



RADYOAKTIF PERTEKNETAT OKSO ANYONU ADSORPSİYONUNUN TERMODİNAMİK ANALIZI

¹Fatih DEMİR , ²Omer LACIN , ³Burak BASTABAN 

Atatürk Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Erzurum, TÜRKİYE
²olacin@atauni.edu.tr

(Geliş/Received: 04.03.2019; Kabul/Accepted in Revised Form: 13.06.2019)

ÖZ: Kesikli sistemde çalışılan adsorpsiyon tekniği ile aktif karbon üzerine radyoaktif perteknetat okso anyonu ($^{99m}\text{TcO}_4^-$)'nun adsorpsiyon termodinamiğinin incelenmesi amaçlanmıştır. Elde edilen verilerden faydalanarak termodinamik parametreler; $\Delta H^\circ=0,346 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $\Delta S^\circ=0,029 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $\Delta G^\circ= -7,92$ (288 K) ile $-8,78$ (318 K) kJ.mol^{-1} , $\Delta H_x=0,28 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ve standart serbest enerji değerinin sıfır olduğu sıcaklık 12 K olarak hesaplanmıştır. Bu bulgular sonucunda adsorpsiyon prosesinin; fiziksel ve endotermik olarak gerçekleştiği ve 12 K'ın üzerindeki her sıcaklıkta adsorpsiyonun uygun ve kendiliğinden gerçekleşeceği bulguları elde edilmiştir. Sonuç olarak, belirli bir limitin üzerine çıktığında kansere neden olan radyoaktif teknesyumun aktif karbon üzerine adsorpsiyon termodinamik analizinin incelenmesi sonucu elde edilen bulguların endüstriyel çapta kurulacak bir tesis dizaynına katkıda bulunacağı söylenebilir.

Anahtar Kelimeler: Radyoaktif madde, Aktif Karbon, Termodinamik, Adsorpsiyon

Thermodynamic Analysis of Radioactive Pertechetate Oxo Anion Adsorption

ABSTRACT: The aim of this study is to investigate thermodynamics of radioactive pertechetate okso anion ($^{99m}\text{TcO}_4^-$) over the active carbon using the adsorption technique in batched systems. According to the obtained results thermodynamic parameters are calculated as $\Delta H^\circ=0.346 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $\Delta S^\circ=0.029 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $\Delta G^\circ= -7.92$ (15°C) ile -8.78 (45°C) kJ.mol^{-1} , $\Delta H_x=0,28 \text{ kJ.mol}^{-1}$ and also the temperature at which the standart free energy value equals to zero calculated as 12 K. These results indicated that the adsorption process is physical and endothermic and at temperatures over 12 K adsorption will take place spontaneously and favorably. In conclusion, it can be said that the results obtained from the thermodynamic analysis of radioactive technetium (which may cause cancer if the limit is exceeded) over the active carbon can contribute to the design of an industrial facility.

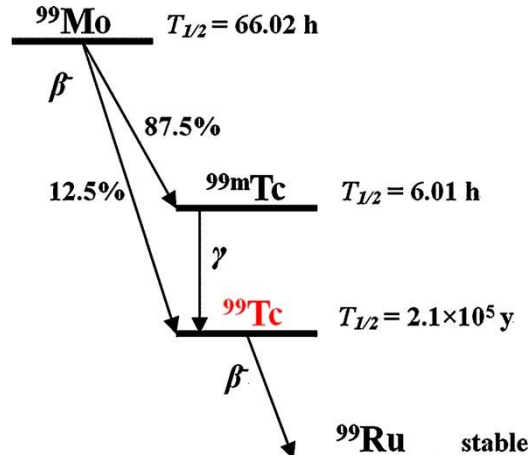
Key Words: Radioactive Substance, Activated Carbon, Thermodynamic, Adsorption

GİRİŞ (INTRODUCTION)

Nükleer tıp, insan vücudundaki çeşitli biyokimyasal ve fizyolojik işlemlere katılabilecek radyoaktif bileşikler yardımıyla tanasal görüntüleme ve tedavi uygulamalarını içeren bir bilim dalıdır. Bu bilim dalında en yaygın kullanılan radyoaktif element teknesyumdur (Hercigonja ve diğ. 2012).

Dünyadaki uranyum cevherlerinde nanogram miktarlarında bulunan teknesyum (Tc), nükleer reaktörlerde Mo, Ru ve Nb'un kozmik ışın reaksiyonu sonucu yapay olarak elde edilebilir. Plütonyum-239 ve uranyum-235'in termal fisyonu ile de % 6'lık bir verimle ^{99}Tc üretilir (Leon ve

diğ.2005). İlk önce Perrier ve diğ. 1937'de, molibdeni, bir nötronla bombardıman ederek Tc sentezlemeyi başarmışlardır (Şekil 1) (Shia ve diğ. 2012).



