

# 核电厂典型中低放射性废物等离子体 熔融处理试验研究

林 鹏, 陆 杰, 刘夏杰, 陈明周, 吕永红

(中广核研究院有限公司, 广东 深圳 518124)

**摘 要:** 选取国内压水堆核电厂两种典型的中低放射性废物开展等离子体熔融中试试验, 在 1250 °C 温度条件下熔融 100 min, 熔制成完全玻璃态的固化体, 两种玻璃固化体的 XRD 衍射谱均呈现为典型的非晶态谱; 并选取了非放射性的  $\text{Co}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{CsCl}$  作为放射性核素示踪剂, 模拟放射性核素  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{58}\text{Co}$ 、 $^{60}\text{Co}$  在核电站放射性废物等离子体熔融处理过程中的包容情况; 经检测, 玻璃固化体物理性能、抗浸出性能以及机械性能满足高放玻璃固化体要求, 且机械性能优于水泥固化体标准; 最后对后续试验进行了展望, 并提出了需要进一步解决的问题。

**关键词:** 中低放射性废物; 热等离子体; 玻璃固化体

中图分类号: TK264.9 文献标识码: A 文章编号: 1674-3962(2016)07-0504-05

## Investigation of Thermal Plasma Melting of Typical Intermediate and Low Level Radioactive Wastes from Nuclear Power Plant

LIN Peng, LU Jie, LIU Xiajie, CHEN Mingzhou, LV Yonghong

(China Nuclear Power Technology Research Institute, Shenzhen 518124, China)

**Abstract:** In this pilot scale testing research, two typical intermediate and low level radioactive wastes from the nuclear power plant were vitrified with thermal plasma. Both samples were melted at 1250 °C for 100 min, and the XRD patterns of both glass waste-forms presented as the typical amorphous state.  $\text{Co}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CsCl}$  had been added to the original wastes as the radionuclide tracer for simulating the containment effect of radionuclide in the process of vitrification. The physical, leaching and mechanical performance of resultant glass waste-forms were tested, showing the comparable requirement with the high level radioactive waste glasses and better mechanical properties than cement waste-form. Finally, we discussed the prospect of the current work and proposed issues to be resolved.

**Key words:** intermediate and low level radioactive wastes; thermal plasma; glass waste-form

### 1 前 言

核电是世界公认的清洁能源, 发展核电可减少化

石能源的消耗, 降低碳排放和污染物排放。随着我国核电行业的复苏和积极发展, 核电站放射性废物的妥善管理和安全处置已成为公众极为关注的问题。放射性废物减量化处理与安全处置技术的研究迫在眉睫。

热等离子体处理技术具有高温、高能量密度、适用性广等特点, 已在焚烧飞灰、医疗垃圾、多氯联苯等危险废物处理领域得到应用, 由此成为放射性废物处置技

收稿日期: 2015-12-31

第一作者: 林 鹏, 男, 1983 年生, 高级工程师, Email:  
lin\_peng@cgnpc.com.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.2016.07.04

术的研究重点<sup>[1]</sup>。目前美国、日本、韩国、台湾等国家和地区均开展了相关研究, 研究显示热等离子体处理放射性废物可实现高减容、核素稳定包容的效果<sup>[1-4]</sup>。我国尚未开展核电厂放射性废物热等离子体处理的系统中试试验, 本文将选取两种压水堆核电厂典型的中低放射性废物, 开展等离子体熔融处理试验研究, 并分析玻璃固化体性能参数、尾气排放参数以及放射性核素迁移情况, 从而判断放射性废物等离子体处理系统的适用性。

## 2 实验方法

### 2.1 实验样品

选取国内某压水堆核电厂未沾污的两种典型放射

性废物, 分别为废保温棉和棉织品作为模拟废物。废保温棉经过初步破碎呈团状, 破碎后尺寸约 10 cm; 棉织品在马弗炉内经过充分焚烧后制备焚烧灰, 并防止棉织品焚烧灰在等离子体熔融处理过程中的飞灰现象, 采用压缩造粒处理, 造粒后颗粒直径约为 15~20 mm。参考 GB/T1549-2008《纤维玻璃化学分析方法》和 GB/T1574-2007《煤灰成分分析》, 分析实验样品的成分如下表 1 所示。实验前, 将实验原料置于恒温干燥箱中, 在 105 °C 的温度条件下干燥 1 h 以上, 以消除实验样品中水分的影响。

