

文章编号: 0253-9950 (2009) S0-0035-10

乏燃料干法后处理技术研究进展

刘学刚

清华大学 核能与新能源技术研究院, 北京 102201

摘要: 本文介绍了近年来各国的干法后处理研究计划, 对干法后处理技术路线、流程特点和发展现状进行了综述。

关键词: 乏燃料; 干法后处理

中图分类号: TL241.2 **文献标志码:** A

Research on Dry Reprocessing Technology of Spent Nuclear Fuel

LIU Xue-gang

Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 102201, China

Abstract: In this paper, worldwide research projects of dry reprocessing technology are introduced. The technical routes of dry reprocessing, their features and current status are summarised.

Key words: spent nuclear fuel; dry reprocessing

目前世界核电总装机容量约为 370 GWe, 占全球电力需求的 16%。每年, 全世界核电卸出的乏燃料约为 10 500 tHM, 截至 2008 年累计卸出的乏燃料总量已超过 270 000 tHM。乏燃料的处理处置问题已成为影响核电可持续发展的关键问题。目前对乏燃料的管理主要有 3 种燃料循环的方式: (1)“一次通过”方式, 即将乏燃料进行直接地质处置; (2)“后处理热堆循环”方式, 即回收乏燃料中 U, Pu 并在热堆复用; (3)“先进核燃料循环”方式, 即回收乏燃料中 U, Pu, 并在快堆中多次循环, 将次要锕系核素 (MA) 进行嬗变。其中, 先进核燃料循环

方式对铀资源的利用率最大, 产生的需要进行最终地质处置的废物量最小, 已逐渐成为各国核燃料循环的主流研究方向。

在先进核燃料循环中, 关键步骤之一是对高能耗的热堆乏燃料、快堆乏燃料或者嬗变系统辐照后靶件中的 U, Pu 和 MA 进行分离。这些乏燃料或靶件具有高能耗、高辐照、高含钚量的特点, 这使得传统的以 TBP 为萃取剂的水法后处理流程难以满足分离需要。另一类后处理技术——干法后处理技术再次受到人们关注。干法后处理 (dry reprocessing) 的过程中不使用水作为溶剂, 其主要的分离步骤在高温下

收稿日期: 2009-03-02

作者简介: 刘学刚 (1976—), 男, 北京人, 博士, 副研究员, 核化工专业

进行。流程具有耐辐照、低临界风险、放射性废物少等优点, 适宜处理高燃耗、短冷却期乏燃料, 有希望满足先进核燃料循环中对乏燃料或者嬗变靶件的分离需要。近年来, 世界上主要的核能大国(美国、俄罗斯、日本等)都加大了干法后处理技术的研究力度。

本文介绍了近年来世界主要国家的干法后处理研究计划, 对干法后处理技术路线、流程特点和发展现状进行了综述, 同时也介绍了我国对干法后处理技术的研究现状。

1 国外对干法后处理的研究

1.1 美国

美国是最早开展干法后处理研究的国家之一, Argonne (ANL)、Los Alamos (LANL)、Oak Ridge (ORNL) 和 Idaho (INL) 等国家实验室都开展过干法后处理流程的研究。早期开展的研究方向主要有:

(1) 氟化挥发法: 利用 U, Pu 的氟化物与裂变产物的挥发性不同来实现分离。虽然分离过程的概念简单, 但是实际操作中设备材料腐蚀严重、Pu 的挥发性与非挥发性形态间的转变困难。该方法的研究随着 1973 年美国熔盐反应堆工程的下马而陷于停滞, 目前美国虽然也有氟化挥发法方面的文章发表, 但是基于氟化挥发法的后处理流程已经不再是 DOE 的研究主流^[1]。

(2) 熔盐金属萃取法: 利用 U 和裂变产物在熔融氯化盐和液态金属 Bi 体系中的分配比差异来实现分离。但是, 熔盐金属萃取后处理流程作为液态金属快堆工程的一部分, 也在 20 世纪 70 年代停止。

在 20 世纪 80 年代, 美国提出了一体化快堆 (integral fast reactor, IFR) 研究计划^[2-3], 采用高温冶金和电化学技术对乏燃料进行干法后处理。这种干法后处理流程的关键步骤是 IFR 金属乏燃料的熔盐电精制过程, 其原理示意图示于图 1。

电精制过程在 500 °C 和 Ar 气保护下进行。在电解池的底部注入液态 Cd, 上部以 LiCl+KCl 混合物作为电解熔盐介质。将切割后的乏燃料装在阳极吊篮中, 以不锈钢作为固体阴极, 液态 Cd 作为液体阴极, 浸没到熔盐中进行电解。在电精制过程中, 阳极的金属乏燃料熔解, 乏燃料中的 U, TRU、稀土元素、其他裂变产物

等得以分离。最终在固体阴极上得到 U, 液体阴极池中得到 U, TRU 和少量稀土的混合物, 乏燃料中的其他裂变产物(主要是碱金属和碱土金属)与 U, Pu 分开, 在电解池中的熔盐和液态 Cd 中进行分配。