Şekil 1. ^{99}Mo 'nin bozunma şeması

Figure 1. Decayscheme of ^{99}Mo

Şekil 1'de görülebileceği gibi, Tc'nin en kararlı radyoaktif izotopu, 6 saatlik bir yarı ömre sahip $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 'dir. Bu izotop, gama ışınları yayarak ^{99}Tc 'ye bozunur. ^{99}Tc , 0,294 MeV'lik maksimum bozunma enerjisine sahip saf bir β^- yayıcı olduğundan dolayı, radyasyon sayımı ile ölçülebilir özelliğe sahiptir (Banavali ve diğ. 1995).

$^{99\text{m}}\text{Tc}$, yeraltı sularını kirleten tehlikeli nükleer atıklardan biridir (Hercigonja ve diğ. 2012). Çünkü, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ve % 0,9NaCl çözeltisi karıştırıldığında, izotonik, renksiz, berrak ve steril bir sodyum perteknetat solüsyonu elde edilir. Bu solüsyon tanı için doğrudan hastaya uygulanabilir. Solüsyondaki perteknetat okso anyonu ($^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$) çözünebilir olduğu için, yeraltı sularında çok önemli çevresel tehlikeler oluşturur (Bishop ve diğ. 2011). ^{99}Tc 'nin immobilizasyonu uzun süreli ve kalıcı imha işlemlerinden önce yapılmalıdır. Bu nedenle, daha büyük miktarda atık üretmeden ^{99}Tc 'nin uzaklaştırılması gereklidir (Del Cul ve diğ. 1993). Birleşik Devletler Çevre Koruma Ajansı (USEPA), içme sularında yıllık maksimum 0,04 milisievert (mSv) değerinde ^{99}Tc içeriği olması gerektiğini belirlemiştir (USEPA, 2002). Bu değer aşılsa, insanların kansere yakalanması kaçınılmaz olacağı belirtilmiştir (Del Cul ve diğ. 1993).

Radyoaktif maddelerin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında; kimyasal çöktürme, buharlaştırma, çözücü özütleme, membran prosesleri ve adsorpsiyon gibi çeşitli yöntemler uygulanmıştır (Mahmoud ve diğ. 2014). Çöktürme ve çözücü özütlemenin, düşük seçiciliğe ve büyük miktarlarda katı çamur oluşumuna sebep olduğu, (Sangvanich ve diğ. 2010), buharlaştırma yönteminin korozyon, kireçlenme veya köpüklenme gibi sorunlara yol açtığı (Rout ve diğ. 2006) ve membran proseslerinin, yüksek maliyet ve membran tıkanması gibi kısıtlamalara sahip olduğu (Fu ve Wang, 2011) belirtilmiştir. Adsorpsiyon yönteminin ise, düşük maliyet, esneklik ve tasarım basitliği, kullanım kolaylığı ve diğer tekniklere kıyasla toksik kirleticilere duyarsızlık gibi birçok avantaja sahip olduğundan dolayı daha çok tercih edilen bir yöntem olmuştur (Mahmoud ve diğ. 2014).

Literatürde adsorpsiyon yöntemiyle, ^{99}Tc 'nin yeraltı sularından uzaklaştırılması için kullanılan bazı adsorbanlar şunlardır: alümina ve goetit (Kumar ve diğ. 2011), stibnit (Kumar ve diğ. 2013), elementel demir (Liang ve diğ. 1996), pirit ve manyetit (Lieser ve Bauscher, 1988, Farrell ve diğ. 1999), organofilik bentonitler (Bors ve diğ. 1999, Sakhira ve diğ. 2011) ve çeşitli sentetik reçineler (Suzuki ve diğ. 2009, Chen ve Veltkamp, 2002).

Aktif karbon, geniş yüzey alanı ve gözenekli yapıya sahip karbonlu ürünlerin ticari adıdır. Kontrollü bir atmosfer ve sıcaklık şartlarında, yüksek sıcaklıkta ısıl ayrışma ile karbon bazlı malzemelerden üretilir. Aktif karbonların genellikle yoğunluğu yaklaşık $0,2 \text{ g.cm}^{-3}$ 'den büyük ve yüzey alanı $400 - 1600 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$ arasında değişmekte olup adsorplama kapasitesi çok büyüktür (Holm ve diğ. 2000).

