

# 核电站低中放固体废物热等离子体 处理研究进展

陈明周<sup>1</sup>, 吕永红<sup>1</sup>, 向文元<sup>1</sup>, 孟月东<sup>2</sup>

(1. 中科华核电技术研究院有限公司, 广东 深圳 518120; 2. 中科院等离子体物理研究所, 合肥 230031)

**摘 要:**结合核电站中产生的低中放固体废物现有处理技术的不足,介绍了热等离子体处理废物的原理、优点和处理放射性废物的进展,重点介绍了现有典型装置的反应器与系统构成,探讨了等离子体装置处理放射性废物值得注意的问题、技术难点与解决方向,以期国内开展相关的研究提供参考。

**关键词:**热等离子体;核电站;低中放固体废物;减容

中图分类号:TL941

文献标识码:A

核电站在运行与维护中会产生大量低中水平放射性固体废物,如废过滤器、废石棉布、浓缩液、污泥、废树脂等<sup>[1-3]</sup>。现行的处理方法通常为:分类、压缩(超级压缩)、水泥固化和混凝土固定。这些方法因技术成熟而被国内核电站广泛采用,但是处理工艺复杂、处理速度慢、废物包容率低、压缩后的废物核素浸出率高。随着我国核电的发展,核电站低中放固体废物处理问题将日益突出。为了进一步提高废物处理处置的安全性和经济性,发展能够显著减容且产物长期稳定的技术变得更加紧迫。

热等离子体处理废物时,废物中的有机成分在惰性和还原性气氛中被热解为小分子,无机成分熔融冷却后形成稳定的固化体,使用同一装置同时完成废物的减容减量和放射性核素的固定,处理过程不受处理对象的限制,处理速度快。国外的研究和应用表明,热等离子体技术是处理放射性废物最可靠的技术之一。

## 1 热等离子体技术

### 1.1 发生途径

典型的热等离子体是高强度电弧和等离子体炬(电弧等离子体发生器)产生的等离子体<sup>[4]</sup>。图1为两个水平碳电极之间的电弧<sup>[5]</sup>。

等离子体炬是利用压缩电弧产生热等离子体的装置。根据电源形式可以分为直流炬和交流炬,常用的是直流炬,结构如图2所示。

直流等离子体炬有两种操作模式:转移弧型(transferred arc)及非转移弧型(non-transferred arc)。当工作电流一定时,转移弧型等离子体炬借助改变工作气体的种类、流量以及炬与被处理物的间距来调节炬的功率,非转移弧型的炬主要是借着改变气体的种类与流量来实现。两种操作模式的直流炬结构如图3所示<sup>[6]</sup>。

### 1.2 石墨电弧与等离子体炬

工业中常用石墨电极产生电弧,石墨电弧与等离子体炬的比较主要有以下几个方面:

(1) 电极寿命:石墨电极可以在工作状态下连续续接,基本不用考虑寿命;而电极寿命始终是限制等离子体炬应用的主要因素。

收稿日期:2010-07-15

作者简介:陈明周(1978—),男,2002年毕业于广州大学物理与电子工程学院物理教育专业,2010年毕业于中科院等离子体物理研究所等离子体物理专业。E-mail:chenmingzhou@cgnpc.com.cn