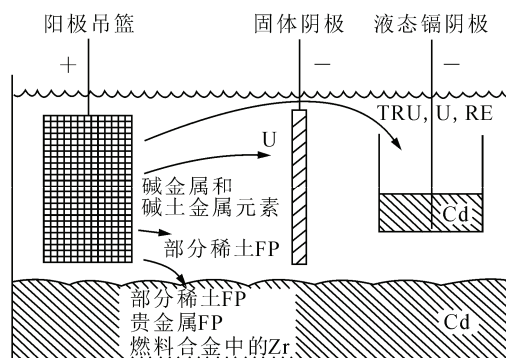


图 1 电精制过程原理示意图

Fig. 1 Schematic diagram of electrorefining process

熔盐电精制技术随后用于处理 EBR-II (experimental breeder reactor-II) 的乏燃料。EBR-II 的驱动燃料使用富集度 55%~76% 的浓缩铀和钍的合金, 增殖层燃料为贫铀^[4]。电化学冶金处理 (electrometallurgical treatment, EMT) 对反应堆驱动燃料和增殖层燃料的后处理和废物进行整备, 该法的核心仍然是熔盐电精制技术。

处理 EBR-II 的乏燃料后处理流程示意图示于图 2^[5], 其中熔盐电精制的过程与图 1 所示类似, 阴极过程 (cathode processor) 用于分离纯化电沉积在固体阴极的 U, 以及分离液体阴极池中的 Cd, U, TRU、稀土混合物。电精制过程产生的废熔盐进入陶瓷废物处理程序 (ceramic waste process) 直接固化成陶瓷废物或者将熔盐进行再生, 返回电解池复用。

到 2007 年, INL 使用熔盐电精制流程已经成功处理了 3.4 t 的 EBR-II 乏燃料, 其中 830 kg 为驱动燃料, 其余为增殖层燃料。INL 的报告^[6-7]指出, 在电精制过程中, 阳极的乏燃料能够完全熔解, 铀钚的熔解率分别为 99.8% 和大于 99%, 电流效率最高达到 80% 左右。但是熔解速度不快, 成为限制电精制速度的关键步骤。液体阴极得到的产品中 U 的含量在 25%~60%, 基本满足将液体阴极的混合 TRU 产物进行快堆嬗变的需要。经过处理, 液态阴极混合物中 99% 的 Cd 可以分离, 减少了阴极废物体积。

为将电化学冶金处理方法推广应用于轻水堆氧化物乏燃料的后处理，ANL 提出了 1 个干法处理 LWR 氧化物乏燃料的流程——Pyrochemical Reduction Process (PYROX) 流程^{[8]86}，示于图 3。

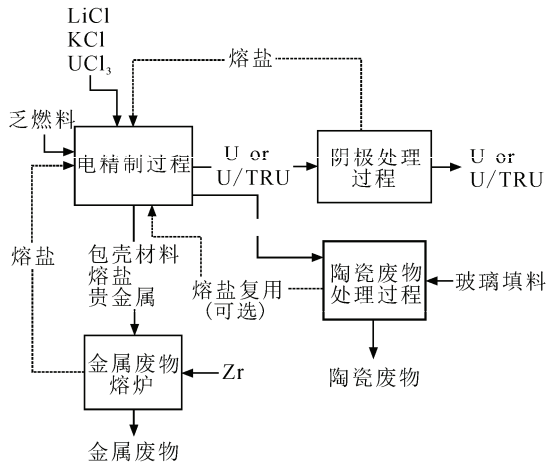


图 2 EBR-II 乏燃料后处理流程图

Fig. 2 Reprocessing processing of EBR-II spent nuclear fuel

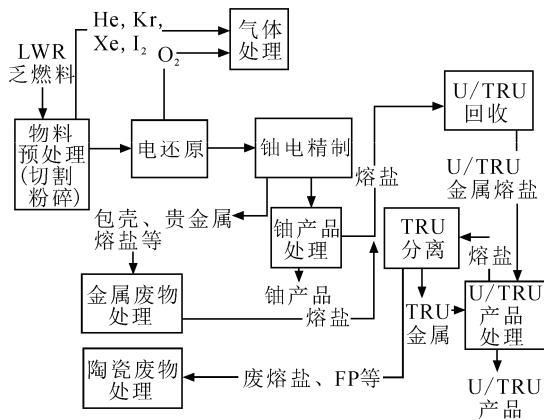


图 3 处理 LWR 氧化物乏燃料的 PYROX 流程示意图
Fig. 3 PYROX process for LWR spent fuel reprocessing

ANL 和 INL 对轻水堆乏燃料干法后处理首端的电还原方法进行了研究^[9-10]。电还原处理氧化物燃料的过程示于图 4。电还原过程在 650 °C 下进行，氧化物燃料切割后放入 1 个不锈钢吊篮中浸没在 LiCl-Li₂O (w(Li₂O)=1%) 熔融体系中作为阴极，一段 Pt 丝浸没在熔融盐中作为阳极。在电流的作用下，阴极的 UO₂ 被还原成 U 金属。在阴极附近，也有部分 Li⁺ 会还原成金属