Bu çalışmada, radyoaktif $^{99m}\text{TcO}_4^-$ ün sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında adsorpsiyon yöntemi tercih edilmiş ve adsorban olarak ise aktif karbon seçilmiştir. Adsorpsiyon prosesi sonucunda elde edilen termodinamik parametreler ışığında, adsorpsiyonun doğası hakkında bilgilerin sunulmasıyla endüstriyel çapta kurulacak bir tesis dizaynına katkıda bulunacağı amaçlanmıştır.

MATERYAL ve YÖNTEM (MATERIAL and METHOD)

Bu çalışmada radyoaktif $^{99m}\text{TcO}_4^-$, Atatürk Üniversitesi Tıp Fakültesi Nükleer Tıp Anabilim Dalından temin edilmiştir. Her deney için istenen sağımlarda $^{99m}\text{TcO}_4^-$ çözeltileri sağlanmıştır. Bu anyonun mol kütlesi 163 g.mol^{-1} olup dört hidrojen bağına sahiptir. Topolojik polar yüzey alanı $73 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ dir (PubChem, web).

Aktif karbon (Sigma-aldrichDarco G60) yerel bir medikal firmasından temin edilmiştir. Aktif karbonun bazı özellikleri Çizelge 1'de verilmiştir.

Çizelge 1 Aktif Karbonun Bazı Özellikleri

Table 1. Some Properties of Activated Carbon

pH	Ort. Boyut (mm)	Yoğunluk (g.cm^{-3})	Yüzey Alanı ($\text{m}^2.\text{g}^{-1}$)	Saflık %
5-7	0,044-0,15	0,45-0,55	1100	99

Aktif karbon elenerek partikül boyutu $+0,15-0,125 \text{ mm}$ olacak şekilde seçilmiştir.

Deneyler, kesikli sistemde çalışılan adsorpsiyon tekniği ile yapılmıştır. Başlangıç konsantrasyonu, pH, partikül boyutu, karıştırma hızı, adsorpsiyon denge süresi ve adsorban konsantrasyonu parametreleri sırasıyla; $1,0 \text{ mCi.L}^{-1}$, 8,0, $+0,15-0,125 \text{ mm}$, 700 rpm, 15 dakika ve $2,0 \text{ g.L}^{-1}$ olarak sabit tutulmuştur (Bastaban, 2014).

Deneysel Yöntem (Experimental Set up)

$0,5 \text{ mCi.mL}^{-1}$ $^{99m}\text{TcO}_4^-$ çözeltilerinden 1 mL alınarak deiyonize su ile 500 mL'ye tamamlanmıştır. Böylece, $1,0 \text{ mCi.L}^{-1}$ aktivitedeki $^{99m}\text{TcO}_4^-$ çözeltileri elde edilmiştir. pH değeri, uygun bir miktarda 0,1 M NaOH (sigma-aldrich, %98) ve 0,1 M HCl (merck, %37) çözeltileri kullanılarak dijital bir pH-metre (Thermo Orion 3-Star) yardımıyla ayarlanmıştır.

Kesikli adsorpsiyon deneyleri, 288-318 K sıcaklık aralığında 700 mL hacmindeki bir ceketli reaktör sisteminde sabit tutulan parametre değerleriyle gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyon denge süresi sonunda, nihai karışım nuçe erleniyle vakum altında süzülmüştür. Çözeltide, denge anındaki $^{99m}\text{TcO}_4^-$ ün radyoaktivitesi (C_e), Biodex, Atomlab 400 model dose calibrator marka dozimetre kullanılarak ölçülmüş ve Eşitlik 1'den elde edilen q_e değerleri Çizelge 2'de verilmiştir.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{m} \quad (1)$$

Burada C_0 ve C_e (mCi.L^{-1}) sırasıyla, $^{99m}\text{TcO}_4^-$ ün başlangıç ve denge radyoaktiviteleridir. V (L), çözelti hacmi, m (g), adsorbanın kütlesi ve q_e (mCi.g^{-1}), adsorpsiyon kapasitesidir.

Çizelge 2 Adsorpsiyonun Sıcaklıkla Değişim Verileri (konsantrasyon 1,0 mCi.L⁻¹ ^{99m}TcO₄, pH 8,0, partikül boyutu + 0,15-0,125 mm, karıştırma hızı 700 rpm, adsorpsiyon denge süresi 15 dk ve adsorban konsantrasyonu 2,0 g.L⁻¹)

Table 2. Change of adsorption by temperature (concentration 1.0 mCi.L⁻¹ ^{99m}TcO₄, pH 8.0, particle size + 0.15-0.125 mm, mixing speed 700 rpm, adsorption equilibrium time 15 min. and adsorbent concentration 2.0 g.L⁻¹)