表 1 两种压水堆核电站常见技术废物成分

Table 1 Composition of two typical radioactive wastes from nuclear power station

| Original wastes                            | Composition of two typical radioactive waste (ω/%) |                               |                   |      |     |     |                  |     |                                |                                |
|--|--|-------------------------------|-------------------|------|-----|-----|------------------|-----|--------------------------------|--------------------------------|
|  | SiO <sub>2</sub>                                   | B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | Na <sub>2</sub> O | CaO  | MgO | CuO | TiO <sub>2</sub> | ZnO | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| Heat insulating waste (BX)                 | 71.7   | 2.27                          | 15.68             | 7.88 | 2.0 | -   | -                | -   | 0.486                          | -                              |
| Incineration ash of cotton production (MZ) | 14.9   | 4.07                          | 1.01              | 74.6 | -   | -   | -                | -   | 3.01                           | 2.38                           |



图 1 处理后的模拟废物: (a) 废保温棉, (b) 棉织品焚烧灰

Fig.1 Simulated radioactive waste: (a) heat insulating waste; (b) incineration ash of cotton production

根据前期玻璃化配方试验研究经验, 基础玻璃配方将决定所得到的玻璃体性能, 在此选择硼硅酸盐玻璃为基础配方, 并根据实验样品的原始成分, 选择合理的添加剂<sup>[5]</sup>。本实验中的添加剂主要包括硼酸、碳酸钠、二氧化硅。表 2 为优化后的玻璃固化配方。

采用模拟放射性核素进行同位素示踪, 主要考虑模拟反应堆运行、维护期间产生的放射性核素包括裂变产物 <sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr 和活化产物 <sup>58</sup>Co、<sup>60</sup>Co, 故示踪元素暂定为用非放射性的 Sr、Co、Cs, 它们分别占固化体配方氧化物质量的约 0.2%。示踪元素的添加量确保

表 2 玻璃固化配方及示踪剂添加量<sup>[5]</sup>

Table 2 Glass melter feed composition and the addition of tracers<sup>[5]</sup>

| Samples | Glass melter feed composition (ω/%) |                                |                                 |                                |                  | Addition of tracers (ω/%)      |                   |       |
|---------|-------------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|------------------|--------------------------------|-------------------|-------|
|         | Original wastes                     | H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> | Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | SiO <sub>2</sub> | Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | SrCO <sub>3</sub> | CsCl  |
| BX      | 77                                  | 23                             | -                               | -                              | -                | 0.212                          | 0.232             | 0.224 |
| MZ      | 45                                  | 12                             | 15                              | -                              | 28               | 0.195                          | 0.221             | 0.194 |

示踪核素在达到或接近规定的浸出率上限时被检出,且不会引起实验对象化学组成的显著变化。示踪剂采用  $\text{Co}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SrCO}_3$  和  $\text{CsCl}$ , 表 2 给出了示踪剂的添加量。

## 2.2 实验装置

本系统为核电厂中低放射性废物等离子体熔融处理冷试平台, 主要包括等离子体炉、二燃室、尾气净化系统和控制系统, 设计处理能力为 50kg/h。熔融炉配备 3 支额定功率为 120 kW 的非转移弧型电弧等离子体发生器。可处理对象包括防护服、废抹布、废塑料、小型废金属、废保温棉、废过滤器芯、废树脂等核电厂技术废物和工艺废物。试验装置图如图 2 所示。