Li，这部分 Li 马上把周围的 UO₂ 还原成 U 金属。为避免金属 Li 迁移到阳极与 Pt 丝反应，在阴极吊篮上又增加了次级电流回路来氧化 Li。

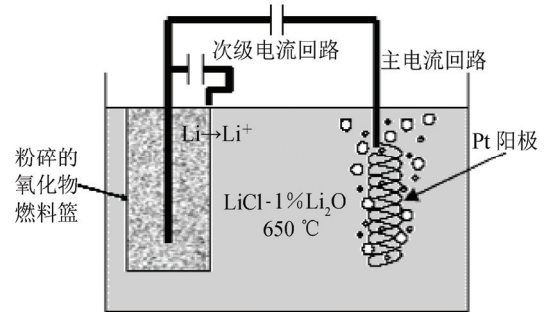


图 4 INL 氧化物燃料电还原处理的原理示意图

Fig. 4 Schematic diagram of oxide nuclear fuel electroreduction proposed by INL

INL 使用 Belgium Reactor 3 (BR3) 轻水堆乏燃料在不更换电解液的情况下连续处理 3 批乏燃料，每批乏燃料约为 45 g。结果表明^[10]，乏燃料中超过 98% 的 U 被还原成金属 U，而 Cs, Sr 和 Ba 进入熔盐，TRU、稀土和贵金属仍留在阴极吊篮中，大部分稀土和 Zr 仍然以氧化物的形式存在。首端氧化物乏燃料的电还原结果，基本达到了 PYROX 流程处理 LWR 乏燃料的需要。

1.2 俄罗斯

俄罗斯（前苏联）从 20 世纪 50 年代至今从未间断对干法后处理技术的研究，在氟化挥发法和电化学氧化物沉积法 (electrowinning) 的研究方面取得过很大成果。

20 世纪 60 年代，俄罗斯曾经建设了 FREGAT 工厂来进行氟化挥发法的研究，并使用 BOR-60 真实乏燃料进行了多次氟化挥发法的实验^[11-12]，并将回收的 UF₆ 转化成 UO₂ 制成燃料再次辐照。其后处理过程的示意图示于图 5^[13]。结果表明^[12]：（1）UF₆ 的去污系数可达 10⁷，PuF₆ 的去污系数约为 10³~10⁴；（2）U 的收率大于 99%，Pu 的收率为 89%~91%。近年来，俄罗斯仍然在进行氟化挥发法研究，包括与 AREVA 联合开展的氟化挥发法工业化的可行性研究^[13]、与日本合作开展的 FLUOREX 流程研究^[14-15]，但是研究工作仅限于实验室规模，未用乏燃料进行实验，也未提出新的提高氟化挥发流程 Pu 收率的方法。

俄罗斯 Research Institute of Atomic Reactors (RIAR, Dimitrovgrad) 在对电化学氧化物沉积法 (electrowinning) 的研究方面取得了很大的进展, 所提出的 DDP (dimitrovgrad dry process) 流程可对氧化物乏燃料进行干法后处理^[16]。其后处理产品可以是纯 UO_2 和 PuO_2 , 也可以是 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$, 2 种产品对应的处理流程示于图 6, 7^{[8]49}。DDP 流程首先在 $660\text{ }^\circ\text{C}$ 下, 向 $\text{NaCl}+\text{CsCl}$ 熔盐体系中通入氯气。在氯气的作用下, 熔融的 U 以 UO_2^{2+} 形式存在, 可以以 UO_2 形式沉积在阴极上。在体系中通入氯气、氧气和氮气时, 熔融的铀钚可以 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 的形式共沉淀到阴极上。熔融在熔盐中的 MA , RE 可以通过磷酸盐沉淀的方法和熔盐分离。DDP 流程已经进行了半工业规模的实验, 累计处理了来自 BOR-60, BN-350 等反应堆的多种乏燃料^[17-19], 实验取得的去污系数列入表 1^{[8]50}。实验中, U 的收率均大于 99%, Pu 在一次电沉

积的收率约为 95.6%。如果将含 Pu 的废熔盐返回首端复用, 有可能将 Pu 的收率提高到 99% 以上。目前, DDP 流程是唯一列入俄罗斯半工业项目的干法后处理流程。

1.3 日本

日本的 Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI), Japan Atomic Energy Agency (JAEA) 和 Tokyo, Kyoto 大学和 Hitachi 公司等开展了干法后处理的研究, 所选择的研究方向很多, 包括对氟化挥发法、熔盐电精制法、氧化物电沉积、电化学还原萃取等方法的跟踪和创新性研究等。

CRIEPI 主要研究处理金属燃料快堆 U-Pu-Zr 乏燃料的干法后处理流程, 也开发了首端使用 Li 还原或者电还原的乏燃料还原过程^[20-21], 使得该流程可以应用于 LWR 氧化物乏燃料。CRIEPI 开发的熔盐电精制流程与美国开发的流程相似, 流程图示于图 8^[22]。