Sıcaklık (K)	C _e (mCi.L ⁻¹)	q _e (mCi.g ⁻¹)
288	0,320	0,340
298	0,160	0,420
308	0,110	0,445
318	0,060	0,470

BULGULAR VE SONUÇLARIN İRDELENMESİ (RESULT AND DISCUSSION)

Adsorpsiyon Termodinamiğinin Modellenmesi (Modeling of Adsorption Thermodynamics)

Adsorpsiyon prosesinde denge anına ulaşıldığında, hem çözeltilerde hem de katı yüzeyinde adsorplanan maddenin konsantrasyonunda bir değişim gözlemlenmez. Çünkü dengede Gibbs serbest enerji değişimi ($\Delta G^0 = 0$) sıfırdır ve adsorpsiyon ve desorpsiyon hızları birbirine eşittir. Böylece adsorban yüzeyine adsorplanan maddenin ve sulu çözeltildeki adsorplanmadan kalan maddenin aktiviteleri oranı sabit kalır ve bu oran denge sabiti (K_c) olarak adlandırılır. Bu sabit Eşitlik 2 ile hesaplanır (Atkins ve Paula, 2014).

$$K_c = \frac{a_s}{a_e} = \frac{\gamma_s C_s}{\gamma_e C_e} \quad (2)$$

Burada a_s ve a_e sırasıyla; denge anında adsorban yüzeyine adsorplanan maddenin ve sulu çözeltildeki adsorplanmadan kalan maddenin aktiviteleridir. γ_s ve γ_e ise sırasıyla denge anında adsorban yüzeyine adsorplanan maddenin ve sulu çözeltildeki adsorplanmadan kalan maddenin aktivite katsayılarıdır. C_s ve C_e ise; denge anında adsorban yüzeyine adsorplanan maddenin ve sulu çözeltildeki adsorplanmadan kalan maddenin konsantrasyonlarıdır. Aktivite katsayılarının yaklaşık aynı olduğu kabul edilirse,

$$K_c = \frac{C_s}{C_e} \quad (3)$$

Eşitlik 3 yazılabilir. Ayrıca, Van'tHoff eşitliği yazılırsa (Atkins ve Paula, 2014),

$$\Delta G = \Delta G^0 + RT \ln(K_c) \quad (4)$$

Burada; ΔG , serbest enerji değişimi, R ideal gaz sabiti (8,314 J.mol⁻¹.K⁻¹), T, mutlak sıcaklık (K) ve K_c , denge sabitidir. ΔG değeri denge anında sıfır olacağından, Eşitlik 5'e indirgenir.

$$\Delta G^0 = -RT \ln(K_c) \quad (5)$$

Bu eşitlik, adsorpsiyon prosesinin kendiliğinden gerçekleşip gerçekleşmeyeceğini tahmin etmek için kullanılan önemli bir eşitliktir. ΔG^0 , adsorpsiyon prosesinin serbest enerji değişimidir.

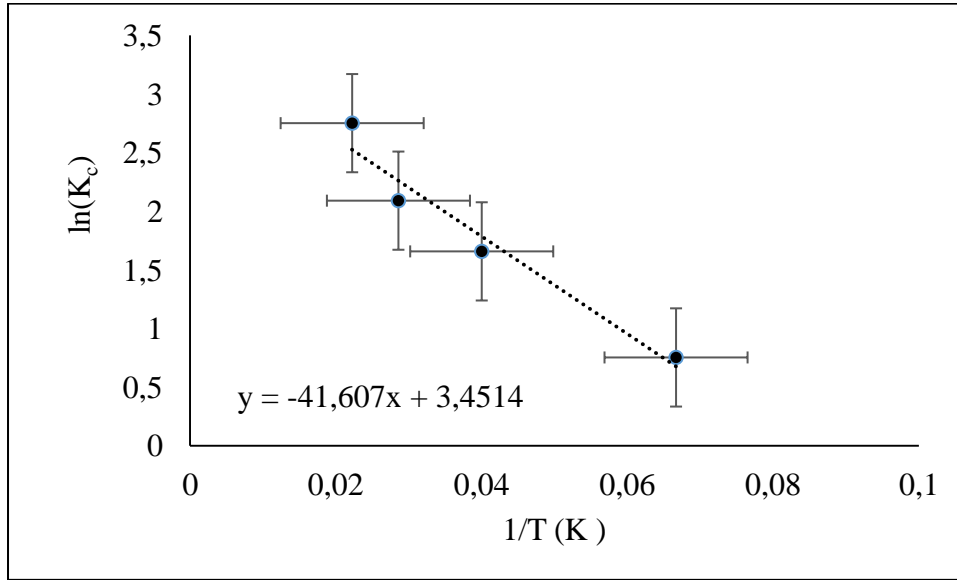
Ayrıca, ΔG^0 'i için aşağıdaki termodinamik eşitlik te yazılabilir (Atkins ve Paula, 2014)