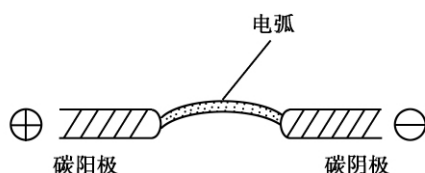


图1 水平自由电弧

Fig.1 Profile of horizontally free burning electric arc

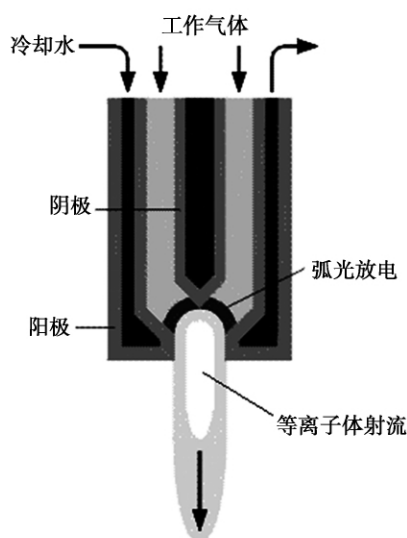


图2 直流等离子体炬

Fig.2 Direct current plasma torch

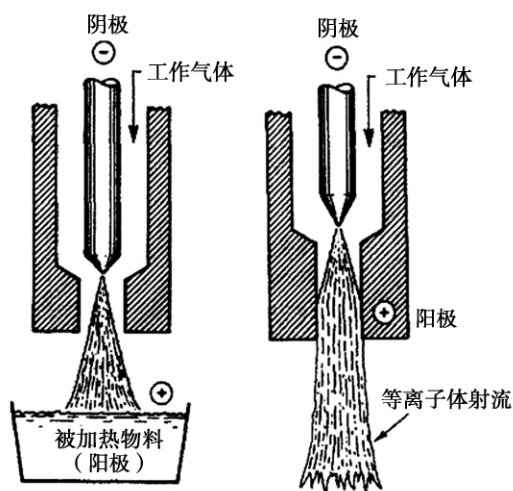


图3 转移型和非转移型直流炬

Fig.3 Transferred arc and non-transferred arc DC plasma torch

(2) 能量效率: 石墨电极无需水冷, 等离子体炬电极冷却水造成的热损失占 10%~30%<sup>[7]</sup>。

(3) 气流量: 处理废物的石墨电弧熔炉

中, 仅需很小流量的气流以维持炉内的气氛。对于等离子体炬, 通常增大气流量拉长弧长以提高炬的工作电压, 气流量大会增加颗粒物向尾气的夹带, 加大尾气处理的压力。

(4) 运行模式: 石墨电弧仅有转移弧模式, 而等离子体炬可以有转移弧和非转移弧两种模式, 操控更灵活。

(5) “冷帽”、“热帽”运行: “冷帽”是指在熔融的废物之上覆盖的未处理物料。“冷帽”能够有效捕集熔融中产生的挥发性污染物, 降低尾气中的污染物夹带。石墨电弧和转移弧型等离子体炬均可运行“冷帽”、“热帽”, 而非转移弧型等离子体炬通常只能进行“热帽”操作。

此外, 在熔融处理过程中, 直流、交流电弧与等离子体炬的功率分配也有很大差别, 如图4所示。

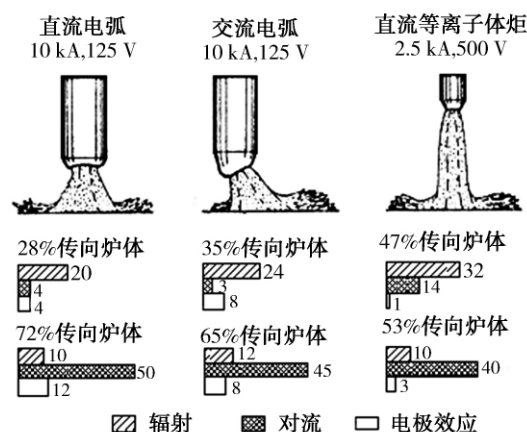


图4 功率为1.25 MW的直流电弧、交流电弧和直流等离子体炬功率分配

Fig.4 Power distribution of 1.25 MW DC arc, AC arc and DC plasma torch

由图4可见, 等离子体炬约一半的功率传向炉体, 这是由于等离子体炬靠拉长弧长提高弧压来提高功率, 而长弧增加了向炉体的热量传递, 增加了炉体的热负荷。基于工业应用考虑, 在废物处理中石墨电极等离子体炬技术的可靠性、可使用性和可维护性都是非常突出的, 而等离子体炬系统在操控上则更加灵活。

## 2 热等离子体处理废物的原理与特点

热等离子体通过以下过程处理废物<sup>[9]</sup>:

(1) 等离子体热解 (plasma pyrolysis), 利用等离子体的热能在无氧条件下打断废物中有机物的化学键, 使其成为小分子;

(2) 等离子体气化 (plasma gasification), 对废物中的有机成分进行不完全氧化, 产生可燃性气体, 通常是 CO 和 H<sub>2</sub> 以及其他一些气体的混合物, 又称合成气 (syn-gas)<sup>[9,10]</sup>;

(3) 等离子体玻璃化 (plasma vitrification), 对无机物熔融, 视废物成分加入适当的添加剂玻璃化, 产物玻璃体浸出率很低。

对于有机物含量高的固体废物, 通常是 (1) 和 (3) 或者 (2) 和 (3) 的结合。

与燃烧、焦耳加热等其他热处理方式相比, 热等离子体处理危险废物具有独特的优势<sup>[7,8]</sup>:

(1) 热等离子体具有高温和高能量密度, 处理速度快, 装置小而处理能力大;