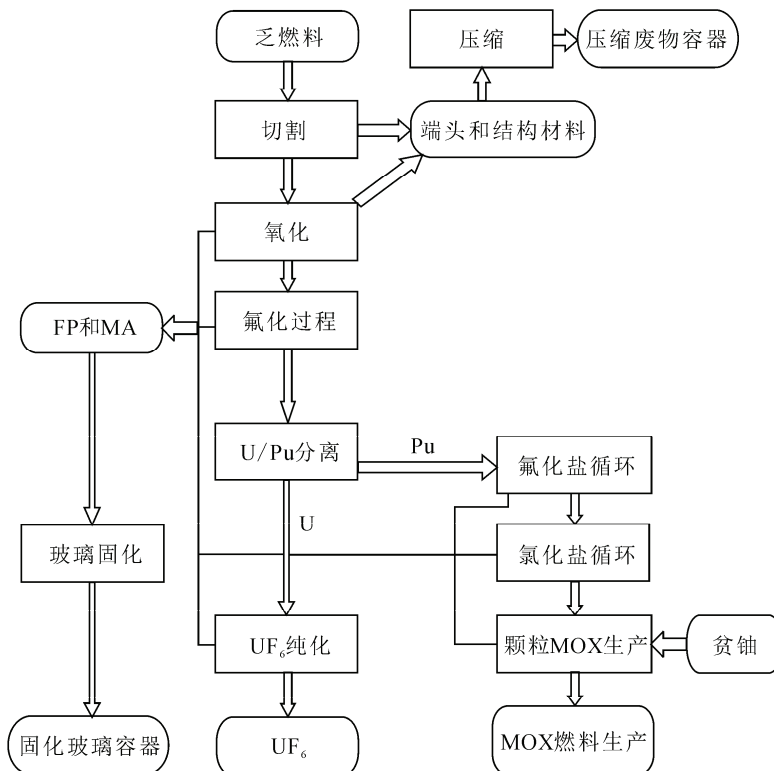


图 5 氟化挥发法处理氧化物的流程示意图

Fig. 5 Schematic diagram of fluoride volatility method for the oxide nuclear fuel reprocessing

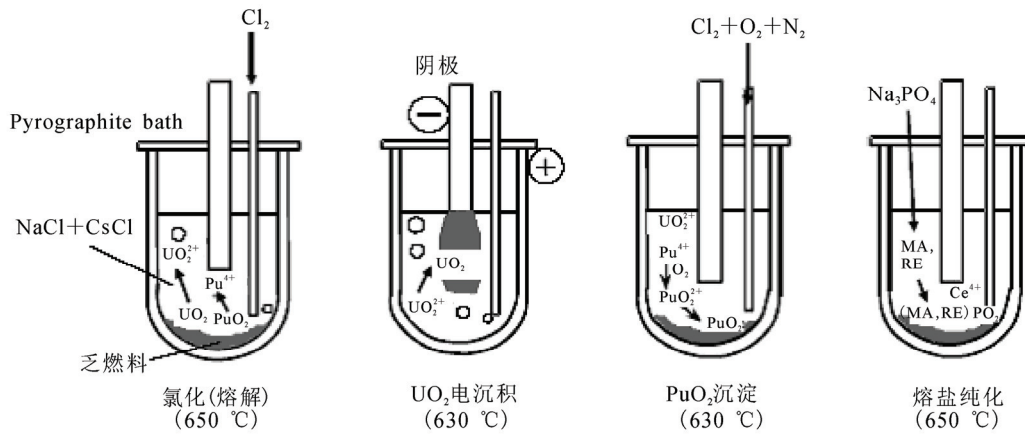


图 6 DDP 生产 UO_2 和 PuO_2 产品的流程示意图

Fig. 6 Schematic diagram of DDP process for UO_2 and PuO_2 production

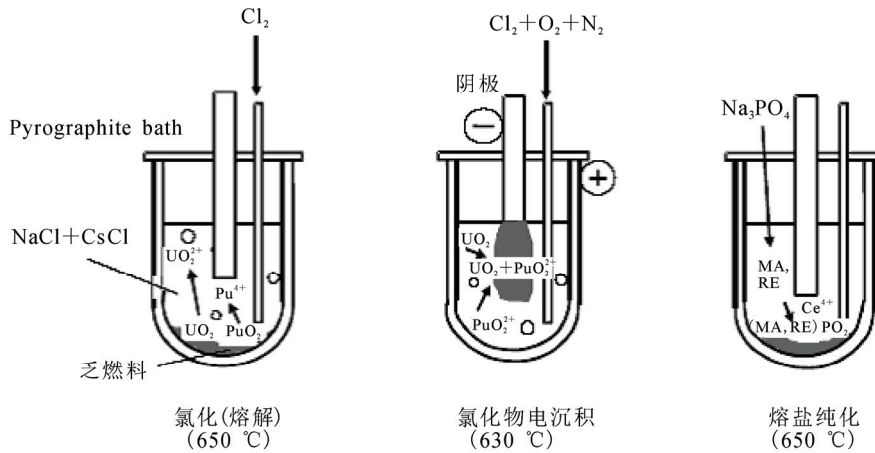


图 7 DDP 生产铀钚混合氧化物产品的流程示意图

Fig. 7 Schematic diagram of DDP process for mixed U and Pu oxides production

表 1 RIAR 进行的 DDP 实验所取得的产品去污系数

Table 1 Decontamination factors(DF) achieved in DDP process tests by RIAR

所进行的实验情况	DF (Ru-Rh)	DF (Ce-Pr)	DF (Cs)	DF (Eu)	DF (Sb)
BN-350 乏燃料 (PuO_2 , 1991)	50	220	>3 000	40	200
BOR-60 乏燃料 (PuO_2 , 1995)	33	40~50	4 000	40~50	120
BOR-60 乏燃料 (UO_2 , 2000)	>30	-	>4 000	>200	-
BOR-60 乏燃料 (MOX, 2001)	20~30	25	≈10 000	>100	-