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T \Delta S^0 \quad (6)$$

Eşitlik 5 ve 6'dan,

$$\ln(K_c) = -\frac{\Delta H^0}{RT} + \frac{\Delta S^0}{R} \quad (7)$$

Eşitlik 7 elde edilir. Bu eşitlikten faydalanarak $\ln K_c$ ya karşı $1/T$ grafiği çizilirse (Şekil 2), eğimden ΔH^0 ve kesme noktasından ΔS^0 değerleri belirlenir.



Şekil 2. ln(K_c)'ye karşı 1/T grafiği

Figure 2. ln (K_c) vs. 1/T graph

Şekil 2'nin eğiminden ΔH° , kesmesinden ΔS° ve Eşitlik 5'den ΔG° değerleri hesaplanmış ve sonuçlar Çizelge 3'de verilmiştir.

Çizelge 3. Termodinamik Parametreler

Table 3. Thermodynamic Parameters

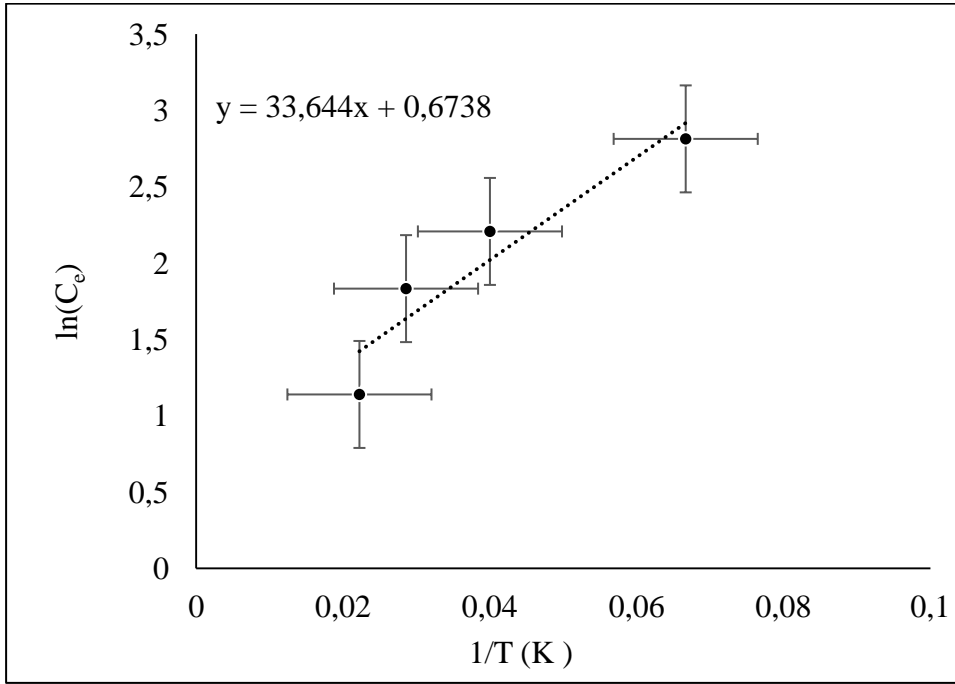
ΔH° (kJ.mol ⁻¹)	ΔS° (kJ.mol ⁻¹)	ΔG° (kJ.mol ⁻¹)			
		288 K	298 K	308 K	318 K
0,346	0,029	-7,92	-8,20	-8,49	-8,78

ΔH° ve ΔS° değerlerinin pozitif çıkması ve ΔG° değerinin negatif çıkması nedeniyle adsorpsiyon prosesinin sırasıyla, endotermik, adsorban-adsorblanan arayüzeyinde düzensizlik artışı ve kendiliğinden gerçekleşen bir proses olduğunu gösterir. Sıcaklık arttıkça ΔG° 'nin negatif değerinin artması, yüksek sıcaklıklarda perteknetat okso anyonunun aktif karbon üzerine adsorpsiyonuna olumlu etkide bulunduğunu gösterir. Benzer sonuçlar Mahmoud ve Seliman, 2014, çalışmasında da bulunmuştur.

