

文章编号: 0258-0926(2015)06-0175-05; doi: 10.13832/j.jnpe.2015.06.0175

热等离子体处理模拟放射性废物试验研究

徐文兵, 吕永红, 陈明周, 黄文有, 李 晴

中科华核电技术研究院有限公司, 广东深圳, 518124

摘要:为验证等离子体系统对无机废物的处理效果, 采用电弧等离子体发生器产生的热等离子体处理模拟放射性废物——棉制品焚烧灰。研究了等离子体发生器的电、热特性, 通过数值模拟的方法分析从发生器阳极喷嘴喷射出的等离子体射流的温度分布。试验中对熔融体进行冷却得到固化体。对固化体的分析结果表明: 固化体呈玻璃态, 抗压强度远远大于水泥固化体 7 MPa 的要求; 从玻璃体的成分判断, 该固化体的性能可以满足相关浸出率方面的要求。

关键词: 模拟放射性废物; 热等离子体; 熔融; 玻璃固化

中图分类号: TG115.22 **文献标志码:** A

Experimental Study on Simulated Radioactive Wastes Vitrification with Arc Plasma

Xu Wenbing, Lyu Yonghong, Chen Mingzhou, Huang Wenyong, Li Qing

China Nuclear Power Technology Research Institute, Shenzhen, Guangdong, 518124, China

Abstract: To evaluate the treatment effect of inorganic waste with plasma system, thermal plasma generated by a plasma torch was adopted to treatment the simulated radioactive waste, the simulated incinerator ash. The electrical and thermal characteristics of the plasma torch were studied. The temperature distribution of plasma jet was examined via numerical simulation. Vitrified waste form was obtained by cooling the molten. Several analyses were carried out for the waste form. And the results show that the solidified waste appears glassy, with the compressive strength much more than 7 MPa, which is the limited value for cemented waste form. Based on the composition of the vitrified waste form, it can be concluded that its leaching resistance performance should be fairly good.

Key words: Simulated radioactive waste, Thermal plasma, Melting, Vitrification.

0 引 言

目前, 国内在运核电厂对于低、中放废物的处理工艺主要采取水泥固化法和混凝土固定法处理浓缩液、淤积物、废树脂和废滤芯以及核电厂维修改造产生的报废零部件。然而, 水泥固化会大幅增加废物的最终体积, 物理压缩产生的废物体则存在长期稳定性差的缺陷。玻璃固化能够对废物大幅减容, 形成高度稳定的固化体, 可以直接暂存、处置, 被认为是处理中低放固体废物的

最可靠技术之一^[1]。当前, 玻璃固化技术用于中低放固体废物的处理在世界范围内正成为一种发展趋势^[2-4]; 热等离子体能够处理直接处理放射性废物, 无需分拣。因此, 等离子体玻璃固化技术受到众多研究者的关注^[5-8]。目前, 用于处理中低放废物的等离子体系统已经成功运转^[9-10]。在中广核“尖峰计划”的支持下, 建立了一套等离子体试验系统, 采用模拟废物进行试验, 以验证该系统对模拟废物的处理效果。

收稿日期: 2015-01-21; 修回日期: 2015-03-02

作者简介: 徐文兵 (1960—), 男, 高级工程师。现从事核电厂运营及三废治理研究

1 等离子体发生器的电、热特性

1.1 电特性

等离子体发生器启动后,测得的不同气体流量下的伏安特性曲线如图1所示。

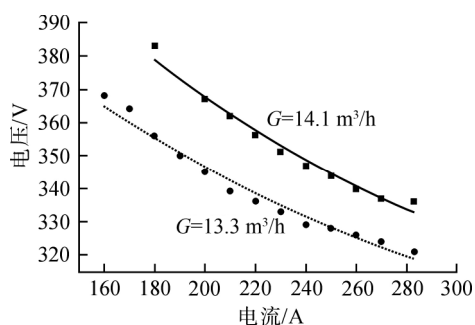


图1 等离子体发生器的伏安特性

Fig. 1 Voltage-Ampere Characteristics of Plasma Torch

从图1可以看出,在等离子体发生器中,电弧的伏安特性总体上呈现下降形态,表明电弧具有负阻特性。对于不同的气体流量值,伏安特性曲线会发生移动。在相同的电流强度下,增大气体流量会使伏安特性曲线向上方移动,这是因为,气体流量的增大拉长了电弧的长度,从而提高了弧电压。这样,增大气体流量就可以在同样的电流强度下获取更大的功率输出。