(2) 能处理高熔点的难熔废物;

(3) 实验表明, 等离子体系统的气流量比传统的燃烧要小很多<sup>[11]</sup>。

因而, 热等离子体设施可以整合入废物产生的过程, 从源头上解决产生的废物。

## 3 热等离子体在放射性废物处理中的应用

作为两个核大国, 美国和俄罗斯对热等离子体处理放射性废物做了深入研究, 证明了该技术的可靠性。二战期间, 美国能源部 (U.S. DOE) 下属的机构生产军用的核材料, 造成分离核材料产生的高放废物 (HLW)、低放废物 (LLW) 和被超铀元素 (TRU) 污染的土壤等混合废物<sup>[12]</sup>。在 U.S. DOE 的支持下, 一些大学、国家实验室与公司合作研究热等离子体对放射性废物的玻璃化<sup>[12-17]</sup>, 具有代表性的成果有 Retech 公司的 PACT<sup>TM</sup> 和 IET 公司的 PEM<sup>R</sup>。

### 3.1 等离子体离心处理系统

Retech 的等离子体离心处理系统 (plasma-arc centrifugal treatment, PACT)<sup>[18,19]</sup> 的离心反应器为旋转坩埚, 转速为 15~40 rpm。

系统利用等离子体炬在反应器内产生 1 200~1 600 °C 的高温预先在反应器内形成熔融体作为处理废物的熔池 (见图 5)。反应器内保持负压 25~50 mbar (-5 000~-2 500 Pa)。尾气和熔体排放出口在坩埚中央, 通过控制转速排出熔体。

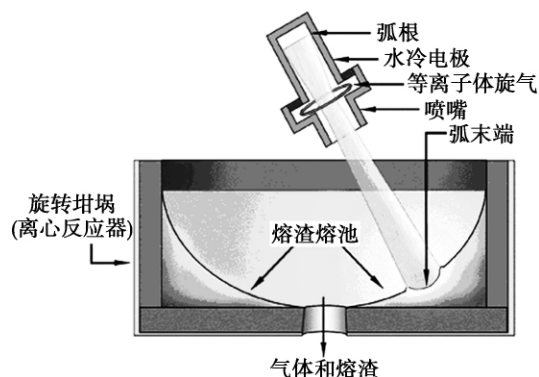


图 5 PACT 的反应器

Fig.5 Plasma reactor of PACT

PACT 系统流程如图 6 所示<sup>[19,20]</sup>。废物熔融后被排出注入钢模, 产生的气体被导入二次燃烧室, 通入空气完全燃烧。尾气净化处理后经过烟囱排入大气。

PACT 的优点主要有: (1) 炉体旋转使加热均匀, 与固定式熔融炉比较, 可提高效率两倍以上; (2) 排出口位于炉体中心, 通过控制转速排出熔体, 避免排出口的堵塞; (3) 多种进料方式, 包括螺旋进料、水平或垂直方式整桶进料; (4) 可以同时处理多种混合废物; (5) 炉内负压运行, 适合用于放射性废物的处理<sup>[21]</sup>。

PACT 系统在美国、德国、瑞士、日本等地已有工业应用。

### 3.2 等离子体增强熔炉<sup>[10]</sup>

根据美国“国家实验室-大学-企业三方合作计划”, 美国太平洋西北国家实验室 (PNNL)、麻省理工学院 (MIT) 与电热解公司 (Electro-Pyrolysis Inc., EPI) 合作, 研发了用于废物处理的直流石墨电极等离子体炉 Mark I<sup>[14,22]</sup>, 形成了 IET (现为 InEnteq) 的等离子体增强熔炉 (plasma enhanced melter, PEM<sup>R</sup>) 系统。

PEM<sup>R</sup> 融合了直流等离子体弧加热和玻璃

工业的电阻加热。3根直径为3英寸的石墨电极从炉盖插入炉内,接直流电,一根电极位于一种极性,另两根位于相反的极性,在熔体和电极间产生了稳定的等离子体弧。3根直径为6英寸的石墨电极从炉盖插入熔体渣池中,接三相交流电。反应器如图7所示。