Adsorpsiyon İzosterik Isısı(Isosteric Adsorption Heat)

Sabit adsorblanan miktar için tanımlanan izosterik adsorpsiyon ısısı (ΔH_x , kJmol⁻¹), adsorpsiyon prosesinin karakterizasyonu ve optimizasyonu tahmininde faydalı parametrelerden biri olup Clausius–Clapeyron (Eşitlik 8) eşitliğine göre ln C_e'ye karşı 1/T grafiğinin eğiminden hesaplanır (Şekil 3) (Chowdhury ve diğ. 2011).

$$\frac{d(\ln(C_e))}{dt} = -\frac{\Delta H_x}{RT^2} \quad (8)$$



Şekil 3. $\ln(C_e)$ 'ye karşı $1/T$ grafiği

Figure 3. $\ln(C_e)$ vs. $1/T$ graph

Fiziksel adsorpsiyon için ΔH_x , 80 kJ.mol^{-1} 'den küçük ve kimyasal adsorpsiyon için ise $80\text{-}400 \text{ kJ.mol}^{-1}$ arasında değişmelidir (Doğan ve Alkan, 2003). Şekil 3'ün eğiminden ΔH_x değeri $0,28 \text{ kJ.mol}^{-1}$ olarak bulunduğu adsorpsiyon prosesinin fiziksel adsorpsiyona uyduğu söylenebilir.

Kendiliğinden Gerçekleşen Olaylarda Termodinamik Kriter (Thermodynamic Criteria for Spontaneity)

Bir adsorpsiyon prosesinin termodinamik olarak uygun ve kendiliğinden olup olmadığı ΔG° 'in işaretine bakılarak belirlenebilir. Eğer ΔG° sıfırdan küçükse adsorpsiyon süreci uygun ve kendiliğinden gerçekleşir. ΔG° 'ın alacağı işaret, ΔH° ve ΔS° gibi termodinamik parametrelere bağlıdır. Bu durum aşağıdaki gibi açıklanabilir (Atkins ve Paula, 2014);

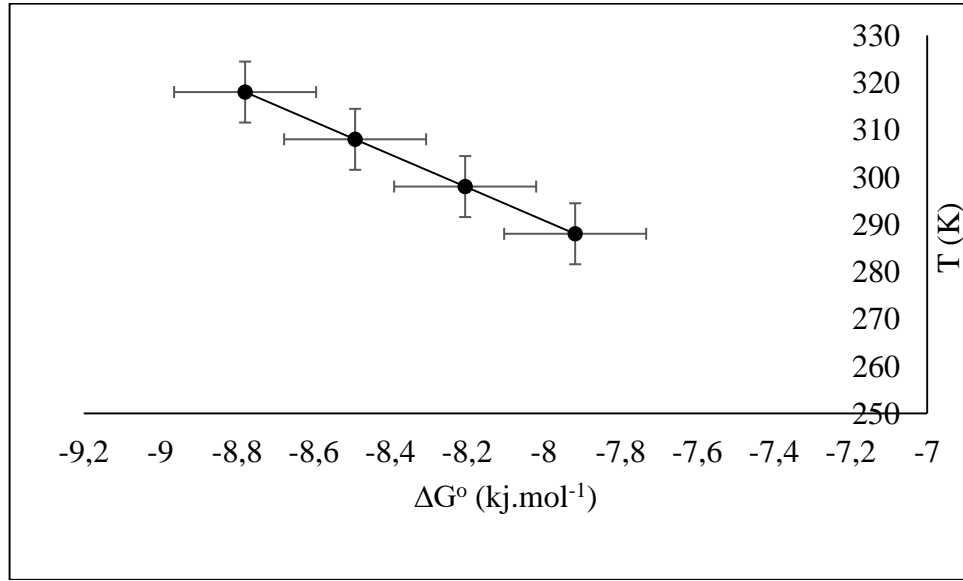
a) Eğer adsorpsiyon süreci ekzotermik ise (ΔH° negatif) ve katı sıvı ara yüzeyinde düzensizlik artmış (ΔS° pozitif) ise, sıcaklık ne olursa olsun adsorpsiyon süreci her zaman uygun ve kendiliğinden (ΔG° negatif) dir

b) Eğer adsorpsiyon süreci ekzotermik ise (ΔH° negatif) ve katı sıvı ara yüzeyinde düzensizlik azalmış (ΔS° negatif) ise, ΔH° değerinin $T\Delta S^\circ$ 'dan büyük olması durumunda, adsorpsiyon süreci uygun ve kendiliğinden (ΔG° negatif) dir

c) Eğer adsorpsiyon süreci endotermik ise (ΔH° pozitif) ve katı sıvı ara yüzeyinde düzensizlik artmış (ΔS° pozitif) ise, ΔH° değerinin $T\Delta S^\circ$ 'den küçük olması durumunda, adsorpsiyon süreci uygun ve kendiliğinden (ΔG° negatif) dir

d) Eğer adsorpsiyon süreci endotermik (ΔH° pozitif) ise ve katı sıvı ara yüzeyinde düzensizlik azalmış (ΔS° negatif) ise, adsorpsiyon süreci uygun ve kendiliğinden (ΔG° negatif) gerçekleşeceği hiç bir sıcaklık yoktur.