1.2 热效率

通过电弧加热气体,等离子体发生器把电能转化成热能。为了保护发生器的电极不受高温损坏,各个电极均采用水冷,等离子体发生器的基本结构如图2所示。

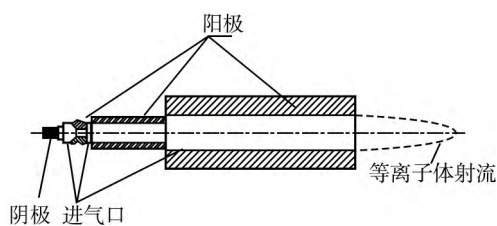


图2 等离子体发生器的基本结构示意图

Fig. 2 Schematic Diagram of Plasma Torch

设 P_p 、 P_T 分别为等离子体发生器的输入功率与等离子体的热功率,则发生器的热效率可以表示为:

$$\eta = \frac{P_T}{P_p} \times 100\% \quad (1)$$

$$P_T = U_A I_A$$

式中, U_A 、 I_A 分别为电弧的电压、电流。

设冷却水造成的热量损失功率为 Q_W , 则:

$$Q_W = c_w m_w \Delta T_w \quad (2)$$

式中, c_w 、 m_w 、 ΔT_w 分别为冷却水的比热、质量流量和温升。

根据能量守恒定律:

$$P_p = P_T - Q_W \quad (3)$$

联立式(1)~式(3)可以计算出等离子体发生器的热效率。

等离子体发生器功率为 105 kW 时,测得各电极的冷却水流量与温升见表1。

表1 各电极的冷却水流量与温升

Table 1 Cooling Water Flow Rate and Increasing of Temperature at Each Electrode

位置	阴极	阳极1	阳极2	阳极3
流量/L · h ⁻¹	970	710	910	890
温升/	3	5	11	19

由表1可以计算出冷却水带走的热量损失为 38.94 kW, 此时等离子体发生器的电热转换效率为 62.91%。

1.3 温度分布

为了研究射流的温度分布,以图2所示的结构为原型建立等离子体发生器的计算模型。为了计算等离子体射流的温度分布,计算模型中设置了延伸段,如图3所示。

在计算中,基本的假设包括稳态流动、等离子体为光学薄,处于局域热力学平衡状态,并忽略重力。计算采用的控制方程如文献[11]中的方程。计算的工况见表2。

温度分布计算采用有限元法实现,得到的结果如图4、图5所示。

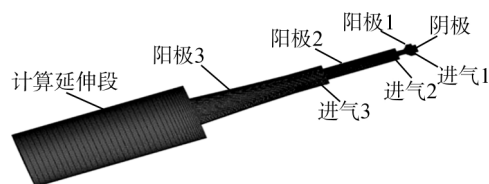


图3 等离子体发生器的计算模型

Fig. 3 Simulation Model of Plasma Torch

表2 等离子体发生器数值模拟的计算工况

Table 2 Working Conditions of Plasma Torch

进气 1/m³ · h ⁻¹	进气 2/m³ · h ⁻¹	进气 3/m³ · h ⁻¹	弧电流/A
2.5	12.5	1.6	310

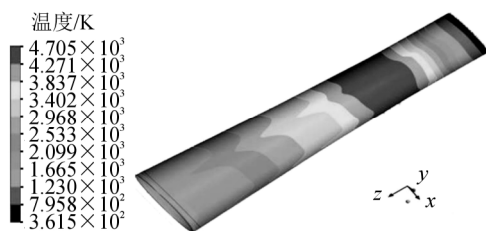


图4 工作阳极的温度分布

Fig. 4 Temperature Distribution on Working Anode

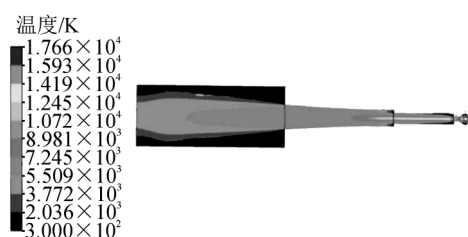


图5 等离子体射流的温度分布

Fig. 5 Temperature Distribution of Plasma Jet

阳极3表面的温度分布如图4所示。从图上可以看出，由于弧斑在阳极内表面上快速扫描，造成阳极内表面上存在局部高温现象，并且该局部高温区呈现轴对称分布。

等离子体射流的温度分布如图5所示。从等离子体发生器内的温度可以看出，等离子体发生器内的温度梯度很大；最高温度出现在触发极的通道内，因为电弧在这里被压缩得最严重。在计算的延伸段内，等离子体射流的温度高于2000 K。

2 模拟废物处理试验

2.1 样品制备

在核电厂的正常运行与维修中，产生的主要废物是可燃废物。考虑到可燃废物的焚烧处理已经是成熟的工艺，而焚烧得到弥散性的焚烧灰须做进一步固定后才可以处置，本试验以焚烧灰为处理对象，首先对棉制品进行焚烧处理，得到焚烧灰。在焚烧灰化学分析的基础上，结合选定的玻璃固化配方，用化学试剂配制成模拟焚烧灰样品；在样品中加入质量分数为0.5%的 CsCl 、 Co_2O_3 和 SrCO_3 ，用于模拟核电厂产生的废物中主要的核素 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 和 ^{90}Sr 。