图 2 等离子体熔融装置照片

Fig. 2 Photo of plasma melting system

## 3 实验结果及分析

### 3.1 熔融温度与时间

实验中记录了等离子体发生器的功率、熔融炉的运行温度以及模拟废物的熔融时间。

由图 3 所示, 等离子体发生器功率可在 10 min 内

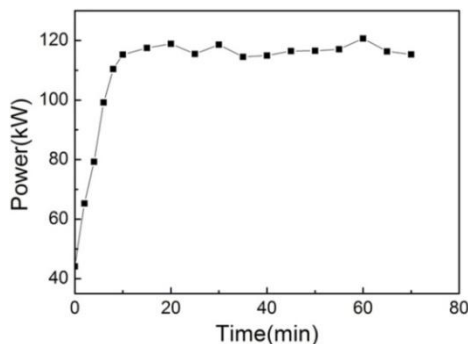


图 3 等离子体发生器功率随运行时间的变化曲线

Fig. 3 Variation of power of plasma torch with time

### 3.2 玻璃固化体

#### 3.2.1 XRD 分析

两种模拟废物经等离子体熔融制备得到的玻璃固

## 2.3 实验方法

将模拟废物与玻璃化配方添加剂混合均匀后称重包装, 单包重量为 5 kg, 采用批次进料、批次处理的实验方式。模拟废物送入等离子体熔融炉内之后, 启动等离子体发生器并调节功率使炉膛温度稳定在 1250 °C 左右。模拟废物完全熔融之后, 关闭发生器, 打开炉体底部下料通道, 熔融玻璃体接收至取样容器内空冷至室温, 最后对固化体取样分析。实验中测试了系统运行参数和玻璃体性能, 由于未添加有机废物, 故在此次实验中未进行污染气体参数的监测。

升至指定功率 115 kW, 并维持在指定功率下运行, 从而加热和维持熔融炉温度在工作温度下。由图 4 可见, 熔融炉由室温升至 1250 °C 所需时间约为 3 h, 待达到工作温度时开始投料, 熔融时间约为 100 min 后, 通过挑料经验判断, 已形成玻璃态后由底部出料, 并关机停炉, 待熔融玻璃体空冷至室温后, 取样分析。

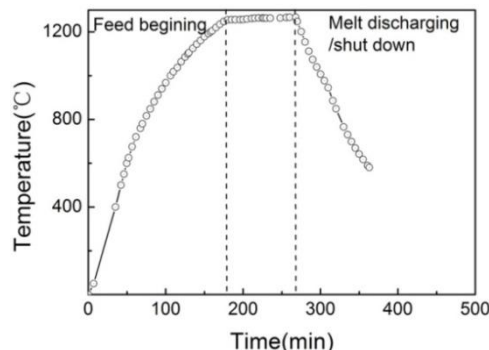


图 4 熔融炉温度随运行时间的变化曲线

Fig. 4 Variation of temperature of melting furnace with time

化体如图 5 所示, 外观呈现明显的玻璃形态; 玻璃固化体的 XRD 衍射谱如图 6 所示, 可以看出两种玻璃固化体的衍射峰呈现典型的非晶态谱, 说明两种模

拟废物经等离子体熔融后得到的固化体都为完全玻璃态。

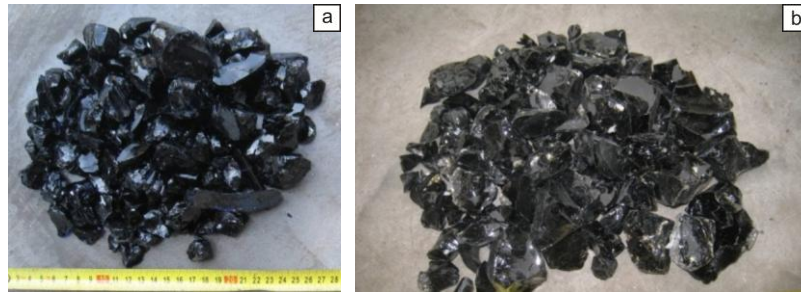


图 5 玻璃固化体：(a) 废保温棉，(b) 棉织品焚烧灰

Fig. 5 Glass waste-forms: (a) heat insulating waste; (b) incineration ash of cotton production