Bu açıklamalara göre adsorpsiyon süreçleri sadece belirli şartlarda kendiliğinden gerçekleşebilir. Adsorpsiyon süreçlerinde uygun sıcaklık aralığı, ΔG° in sıfır olduğu sıcaklık (T_0) değerine göre belirlenir. Bu sıcaklık değeri, ΔG° 'a karşı T 'nin grafik edilmesiyle bulunur (Şekil 4). Doğrunun kesme noktasından, ΔG° 'ın sıfır olduğu sıcaklık değeri bulunarak adsorpsiyon prosesinin uygun ve kendiliğinden gerçekleştiği aralık belirlenir.



Şekil 4. ΔG° 'a karşı T grafiği

Figure 4. ΔG° vs. T graph

Şekil 4'teki doğrunun kesme noktası olan ΔG° 'ın sıfır olduğu sıcaklık, 12 K olarak bulunmuştur. Bu değerler üzerindeki sıcaklıklarda, adsorblanan-adsorban ara yüzeyinde serbest enerjide daha fazla azalma olacağı için adsorpsiyon prosesi uygun ve kendiliğinden gerçekleşeceği söylenir. Özellikle adsorpsiyonun gerçekleşeceği sıcaklık aralığının bulunması, endüstriyel ölçekte optimum çalışma sıcaklığının belirlenmesinde önemli bir bilgi sağlamaktadır.

SONUÇ (CONCLUSION)

Bu çalışmada, aktif karbon üzerine radyoaktif perteknetat okso anyonunun adsorplanabilirliğini ve kendiliğinden gerçekleşip gerçekleşmeyeceğini tahmin edebilmek için termodinamik analizi incelenmiştir. Çizelge 2'deki verilerden sıcaklığın artmasıyla adsorpsiyon kapasitesinin arttığı görülmektedir. Bununla birlikte, ΔH° 'ın pozitif ($0,346 \text{ kJ.mol}^{-1}$) çıkması da adsorpsiyon prosesinin endotermik tepkimeyle yürüdüğünü göstermektedir. ΔS° değerinin pozitif çıkması ($0,029 \text{ kJ.mol}^{-1}$), adsorban-adsorblanan ara yüzeyinde düzensizlik artışı olduğunu göstermektedir. ΔG° değerlerinin negatif çıkması ($-7,92$ (288 K) ile $-8,78$ (318 K) kJ.mol^{-1}) ve ΔG° 'ın sıfır olduğu sıcaklığın 12 K olarak hesaplanması, adsorpsiyon prosesinin bu değerler üzerindeki her sıcaklıkta uygun ve kendiliğinden gerçekleşeceğini ifade etmektedir. ΔH_x değeri, $0,28 \text{ kJ.mol}^{-1}$ olarak bulunmuş ve 80 kJ.mol^{-1} 'den küçük olduğu için adsorpsiyon prosesinin fiziksel olarak gerçekleştiği belirlenmiştir.

Sonuç olarak, belirli bir limitin üzerine çıktığında kansere neden olan radyoaktif teknesyumun aktif karbon üzerine adsorpsiyon termodinamik analizinin incelenmesi sonucu elde edilen bulguların endüstriyel çapta kurulacak bir tesis dizaynına katkıda bulunacağı söylenebilir.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

Banavali, A.D., Raimondi, J.M., Moreno, E.M., McCurdy, D.E., 1995, "The determination of technetium-99 in low-level radioactive waste", *Radioact. Radiochem.*, 6, 26–35.

Bastaban, B., 2014, "Teknesyum (^{99m}Tc) Elementinin Aktif Karbon Yardımıyla Adsorpsiyonu" Atatürk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi.

Bishop, M.E., Dong, H., Kukkadapu, R.K., Liu, C., Edelman, R.E., 2011, "Bioreduction of Fe-bearing clay minerals and their reactivity toward pertechnetate (Tc-99)", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 75, 5229–5246.

Bors, J., Dultz, S., Riebe, B., 1999, "Retention of radionuclides by organophilic bentonite", *Eng. Geol.*, 54, 195–206.

Chen, J., Veltkamp, J.C., 2002, "Pertechnetate removal by macroporous polymer impregnated with 2-nitrophenyl octyl ether (NPOE)", *Solvent Extr. Ion Exch.*, 20, 515–524.