目前该流程已经完成含有MA的U-Pu-Zr合金燃料的干法后处理实验^[23],以及小规模含MA的铀钚氧化物的干法后处理实验^[24-25]。在熔盐

电精制干法后处理的工程化方面, CRIEPI已经建立了半连续的工程规模的电解池,研究重力和离心泵对熔盐和液态Cd的输送等^[26]。

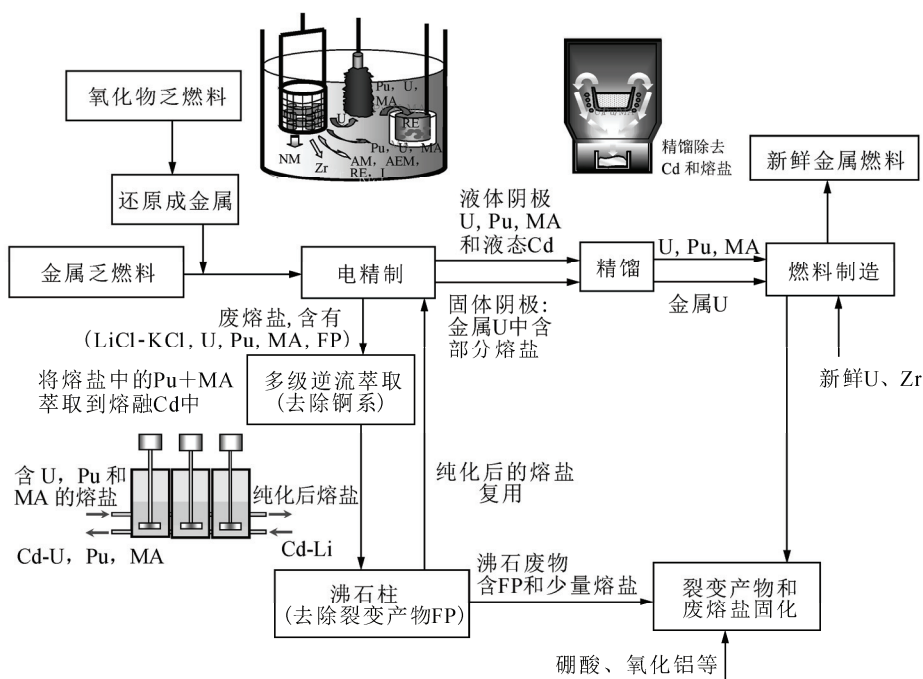


图8 日本CRIEPI研究的干法后处理流程

Fig. 8 Dry reprocessing process studied in CRIEPI, Japan

JAEA主要研究对ADS氮化物燃料靶件的干法后处理流程。处理过程选用LiCl+KCl熔盐体系^[27]，在电精制过程中，U，Pu在固体阴极或者液态Cd阴极沉积。在对液态Cd阴极沉积材料的氮化精馏（nitridation-distillation）过程中，

可直接得到（U，Pu）N，便于后续的燃料制造。JAEA也和俄罗斯RIAR联合开展了氧化物沉积法DDP流程的研究，并提出了DDP改进流程的物料计算，概念流程示于图9。根据初步实验结果对流程物料进行了计算^[23]。

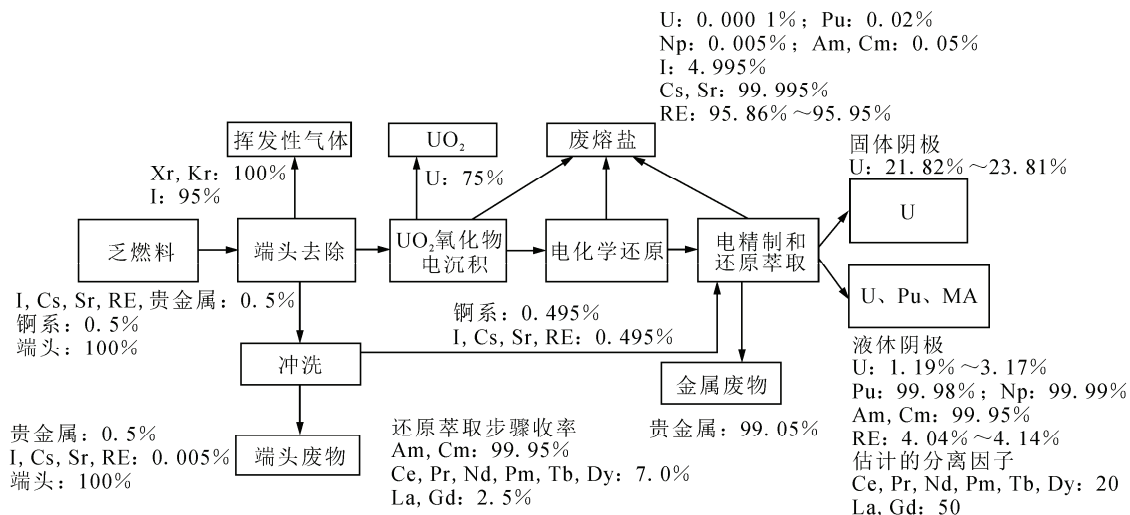


图9 JAEA提出的DDP改进流程的物料计算

Fig. 9 Mass flow calculation results of modified DDP process proposed by JAEA

Hitachi则提出了将氟化挥发法与水法后处理流程相结合的FLUOREX流程,其原理示意图示于图10^[15,28]。首先将乏燃料中的U转化为UF₆与Pu, FP等分离,同时控制Pu为不可挥发的形态。未挥发的U和Pu, FP等转型成氧化物,然

后用硝酸溶解后,采用水法Purex流程进行分离处理。FLUOREX流程中将Pu保持为不可挥发的形态,避免了原有氟化挥发法中Pu收率低的问题。氟化挥发步骤可以除去乏燃料中90%以上的U,使后续Purex流程处理量大大减少。