PEM<sup>R</sup>的系统构成如图8,系统产生的合成气(syn-gas)引燃排放或者供给内燃机发电。

PEM<sup>R</sup>的优点主要有:(1)交流电的焦耳热使熔池中保持均匀的温度分布,并保证完全处理残存于熔池中的物料;(2)产生电

弧用的石墨电极的设计解决了装置电极消耗不均衡的问题。

PEM<sup>R</sup>用于放射性废物、医疗废物和电子垃圾等的处理,在美国、日本、台湾等地均有应用。

### 3.3 等离子体气化熔融炉<sup>[23,24]</sup>

俄罗斯库尔恰托夫研究院和莫斯科科学和工业联合体研发的等离子体气化熔融(Plasma Gasification Melting, PGM)系统主要处理莫斯科州(包括几个核电站)的放射性废物。该系统以等离子体炬作为热源的竖型炉为基础,如图9所示。直流等离子体炬采

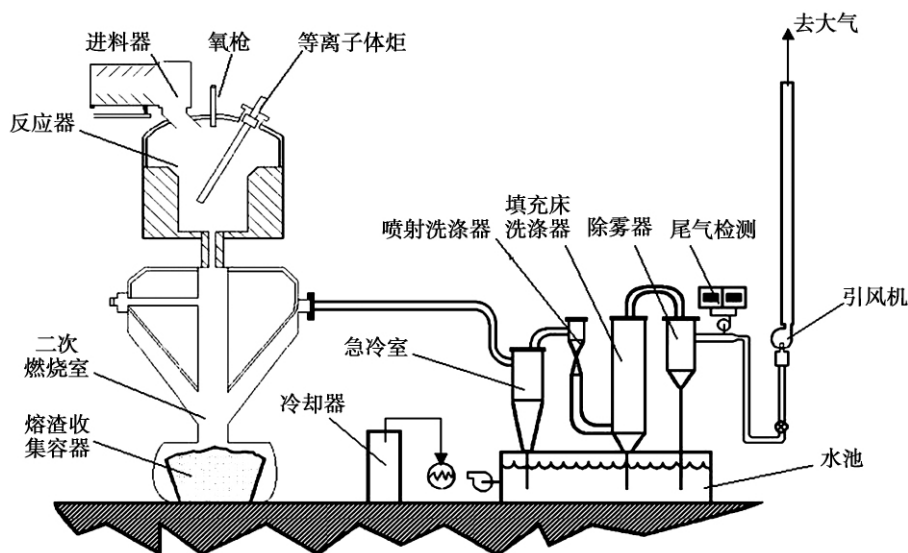


图6 PACT系统流程

Fig.6 Flow chart of PACT system

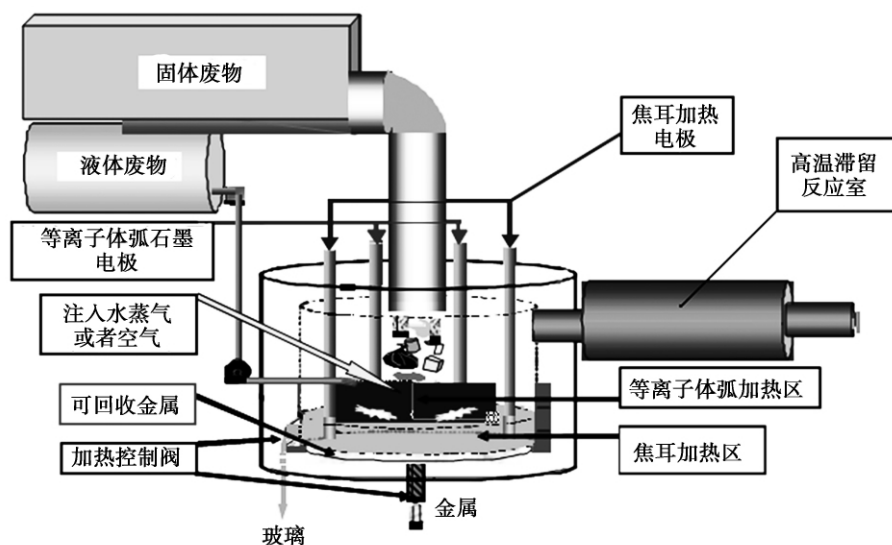


图7 PEM<sup>R</sup>的反应器

Fig.7 Schematic of PEM<sup>R</sup> process chamber