Chowdhury, S., Mishra, R., Saha, P., & Kushwaha, P., 2011, "Adsorption thermodynamics, kinetics and isosteric heat of adsorption of malachite green onto chemically modified rice husk", *Desalination*, 265(1-3), 159-168.

Del Cul, G.D., Bostick, W.D., Trotter, D.R., Osborne, P.E., 1993, "Technetium-99 removal from process solutions and contaminated groundwater", *Sep. Sci. Technol.*, 28, 551–564.

Farrell, J., Bostick, W., Jarabek, R.J., Fiedor, J., 1999, "Electrosorption and reduction of pertechnetate by anodically polarized magnetite", *Environ. Sci. Technol.*, 33, 1244–1249.

Fu, F., Wang, Q., 2011, "Removal of heavy metal ions from wastewaters: a review", *J. Environ. Manage.*, 92, 407–418.

Hercigonja Radmila V., Maksin Danijela D., Nastasovic' Aleksandra B., Trifunovic' Snežana S., Glodic' Pavle B., Onjia Antonije E., 2012, "Adsorptive Removal of Technetium-99 Using Macroporous Poly (GMA-co-EGDMA) Modified with Diethylene Triamine", *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 123, 1273–1282.

Holm, E., Gäfvert, T., Lindahl, P., & Roos, P. 2000, "In situ sorption of technetium using activated carbon", *Applied Radiation and Isotopes*, 53(1-2), 153-157.

Kumar, P.S., Senthamarai, C., Sai Deepthi, A.S.L., Bharani, R., 2013, "Adsorption isotherms, kinetics and mechanism of Pb(II) ions removal from aqueous solution using chemically modified agricultural waste", *Can. J. Chem. Eng.* 91, 1950–1956.

Kumar, S., Rawat, N., Kar, A.S., Tomar, B.S., Manchanda, V.K., 2011, "Effect of humic acid on sorption of technetium by alumina", *J. Hazard. Mater.*, 192, 1040–1045.

León, M.G., 2005, "99Tc in the Environment: Sources, Distribution and Methods", *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 6, 253–259.

Liang, L., Gu, B., Yin, X., 1996, "Removal of technetium-99 from contaminated ground water with sorbents and reductive materials", *Sep. Technol.* 6, 111–112.

Lieser, K.H., Bauscher, C.H., 1988, "Technetium in the hydrosphere and in the geosphere. II. Influence of pH, of complexing agents and of some minerals on the sorption of technetium", *Radiochim. Acta*, 44, 125–128.

Dogan, M., Alkan, M., 2003, "Removal of methyl violet from aqueous solution by perlite", *J. Colloid Interface Sci.*, 267, 32–41.

Mahmoud, M. R., Seliman, A. F. 2014, "Evaluation of silica/ferrocyanide composite as a dual-function material for simultaneous removal of 137Cs+ and 99TcO4- from aqueous solutions", *Applied Radiation and Isotopes*, 91, 141-154.

Peter Atkins and Julio de Paula, 2014, *Physical Chemistry 10th Edition* Edition- 10th Edition oxford university press-new delhi.

Pubchem, <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/SODIUM%20PERTECHNETATE#section=Related-Compounds-with-Annotation>.

Rout, T.K., Sengupta, D.K., Besra, L., 2006, "Flocculation improves uptake of 90Sr and 137Cs from radioactive effluents", *Int. J. Miner. Process.*, 79, 225–234.

Sangvanich, T., Sukwarotwat, V., Wiacek, R.J., Grudzien, R.M., Fryxell, G.E., Addleman, R.S., Timchalk, C., Yantasee, W., 2010, "Selective capture of cesium and thallium from natural waters and simulated wastes with copper ferrocyanide functionalized mesoporous silica", *J. Hazard. Mater.*, 182, 225–231.

Shakira, K., Ghoneimya, H.F., Hennawy, I.T., Elkafrawy, A.F., Beheira, S.G.E., Refaata, M., 2011, "Simultaneous removal of chromotrope 2B and radionuclides from mixed radioactive process wastewater using organo-bentonite", *Eur. J. Chem.*, 2, 83–93.

Shia Keliang, HouaXiaolin, Roos Per, Wu Wangsuo, 2012, "Determination of technetium-99 in environmental samples: A review", *Analytica Chimica Acta*, 709, 1– 20.

Suzuki, T., Fujii, Y., Yan, W., Mimura, H., Koyama, S., Ozawa, M., 2009, "Adsorption behavior of VII group elements on tertiary pyridine resin in hydrochloric acid solution", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 282, 641–644.

USEPA, 2002, "EPA facts about technetium-99", <https://www.epa.gov/radiation/radionuclide-basics-technetium-99>