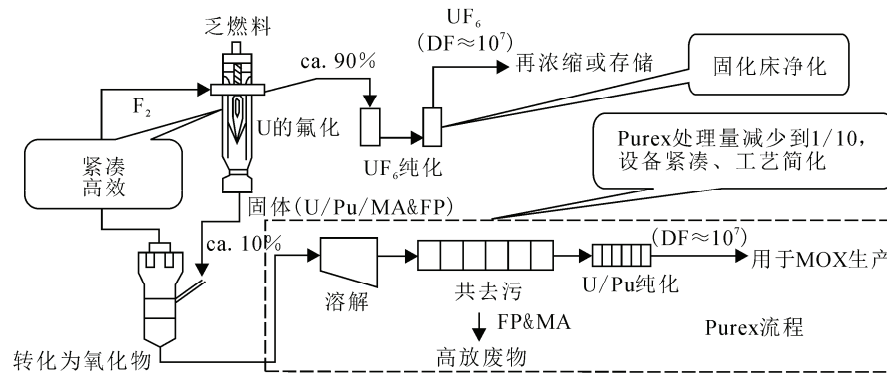


图10 FLUOREX流程处理氧化物燃料

Fig. 10 FLUOREX process for the reprocessing of oxide nuclear fuel

1.4 法国

作为掌握了商用水法后处理技术的国家,法国对干法后处理技术秉承着“积极参与”的态度。研究工作主要集中在氟化物熔盐体系中的电化学精制和还原萃取技术方面,并且开展了一些熔盐体系中锕系元素和镧系元素分离的探索研究^[29-30]。金属还原萃取技术选择LiF-AlF₃为熔盐体系,Al-Cu为液态金属进行萃取,在830℃下操作。结果表明,Np, Pu, Am, Cm等An元素在熔盐和液态Al中的分配均大于180, An元素之间的分配比相近;Ce, Sm等Ln元素的分配比均小于1。An元素的收率大于98%, An/Ln分离系数大于1000,使用金属还原萃取方法,有望实现Ln/An元素的分离。电化学精制方法的研究方面,法国比较了LiCl-KCl熔盐和LiF-CaF₂体系,认为在An/Ln分离方面LiF-CaF₂体系具有优势。

1.5 英国

2000年前后,英国BNFL建造了一个1L处理量的氯化物熔融盐电精制和配套还原萃取装置,并进行了U-Pu-MA模拟燃料的电精制实验。结果表明,固体阴极得到的U对Pu和RE的去污系数分别大于1000和500^[31];但是液态阴极中U-Pu-Am与液态Cd的分离系数低于预期;使用金属Li可以将LiCl-KCl熔盐中的U,

Pu, Am, Nd去除,有利于熔盐复用。英国在近期的主要研究目标包括:通过锕系元素电精制实验提高电精制过程中U产品纯度,特别是提高对Pu的去污系数;开展液态Cd体系中超铀元素的回收实验,从U, Pu, Am中分离除去RE(Nd, Ce等)^{[8]79}。

1.6 其他国家

韩国对干法后处理的研究主要是从核废物处理的角度出发,希望通过熔盐电精制方法从乏燃料中分离除去TRU来缩短废物储存时间,或者除去高释热的Cs, Sr来增加地质库对乏燃料的有效储存量^[32-33]。

德国在欧盟资助下,和日本CRIEPI合作开展了干法技术的研究。包括进行了含MA的U-Pu-Zr合金燃料的电化学精制方法研究,以及对不同的干法后处理流程的反扩散、核保障能力进行了评估^[34]。

印度开展了实验室规模的金属燃料熔盐电精制方法和氧化物燃料的氧化物电沉积方法的研究。在氧化物电沉积研究方面,尝试使用MgCl₂-NaCl-KCl熔盐体系代替俄罗斯DDP流程的NaCl-CsCl体系^[34]。

2 我国对干法后处理的研究

清华大学在20世纪70年代进行了金属还原萃取方面的基础研究,测定了三元氯化物熔盐

体系中U和主要裂变产物在熔盐和液态金属相的分配比,绘制了稀土元素的相图。同一时期,中国原子能科学研究院也对氟化挥发技术开展了研究。这些工作初步验证了金属熔盐萃取和氟化挥发过程的原理可行性,但是因为设备腐蚀严重、工程放大方面存在较多问题,所以研究工作未能继续。20世纪90年代初期,中国原子能科学研究院叶玉星、高源等针对一体化快堆的U-Pu-Zr合金燃料开展了电精制方法的基础研究,获得了铀、钚在液态镉中的熔解数据。

3 结束语

干法后处理技术经过了50多年的发展,在历史上曾经提出过多种后处理流程。目前比较活跃的研究方向是熔盐电精制过程、氧化物电沉积过程、氟化挥发过程。

熔盐电精制法是目前研究最广泛的干法技术,美国已经确定采用熔盐电精制方法完成EBR-II金属乏燃料的后处理,日本开展了电精制法处理快堆U-Pu-Zr金属燃料和氮化物燃料的研究。熔盐电精制方法可以直接处理金属(合金)燃料,得到沉积的金属产品。为了处理LWR氧化物燃料,需要首先将氧化物燃料还原为金属。英、法、德、印度等也有电精制方面的研究计划。熔盐氧化物电沉积技术已经在俄罗斯进行过多次真实乏燃料的处理实验,俄罗斯、日本、印度等国都有这方面的研究计划。氧化物电沉积直接处理的对象是氧化物燃料,得到的沉积产品是金属氧化物。氟化挥发法在美、俄、日本等国也有研究,其主要问题是Pu的走向控制困难、收率难以保证,所以目前研究规模较小。