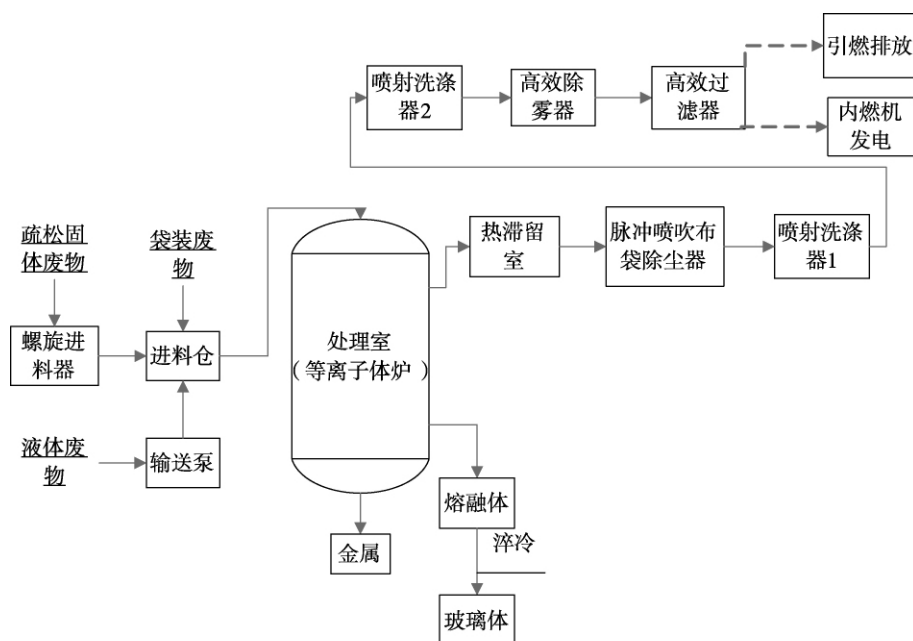


图 8 PEM® 工艺流程

Fig.8 Flow chart of PEM® system

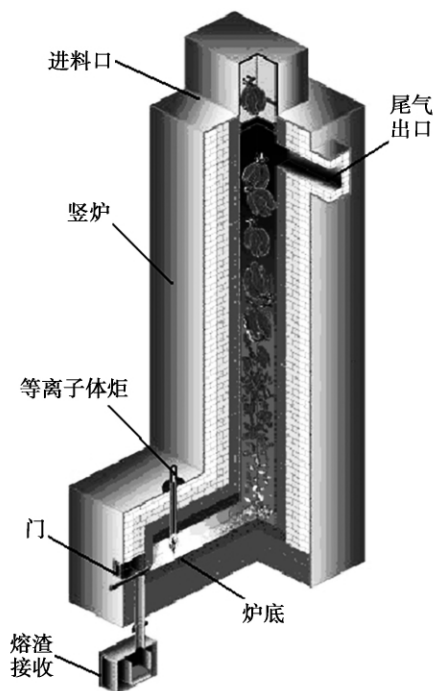


图 9 等离子体竖炉

Fig.9 General view of the shaft furnace

用空气为工作气体，功率为 60~150 kW。

图 10 为 PGM 的系统构成。系统产生的尾气经过燃烧、净化后排放。

与其他等离子体装置相比，PGM 的突出特点在于其竖炉设计。此结构的优点有：

(1) 热量充分利用，炉子的竖直部分为排气通道，废物在进料过程中吸收尾气的热量，依次被干燥—热解—气化—氧化直至熔融；(2) 抑制放射性核素的挥发。该装置的熔融部分在炉底，从熔融区到尾气排放出口温度梯度很大，废物沿竖直部分向下运动的过程中对尾气降温，吸收尾气中的放射性核素。据称，该装置对  $^{137}\text{Cs}$  捕集在熔渣中的比例超过 90%。

#### 4 结语

近年来，国内研究者开始关注热等离子体在废物处理中的应用，主要针对电子垃圾、飞灰等常规废物，放射性废物较少涉及。基于国外的研究与应用可以判断，该领域的研究将成为今后国内重要的方向。研究中需要注意到以下几个问题：