棉制品焚烧灰的化学组成见表3。从表3可以看出，焚烧灰中 CaO 的含量很高。由于 CaO 的熔点高(2580℃)焚烧灰的熔融温度会比较高。根据玻璃化配方的研究结果对焚烧灰的成分进行

调配，得到的优化配方的组成见表4。

2.2 试验装备

自主研发的等离子体系统包括熔融炉、二燃室、尾气处理系统以及辅助系统与监控系统。

表3 焚烧灰化学组成

Table 3 Chemical Composition of Incinerator Ash

成分	SiO_2	B_2O_3	Na_2O	CaO
质量分数/%	14.6	4.00	0.992	73.3
成分	Al_2O_3	Fe_2O_3	SO_3	—
质量分数/%	2.34	2.96	1.80	—

表4 优化配方各组分的组成范围

Table 4 Chemical Composition of Optimum Formulation.

组成	SiO_2	B_2O_3	Na_2O	CaO
质量分数范围/%	55~65	8~12	8~12	8~12
组成	Li_2O	Al_2O_3	TiO_2	—
质量分数范围/%	1~3	2~6	1~3	—

2.3 试验方法

把制备好的样品送入熔融炉，启动等离子体发生器，监测炉膛内的温度，控制发生器的功率使炉膛温度稳定在1250℃左右。炉膛的温度随时间变化的曲线见图6。模拟废物熔融之后，关闭发生器，对熔融体进行降温冷却处理。对得到的固化体采样。利用X射线荧光光谱法(XRF)测定固化体的成分，结果以氧化物的形式给出。固化体研磨成粉末之后，用X射线衍射法(XRD)分析固化体的晶型结构，扫描角度为 $10^\circ\sim 70^\circ$ 。用材料试验机测定固化体的抗压强度。

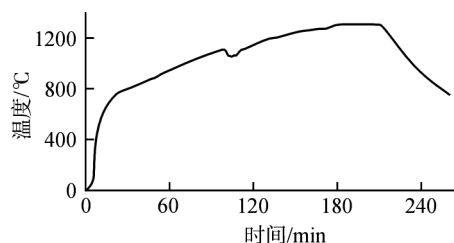


图6 炉膛温度的变化曲线。

Fig. 6 Change of Temperature in Melter Hearth

2.4 结果与讨论

模拟废物的熔融体经过冷却后得到了固化体，外观呈现玻璃态。对固化体做XRD分析，结果见图7。从图7可以看出，该谱图只有连续谱线，不存在尖峰。这说明制得的固化体中没有结晶物质，主要为无定形的玻璃态，是玻璃固化体。

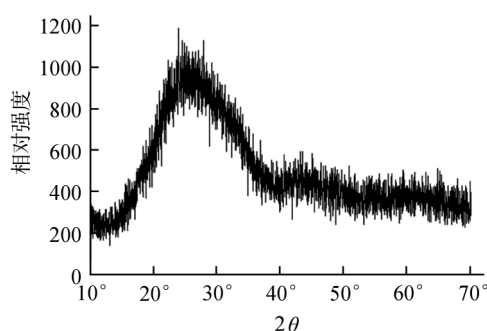


图 7 固化体的 XRD 分析结果
Fig. 7 XRD Analysis of Waste Form

对该固化体做抗压强度测试，其抗压强度高 242 MPa。关于废物体的机械性能，现行标准 GB 14569.1-2011《低、中水平放射性废物固化体性能要求-水泥固化体》中规定，水泥固化体试样的抗压强度不应小于 7 MPa。显然，试验得到的玻璃固化体的抗压强度高于该要求 2 个数量级，能够满足暂存、运输和处置要求。

固化体的成分分析结果见表 5。在玻璃态物质中，根据氧化物对玻璃网络的贡献，可以把氧化物分为网络形成剂、网络修饰剂以及其他中间氧化物。网络形成剂是指可以替代 Si 原子的元素；网络修饰剂不进入玻璃网络，但是与硅玻璃中的非桥氧形成离子键^[12]。根据表 5 中的结果，在所得到的固化体中，玻璃形成剂 ($\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{B}_2\text{O}_3$) 占据了固化体质量的 77.03%，网络修饰剂 ($\sum \text{RO} + \text{R}_2\text{O}$) 占了 21.76%。该组成与 J. K. Park 等的研究结果相似^[13]。因此，可以预期，该固化体的抗浸出性能将是相当好。

