- [116] Chauvin, N., Konings, R.J.M., Matzke, HJ., Optimization of inert matrix fuel concepts for americium transmutation, Journal of Nuclear Materials, 274: 105-111, 1998.
- [117] Fromknecht, R., Hiernaut, J.P., Matzke, HJ., WISS, T., He-ion damage and He-release from spinel MgAl₂O₄, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 166: 263-269, 2000.
- [118] Matzke, HJ., Range, energy loss, energy straggling and damage production for alpha-particles in uranium dioxide, Journal of Nuclear Materials, 270:49-54, 1999.
- [119] Fernandez, A., Haas, D., Konings, R.J.M., Somers, J., Transmutation of actinides, Journal of American Society, 85:694696, 2002.
- [120] Angle, J.P., Nelson, A.T., Men, D., Mecartney, M.L., Thermal measurement of computational simulation of three-phase (CeO₂, MgAl₂O₄, CeMgAl₁₁O₁₉) and four phase (3Y-TZP-Al₂O₃-MgAl₂O₄-LaPO₄) composites as surrogate inert matrix nuclear fuel, Journal of Nuclear Materials, 454:69-76, 2014.

ÖZGEÇMİŞ

İlker Özdemir, 08.12.1978 tarihinde Bursa'da doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Bursa'da tamamladı. 1995 yılında Bursa Tophane Endüstri Meslek Lisesi Elektrik Bölümü'nden mezun oldu. 1996 yılında Sakarya Üniversitesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'ne giriş yaptı ve 2001 yılında mezun oldu. 2001 yılında aynı üniversite ve bölümde yüksek lisans eğitime başlayıp 2003 yılında bitirdi. 2005 yılında ise yine aynı üniversite ve bölümde doktora eğitimine başladı. Halen İstanbul'da bulunan Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'nde Metalurji Mühendisi olarak görev yapmaktadır.