##### (1) 安全

热等离子体处理低中放固体废物涉及工业安全与核安全两个方面，需要严格的辐射防护屏蔽计算，其设计建造须符合核设施相关的国家规范，运行应遵守严格的安全操作规程。

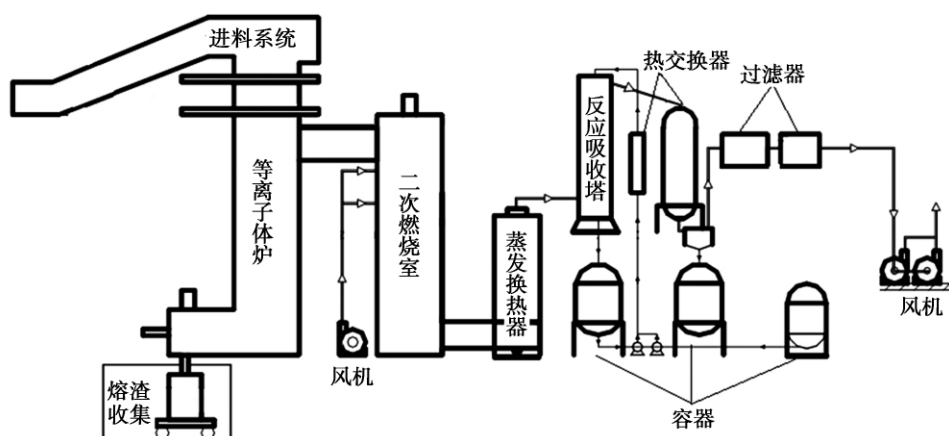


图 10 等离子体气化熔融炉系统

Fig.10 Plasma treatment unit flow sheet

### (2) 废物的配比

废物中的无机成分决定熔融的温度和熔体特性。高放废物玻璃化多采用焦耳加热装置，由于电极材料的限制和出于降低核素挥发的考虑，熔融温度通常控制在  $1\ 150\ ^\circ\text{C}$ ，必须通过适当的配比来调节废物的成分组成在所选体系的低共熔点附近。

对于等离子体装置，可以大幅提高处理温度（ $\sim 1\ 600\ ^\circ\text{C}$ ），替代品实验表明处理低中放混合废物时对废物配比的要求不用过于严格<sup>[29]</sup>，甚至无需加入添加剂<sup>[29]</sup>。考虑到节能、降低挥发和顺利出料，仍有必要控制废物的配比。

### (3) 熔渣的固定

熔融体经冷却形成的熔渣需要固定处理。由于减容效应，熔渣中的放射性浓度会高于原有废物。用现有的水泥桶或者混凝土桶固定表面辐射剂量率可能难以达到要求。因此，需要设计新的包装容器。

### (4) 尾气净化

对于热等离子体装置，放射性核素的挥发和夹带是关注的焦点。挥发程度受核素种类、处理温度、物料粒径、“冷”“热”帽模式等因素影响；夹带程度受气流量影响。低气流量、厚“冷帽”覆盖层可望降低核素向尾气中的迁移。在系统设计中，除了考虑二噁英、 $\text{NO}_x$  等常规污染物的净化，还需考虑对尾气中核素的捕集。

### (5) 装置的退役

IAEA 要求，核设施的建设要考虑方便退役。因此，在设计等离子装置时应尽可能减少部件与废物的接触，降低受污染的可能。

处理废物的热等离子体系统至少包括五个主要部分：热源（等离子体发生装置）、炉体、进料系统、出料系统以及尾气净化系统，如图 11 所示<sup>[26]</sup>。

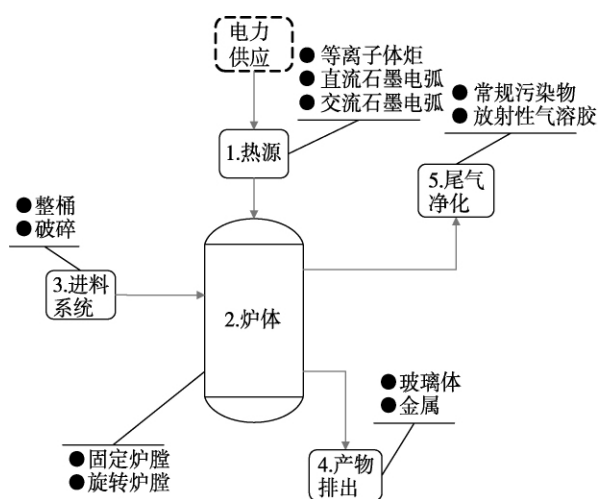


图 11 热等离子体废物处理系统组成

Fig.11 Basic components of thermal plasma system for waste treatment

发展热等离子体技术需解决的技术难题主要包括：

#### (a) 等离子体发生

采用石墨电极的装置产生电弧相对容易，

电极接续、电极与炉体间的动密封可以借鉴冶金工业的经验。利用等离子体炬的系统,首要的难题是研发大功率(几百千瓦~兆瓦级)、长寿命(上千小时)等离子体炬。国内曾有相关的研究,但仍然比较薄弱,需要加大研发力度。