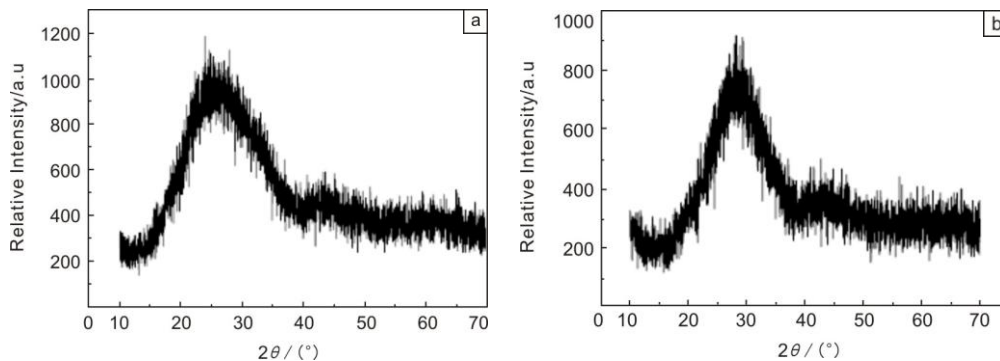


图 6 玻璃固化体的 XRD 衍射谱：(a) 废保温棉，(b) 棉织品焚烧灰

Fig. 6 XRD patterns of glass waste-forms: (a) heat insulating waste; (b) incineration ash of cotton production

### 3.2.2 固化体性能分析

鉴于我国尚无与低、中放废物玻璃固化体相关的标准，我们借鉴其他研究工作确定固化体需要达到如下指标：①密度：参考高放玻璃固化体， $\geq 2.5 \text{ g/cm}^3$ ；②浸出性：在  $90^\circ\text{C}$  去离子水中，静态浸泡 28 天单位面积的总失重  $\text{ML} \leq 15.0 \text{ g/m}^2$ ，Si, B, Na, Cs, U 的归一化元素浸出率应小于  $1 \text{ g/(m}^2 \cdot \text{d)}$ ；③抗压强度：优于水泥固化体，即  $\geq 7 \text{ MPa}$ ；④抗冲击性能：参考高放玻璃固化体，应不大于  $12 \text{ cm}^2/\text{J}$ 。

参考 GB475-2008 中静态煤采样方法，对冷却后的玻璃固化体，以十字交叉原则，取四个象限中心点的样品，共 4 组。参考 GB/T 5432 规定，采用浮力法测定固化体密度；参照 ASTM C 1220 静态浸出试验方法测定固化体归一化元素浸出率；参照 GB/T 8489 要求测定固化体抗压强度；参照 EJ 1186-2005，采用重锤自由落体冲击试验方法测定固化体抗冲击强度。经检测两种模拟废物等离子体熔融得到的玻璃固化体性能参数如下表 3 和表 4。

由表 3、4 可以看出，两种模拟废物等离子体熔制

的玻璃固化体的物理性能、抗浸出性能以及机械性能均满足 EJ 1186-2005<sup>[6]</sup>的处置要求。由表 4 可以看出所添加示踪核素 Cs, Co 和 Sr 归一化元素浸出率均低于  $1 \text{ g/(m}^2 \cdot \text{d)}$ ，但 Cs 和 Sr 浸出率均低于仪器检测限，经分析可能原因有两点：一是玻璃固化体抗浸出性能较好；二是示踪核素在高温下挥发，导致玻璃体核素包容性差；鉴于以上两点需进一步的核素迁移及分布规律试验验证，如玻璃固化体成分分析、核素系统截留率试验分析等。

## 4 结 论

(1) 两种模拟废物以硼硅酸盐玻璃为基础配方，均在  $1250^\circ\text{C}$  条件下熔融 100 min 可得到完全的玻璃固化体。

(2) 两种玻璃固化体密度均大于  $2.5 \text{ g/cm}^3$ ，浸出总失重均小于  $7 \text{ g/m}^2$ ，抗压强度均大于  $80 \text{ MPa}$ ，抗冲击性能均小于  $10 \text{ cm}^2/\text{J}$ ；各性能均满足高放玻璃固化体性能要求，同时机械性能远超水泥固化体标准。