固化体的浸出实验方法参照 MCC-1 标准^[14]，

表 5 固化体的化学组成
Table 5 Composition of Waste Form

成分	质量分数/%	成分	质量分数/%
SiO_2	53.182	CuO	0.028
Al_2O_3	14.615	CeO_2	0.022
Na_2O	9.742	ZrO_2	0.021
B_2O_3	9.230	Cr_2O_3	0.019
CaO	8.502	ZnO	0.013
MgO	2.228	Cl	0.008
Fe_2O_3	0.696	NiO	0.005
TiO_2	0.557	ThO_2	0.003
K_2O	0.443	Pb	0.003
Co_2O_3	0.368	Nb_2O_5	0.002
MnO	0.183	Ga_2O_3	0.002
P_2O_5	0.053	Rb_2O	0.002
SO_3	0.038	Y_2O_3	0.001
SrO	0.034	—	—

技术指标参照文献[15]，在 90 的去离子水中浸泡 28 d，固化体元素归一化浸出率 $15.0 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ ，或者单位面积的总失重 $15.0 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ ，得到的结果如表 6 所示。从表 6 可以看出，固化体的浸出结果满足技术指标的要求。

表 6 固化体的浸出测试结果
Table 6 Leaching Test Results of Waste Form

元素	浸出率/($\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$)
Si	11.91
B	12.13
Na	12.21
Ca	7.03
Sr	9.93
Cs	0
Co	1.83

注：“0”表示浸出结果低于仪器的检测限

3 结 论

利用大功率等离子体发生器对模拟无机放射性废物进行了熔融处理，获得了发生器的运行特性，对热等离子体对模拟放射性废物的处理效果进行了试验研究。结果表明，等离子体技术能够实现对模拟废物的玻璃固化。研究发现：

(1) 增大等离子体发生器的气流量可以在同等电流强度下提高等离子体发生器的功率。

(2) 所研发的等离子体系统能够实现对模拟无机放射性废物的熔融与玻璃固化。

(3) 得到的玻璃体的性能能够满足现有的关于废物固化体性能的要求。

参考文献：

- [1] Voskuil T. Handbook: Vitrification technologies for treatment of hazardous and radioactive waste [C]. Washington, DC: United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, 1992.
- [2] Mason J B. Vitrification Melters for Low-Level Radioactive and Mixed Wastes [C]. Richland, WA: Vectra Technologies, 1995.
- [3] Mason J B. Modular EnviroglassTM Vitrification Technology for Low-Level Radioactive and Mixed Waste [R]. Richland, WA: Vectra Technologies, 1995.
- [4] Wood C. J. Vitrification of Low-Level Radioactive Waste [C]. Palo Alto, CA: Electric Power Research Institute, 1996.
- [5] Sobolev I A, Dmitriev S A, Lifanov F A, et al. High Temperature Treatment of Intermediate-Level Radioactive Wastes—sua Radon Experience [C]. Tucson, AZ: WM'03 Conference, 2003.
- [6] Dmitriev S A, Lifanov F A, Savkin A E, et al. Plasma Plant for Radioactive Waste Treatment [C]. Tucson, AZ: WM'01 Conference, 2001.

- [7] Gillins R L, Geimer R M. Plasma Hearth Process Vitrification of DOE Low-Level Mixed Waste [C]. Orlando, FL: Electric Power Research Institute Low-Level Waste Conference, 1995.
- [8] Chin-Ching Tzeng, Yung-Yen Kuo, Tsair-Fuh Huang, et al. Treatment of Radioactive Wastes by Plasma Incineration and Vitrification for Final Disposal[J]. J Hazard Mater., 1998, 58: 207-220.
- [9] Shuey M W, Ottmer P P. LLW processing and operational experience using a Plasma Arc Centrifugal Treatment (PACTTM) system[C]. Tucson AZ: WM'06 Conference, 2006.
- [10] Heep W. The Zwiilag Plasma Facility "Five years of successful operation" [C]. Tsukuba, Japan: the 13th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, 2010.
- [11] Kelkar M, Heberlein J. Physics of an arc in cross flow [J]. Journal of Physics D: Applied Physics. 2000, 33(17): 2172-2182.
- [12] Voskuil T. Handbook: vitrification technologies for treatment of hazardous and radioactive waste [R]. Washington, DC: United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, 1992.
- [13] Jong-Kil Park, Young-Pyo Moon, Myung-Chan Lee, et al. non-combustible waste vitrification with plasma torch system [C]. Tucson, AZ: WM'00 Conference, 2000.
- [14] US DOE. MCC-1 Static Leach Test Method, Nuclear Waste Materials Handbook, Materials Characterization Center, 1982.
- [15] Sheng Jiawei. Vitrification of Borate Waste from Nuclear Power Plant Using Coal Fly Ash (I) Glass Formulation Development[J]. Fuel, 2001, 80: 1365-1369.

(责任编辑：张明军)