#### (b) 进料

工业上希望废物无需预处理直接整桶送入等离子体装置,但 200 L 标准桶经联锁门直接送入难免会对炉体造成冲击;预先吊入炉内再启动等离子体装置仅适合批处理而不是连续处理。废物经过破碎连续送入炉膛是另外一种选择,但破碎后的废物在处理过程中会造成更多的扬尘,增加放射性核素的夹带。选择何种进料方式需要试验。

#### (c) 出料

出料时需要控制熔融体从熔炉的排出、停止以及注入接收容器的量。旋转坩埚型的装置难点在于精准控制转速;关于固定炉膛型的装置,垃圾焚烧灰熔融炉采用炉体倾倒、利用炉内的排渣堰结构<sup>[27]</sup>,或者在炉壁上直接开孔排放<sup>[9]</sup>,对于具有放射性的熔融体,这些方法均不适宜。PEM<sup>R</sup> 和处理高放废物的 VEK 装置<sup>[28,29]</sup>采用感应加热线,值得借鉴。

#### (d) 耐火材料寿命

耐火材料的寿命决定装置的整体寿命。对于如 PACT<sup>TM</sup> 的旋转坩埚装置,由于在炉膛内壁形成一层“凝壳”保护炉膛,几乎不考虑此问题。而对于固定炉膛型的装置,困难在于延长耐火材料的使用寿命与更换耐火材料内衬。

热等离子体应用于核电站低中放固体废物的减容在国外已经初具规模,国内因前期核电发展的停滞,该领域的研究基本为空白。当前国内处理常规废物的探索提供了一定的借鉴<sup>[30-34]</sup>。随着核电建设的提速有必要推进该项技术,发展出适合核电需求的低中放固体废物热等离子体处理系统。

#### 参考文献:

- [1] 黄来喜,何文新,陈德淦. 大亚湾核电站放射性固体废物管理[J]. 辐射防护, 2004, 24(3-4): 211-226.
- [2] 刘进军,陈坚. 田湾核电站放射性废物管理[J]. 辐射防护通讯, 2007, 27(6): 37-40.
- [3] 薛大海,周黎军,游志均. 秦山第三核电站放射性固体废物处理实践[J]. 辐射防护通讯, 2008, 28(4): 29-34.
- [4] Jerome Feinman. 等离子体技术在冶金中的应用[M]. 刘述临,金佑民,译. 北京:北京工业大学出版社, 1989: 72.
- [5] 过增元,赵文华. 电弧和热等离子体[M]. 北京:科学出版社, 1986: 1.
- [6] Hammer T. Application of plasma technology in environmental techniques[J]. Contrib Plasm Phys, 1999, 39(5): 441-462.
- [7] Gomez E, Amutha Rania D, Cheeseman CR et al. Thermal plasma technology for the treatment of wastes- A critical review[J]. J Hazard Mater, 2009, 161(2-3): 614-626.
- [8] Heberlein, Joachim, Murphy, Anthony B. Thermal plasma waste treatment[J]. J Phys D Appl Phys, 2008, 41(5): 427.
- [9] Moustakas K, Fatta D, Malamis S, et al. Demonstration plasma gasification-vitrification system for effective hazardous waste treatment[J]. J Hazard Mater B123, 2005, 120-126.
- [10] Environmental Technology Evaluation Center. Environmental Technology Verification Report for the Plasma Enhanced Melter[M]. 1801 Alexander Bell Drive Reston, Virginia: American Society of Civil Engineers, 2002: 1-62.
- [11] Dmitriev SA, Lifanov FA, Savkin AE et al. Plasma Plant For Radioactive Waste Treatment[C]. Tucson AZ: WM'01 Conference, 2001.
- [12] Schumacher RF, Kielinski AL, Bickford DF. et al. High-Temperature Vitrification of Low-Level Radioactive and Hazardous Wastes[C]. Atlanta Georgia: International Symposium on Environmental Technologies, 1995.
- [13] The Construction Research Center, College of Architecture, Georgia Institute of Technology. Evaluation of Plasma Arc Technology for the Treatment of Municipal Solid Wastes in Georgia[R]. Georgia Institute of Technology, Atlanta Georgia. 1997.
- [14] Schumacher RF. Clemson final report: High temperature formulations for SRS soils[R]. National Technical Information Service, U. S. Department of Commerce, 1997.
- [15] Thomas J, Overcamp, Matthew P, et al. Gaseous and Particulate Emissions from a DC Arc Melter[J]. J Air Waste Manage, 2003, 53(1): 13-20.
- [16] Bostick WD, Hoffmann DP, Stevenson RJ, et al.