(3) 后续将进一步开展放射性核素迁移及分布

表 3 玻璃固化体物理性能

Table 3 Physical properties of glass waste-forms

| Samples | Density (g/cm <sup>3</sup> ) | Weightlessness (g/m <sup>2</sup> ) | Compression strength (MPa) | Shock resistance (cm <sup>2</sup> /J) |             |
|---------|------------------------------|------------------------------------|----------------------------|---------------------------------------|-------------|
| BX      | 1#                           | 2.52                               | 4.8                        | 74                                    | 8.5         |
|         | 2#                           | 2.62                               | 3.5                        | 95                                    | 7.9         |
|         | 3#                           | 2.52                               | 4.7                        | 78                                    | 7.9         |
|         | 4#                           | 2.54                               | 3.8                        | 81                                    | 8.2         |
|         | Mean value                   | 2.55                               | 4.2                        | 82                                    | 8.125       |
|         | Standard deviation           | 0.047609523                        | 0.64807407                 | 9.128709292                           | 0.287228132 |
| MZ      | 1#                           | 2.82                               | 5.9                        | 136                                   | 9.2         |
|         | 2#                           | 2.6                                | 7.1                        | 123                                   | 10.4        |
|         | 3#                           | 2.61                               | 6.8                        | 129                                   | 9.6         |
|         | 4#                           | 2.69                               | 6.8                        | 124                                   | 10.7        |
|         | Mean value                   | 2.68                               | 6.65                       | 128                                   | 9.975       |
|         | Standard deviation           | 0.101653005                        | 0.519615242                | 5.944184833                           | 0.694622199 |

表 4 玻璃固化体抗浸出性能

Table 4 Leaching performance of glass waste-forms

| Samples | Normalized leaching rate/g/(m <sup>2</sup> d) |             |             |             |    |             |             |
|---------|---|-------------|-------------|-------------|----|-------------|-------------|
|         | Si  | B           | Na          | Cs          | Co | Sr          |             |
| BX      | 1#  | 0.362       | 0.497       | 0.008       | -  | 0.355       | -           |
|         | 2#  | 0.258       | 0.372       | 0.006       | -  | 0.257       | -           |
|         | 3#  | 0.359       | 0.516       | 0.008       | -  | 0.332       | -           |
|         | 4#  | 0.277       | 0.399       | 0.006       | -  | 0.272       | -           |
|         | Mean value                                    | 0.314       | 0.446       | 0.007       | -  | 0.304       | -           |
|         | Standard deviation                            | 0.054264783 | 0.071147734 | 0.001154701 | -  | 0.046968074 | -           |
| MZ      | 1#  | 0.259       | 0.353       | 0.409       | -  | 0.004       | 0.608       |
|         | 2#  | 0.324       | 0.447       | 0.496       | -  | 0.006       | 0.726       |
|         | 3#  | 0.301       | 0.424       | 0.471       | -  | 0.005       | 0.693       |
|         | 4#  | 0.308       | 0.412       | 0.468       | -  | 0.005       | 0.685       |
|         | Mean value                                    | 0.298       | 0.409       | 0.461       | -  | 0.005       | 0.678       |
|         | Standard deviation                            | 0.027724838 | 0.040058291 | 0.036869138 | -  | 0.000816497 | 0.049926613 |

规律研究, 并优化工艺参数, 提高热等离子体技术在放射性废物处理领域中的适用性。

## 参考文献 References

- [1] Womack R K, Shuey M W. Development and Use of the Dualmode Plasma Torch [C]// *Proceedings of the Waste Management Conference*. Tucson, Arizona, USA: 2002: 200-208.
- [2] Nakashima M, Fukui T, Nakashima N, et al. *Journal of Nuclear Science and Technology*[J], 2002, 39(6):687-694.

- [3] Park J K, Song M J. *Waste Management*[J], 1998, 18(3):157-167.
- [4] Tzeng C C, Kuo Y Y, Huang T F, et al. *Journal of Hazardous Materials*[J], 1998, 58(1/3):207-220.
- [5] Lin Peng(林 鹏), Qin Yuxin(秦余新), Lv Yonghong(吕永红), et al. *Radiation Protection*(辐射防护)[J], 2013,33(4):206-211.
- [6] EJ 1186-2005. 放射性废物体和废物包的特性鉴定[S]. 2005.
- [7] 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[S]. 2011.

(编辑 惠琼)