从发表的文献来看,熔盐电精制和熔盐氧化物电沉积技术已经过了多次处理真实乏燃料的实验验证,取得了比较满意的结果,是目前发展较为成熟的技术。但是,总的说来,现有的干法后处理技术要实现工业化还存在以下主要障碍,距离实际应用还有很大的距离。

(1) 高温和强腐蚀性的熔盐(特别是氟化物体系)对于强放射性环境下的操作设备的要求太高。

(2) 目前各种干法流程的分离效率较低,并且多为批式操作,限制了流程的处理量。

(3) 干法大规模生产环境下,对挥发产物

的管理有困难。

(4) 产生的废物种类不同于水法,废物的管理存在困难,也缺少相关法规。

近年来,随着国际核能发展形势的变化,世界上主要的核能国家都将干法后处理技术列入了本国的核能发展计划,并加大了研究投入。干法后处理技术研究领域也提出了一些创新性的思路和流程,例如将相对低腐蚀的熔融碳酸盐体系应用于电精制过程^[35]、以及引入室温离子液体用于干法后处理的思路等^[36-38]。随着相关领域中新材料、新技术的发展,干法后处理技术在先进核燃料循环领域中具有良好的应用前景。

参考文献:

- [1] Trowbridge L D, Del Cul G D, Collins E D. Application of Advanced Head End Reprocessing Concepts to Fluoride Volatility[C/CD]. Global 2005, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Oct. 9-13, 2005.
- [2] Laidler J J. Development of IFR Pyroprocessing Technology Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options[C]. Seattle, 12-14 Sep., 1997.
- [3] Lineberry M J, Phipps R D, McFarlane H F. Status of IFR Fuel Cycle Demonstration Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options[C]. Seattle, 12-14 Sep., 1997.
- [4] Final Environmental Impact Statement for the Treatment and Management of Sodium-Bonded Spent Nuclear Fuel, DOE/EIS-0306[R]. US: DOE, 2000.
- [5] Simpson M F, Sachdev P. Development of Electrorefiner Waste Salt Disposal Process for the EBR- II Spent Fuel Treatment Project[J]. Nucl Eng Technol, 2008, 40(3): 175-182.
- [6] Benedict R W, Solbrig C, Westphal B, et al. Pyroprocessing Progress at Idaho National Laboratory[C/CD]. Proc Global 2007, Boise, Idaho, Sep. 9-13, 2007.
- [7] Goff K M, Benedict R W, Howden K L, et al. Pyrochemical Treatment of Spent Nuclear Fuel[C/CD]. Global 2005, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Oct. 9-13, 2005.
- [8] OECD/NEA, Pyrochemical Separations in Nuclear