- Surrogate Formulations for Thermal Treatment of Low-Level Mixed Waste, Part III Plasma Hearth Process Testing[ R]. USDOE Report DOE/MWIP-17, 1994.
- [ 17] Gillins RL, Geimer RM. Plasma Hearth Process Vitrification of DOE Low-Level Mixed Waste[ C]. Orlando, FL: Electric Power Research Institute Low-Level Waste Conference, 1995.
- [ 18] LLW Processing and Operational Experience Using a Plasma Arc Centrifugal Treatment ( PACTTM) System[ C]. Tucson AZ: WM'06 Conference, 2006.
- [ 19] Womack RK. Plasma Centrifugal Furnace Applications Analysis Report [ R]. Cincinnati, OH: EPA, Risk Reduction Engineering Laboratory, 1992.
- [ 20] 程昌明, 唐德礼. 热等离子体处理低放废物应用研究进展 [ J]. 环境污染与防治 ( 网络版), 2009, 9.
- [ 21] Womack RK. Using the centrifugal method for the plasma-arc vitrification of waste [ J]. Journal of Metals, 1999, 51 ( 10) : 14- 16.
- [ 22] Surma JE, Cohn DR, Smaltek DL, et al. Graphite Electrode Arc Technology Development for Treatment of Buried Wastes [ R]. Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1993.
- [ 23] Dmitriev SA, Lifanov FA, Savkin AYu, et al. Plasma plant for radioactive waste treatment[ C]. Tucson, AZ:WM'01 Conference, 2001.
- [ 24] Sobolev A, Dmitriev SA, Lifanov FA, et al. High Temperature Treatment of Intermediate-Level Radioactive Wastes -sial Radon Experience[ C]. Tucson, AZ:WM'03 Conference, 2003.
- [ 25] Solberg NR, Chambers AG, Ball L. Vitrification of Surrogate Mixed Wastes in a Graphite Electrode Arc Melter[ C]. Seattle, WA: 14. International Symposium on Thermal Treatment Technologies: Incineration Conference, 1995.
- [ 26] Jones JA. Vitrification melter study [ R]. Idaho Falls: U. S. Department of Energy Idaho Operations Office, 1995: 2- 3.
- [ 27] Kinto K. Ash Melting System and Reuse of Products by Arc Processing[ J]. Waste Manage, 1996, 16 ( 5/6) : 423- 430.
- [ 28] 杨祖辉. 德国 VEK 玻璃固化厂的概貌与进展 [ C]// 核化工三废处理处置学术交流会. 厦门, 2007: 28- 33.
- [ 29] Perez JM, Peeler DK, Bickford DF, et al. High-Level Waste Melter Study Report[ R]. Pacific Northwest National Laboratory: Richland, WA, 2001: 6- 15.
- [ 30] 黄建军. 固体废物等离子体高温热解装置与实验研究 [ D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2004.
- [ 31] 胡真, 刘初平, 束富荣, 等. 热等离子体技术销毁日本遗弃化武红弹装填物研究 [ J]. 安全与环境学报, 2006, 6 (6): 84- 87.
- [ 32] 潘新超. 直流热等离子体技术应用于熔融固化处理垃圾焚烧飞灰的试验研究 [ D]. 杭州: 浙江大学, 2007.
- [ 33] 丁恩振, 丁家亮. 等离子体弧熔融裂解——危险废物处理前沿技术 [ M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2009.
- [ 34] 陈明周. 直流电弧等离子体工程炉对生活垃圾焚烧飞灰的无害化研究 [ D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2010.

## Advances in Research on Thermal Plasma Treatment of Low Intermediate Level Solid Radwastes from NPPs

Chen Mingzhou<sup>1</sup>, Lv Yonghong<sup>1</sup>, Xiang Wenyan<sup>1</sup>, Meng Yuedong<sup>2</sup>

( 1. China Nuclear Power Technology Research Institute, Shenzhen, 518124;

2. Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, 230031)

**Abstract:** Based on the disadvantages of existing treatment technologies for low intermediate level solid radwastes (LILSW) from nuclear power plants (NPPs), the mechanism and advantages of thermal plasma treatment of radwastes are introduced. The features and application of some famous systems for radwastes treatment are illustrated. The problems worthy of additional attention, technology difficulties as well as probable solutions to developing thermal plasma LILSW volume-reduction technology are discussed.

**Key words:** thermal plasma, nuclear power plants, low intermediate level solid radioactive wastes (LILSW), volume reduction