- Applications, a Status Report[M]. 2004: 86, 49, 50, 79.
- [9] Herrmann S D, Shelly X L, Simpson M F, et al. Electrolytic Reduction of Spent Oxide Fuel — Bench-Scale Test Results[C/CD]. Global 2005, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Oct. 9-13, 2005.
- [10] Gourishankar K, Redey L, Williamson M. Electrolytic Reduction of Metal Oxides in Molten Salts, Light Metals[M]. Schneider W A, Warrendale P A. The Minerals, Metals, and Materials Society, 2002.
- [11] Kikoin I K, Demiyonovich M A, Ivanov V N, et al. Pilot Plant Reprocessing of the BOR-60 Spent Uranium Fuel by Using Fluoride Volatility Method, CONF-760576-24[R]. Vienna: IAEA, 1971.
- [12] Demiyonovich M A, Prusakov V N, Skiba O V, et al. Fluorination of Spent Uranium-Plutonium Reactor BOR-60[J]. J Nucl Mat, 1993, 204: 93-104.
- [13] Bychkov A V, Kormilitsyn M V, Savotchkin Yu P, et al. Feasibility Study of a Plant for LWR Used Fuel Reprocessing by Pyrochemical Methods[C/CD]. Proc Global 2007, Boise, Idaho, 2007, Sep. 9-13.
- [14] Yuko Kani, Akira Sasahira, Kuniyoshi Hoshino, et al. New Reprocessing System for Spent Nuclear Reactor Fuel Using Fluoride Volatility Method[J]. J Fluorine Chem, 2009, 130(1): 74-82.
- [15] Amano O, Kawamura F, Aoi M, et al. Verification of Key Technologies for FLUOREX, the New Reprocessing System for LWR Fuel Cycle, Nov. 16-19, 2003[C/CD]. Proc Global 2003, New Orleans, Louisiana.
- [16] Skiba O V, Savochkin Y P, Bychkov A V, et al. Technology of Pyroelectrochemical Reprocessing and Production of Nuclear Fuel[C]. Proc Int Conf Global 1993, Seattle, 1993.
- [17] Bychkov A, Skiba O, Vavilov S, et al. Overview of RIAR Activity on Pyroprocess Development and Application to Oxide Fuel and Plans in Coming Decade, March 14-16, 2000[C]. Proc of the Workshop on Pyrochemical Separations, Avignon, France, 2000.
- [18] Bychkov A V, Vavilov S K, Skiba O V, et al. Pyroelectrochemical Reprocessing of Spent MOX Fast Reactor Fuel: III Experiment Using the BOR-60 Fuel, Oct. 5-10, 1997[C]. Proc Int Conf Global 1997, Yokohama, Japan, 1997.
- [19] Bychkov A V, Vavilov S K, Porodnov P T, et al. Pyrochemical Reprocessing of Irradiated Mixed Oxide Fuel in Molten Salts, 21-25 Aug, 1998[C]. Proc 5th Int Symp on Molten Salt Chemistry and Technology, Molten Salt Forum, Dresden, Germany, 1998.
- [20] Kinoshita K, Koyama T, Inoue T, et al. Separation of Actinides From Rare Earth Elements by Means of Molten Salt Electrorefining With Anodic Dissolution of U-Pu-Zr Alloy Fuel[J]. J Phys Chem Solids, 2005, 66: 619.
- [21] Inoue T, Koyama T, Myochin M, et al. Pyroprocessing Technology Development in Japan, Sep. 9-13, 2007[C/CD]. Proc Global 2007, CD-ROM, Boise, Idaho, 2007.
- [22] Terai T. Present Status on Pyrochemical Reprocessing for Spent Nuclear Fuels in Japan[C]. Presentation in Tsinghua University, May 21, 2008.
- [23] Inoue T, Koch L. Development of Pyroprocessing and Its Future Direction[J]. Nucl Eng Technol, 2008, 40(3): 183-190.
- [24] Uozumi K, Iizuka M, Kato T, et al. Electrochemical Behaviors of U and Pu at Simultaneous Recoveries Into Liquid Cd Cathodes[J]. J Nucl Mater, 2004, 325: 34-43.
- [25] Koyama T, Hijikata T, Usami T, et al. Integrated Experiments to Demonstrate Pyrometallurgical Pyroprocessing of Oxide Fuels and Metal Fuels, Oct. 9-13, 2005[C]. Global 2005, CD-ROM, Tsukuba, Ibaraki, Japan, 2005.
- [26] Koyama T, Hijikata T, Yokoo T, et al. Development of Engineering Technology Basis for Industrialization of Pyroprocessing, Sep. 9-13, 2007[C/CD]. Proc Global 2007, Boise, Idaho, 2007.
- [27] Shirai O, Kato T, Iwai T, et al. Electrochemical Behaviors of PuN and (U, Pu) N in LiCl-KCl Eutectic Melts[J]. J Phys Ceram Solid, 2005, 66: 456.
- [28] Kani Y, Sasahira A, Hoshino K, et al. New Reprocessing System for Spent Nuclear Reactor Fuel Using Fluoride Volatility Method[J]. J Fluorine Chem, In Press.
- [29] Lacquement J, Bourg S, Boussier H, et al.

- Pyrochemistry Assessment at CEA-Last Experimental Results, Sep. 9-13, 2007[C/CD]. Proc Global 2007, Boise, Idaho, 2007.
- [30] Lacquement J, Bourg S, Boussier H, et al. Progress of the R&D Program on Pyrochemistry at CEA, Oct. 9-13, 2005[C/CD]. Global 2005, Tsukuba, Ibaraki, Japan, 2005.
- [31] Hebditch D, Hanson B, Lewin R, et al. Electrorefining of Uranium and Electropartitioning of U, Pu, Am, Nd and Ce, Nov. 16-20, 2003[C]. ANS/ENS, Int Meeting, Global 2003, New Orleans, USA, 2003.
- [32] Lee Kun Jai. Current Status and Future Prospects of R&D's on Pyroprocessing Technology in Korea, Proc Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Feb. 5-6, 2002[C]. Kyoto, Japan, 2002.
- [33] Jeong S M, Park S B, Hong S S, et al. Electrolytic Production of Metallic Uranium From U_3O_8 in a 20 kg Batch Scale Reactor[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2006, 268(2): 349-356.
- [34] Ahn I J, Bimova K C, Bychkov A, et al. Status of IAEA CRP on Study of Process-Losses in Separation Processes in Partitioning and Transmutation Systems in View of Minimizing Long-Term Environmental Impacts, Sep. 9-13, 2007[C]. Proc Global 2007, CD-ROM, Boise, Idaho, 2007.
- [35] Griffiths T R, Volkovich V A, Yakimov S M, et al. Reprocessing Spent Nuclear Fuel Using Molten Carbonates and Subsequent Precipitation of Rare Earth Fission Products Using Phosphate[J]. J Alloys Compd, 2006, 418: 116-121.
- [36] Asanuma N, Harada M, Yasuike Y, et al. Application of Ionic Liquids to Pyrochemical Reprocessing Methods-Electrochemical Properties of Uranyl Ion in Ionic Liquids, Oct. 9-13, 2005[C]. Global 2005, CD-ROM, Tsukuba, Ibaraki, Japan, 2005.
- [37] Bychkov A V, Kormilitsyn M V, Savochkin Y P, et al. Application of Room Temperature Ionic Liquids in Advanced Fuel Cycles RIAR Research Concept Program Users, Oct. 9-13, 2005[C]. Global 2005, CD-ROM, Tsukuba, Ibaraki, Japan, 2005.
- [38] Ikeda Y, Asanuma N, Harada M, et al. Application of Ionic Liquids to Pyrochemical Reprocessing Methods-Dissolution of Uranium Oxide Fuels by Using Cl_2^- [C]. 2005 Fall Meeting of the Atomic Energy Society of Japan, J39, Hachinohe, Japan, 2005.