

新型铋基 SiOCNF 复合膜对放射性气态碘的吸附性能

刘城^{1,2,3}, 赵倩^{2,3}, 牟志伟^{2,3}, 雷洁红¹, 段涛^{2,3}

(1. 西华师范大学 物理与天文学院, 南充 637001; 2. 西南科技大学 核废物与环境安全省部共建协同创新中心, 绵阳 621010; 3. 西南科技大学 国防科技学院, 环境友好能源材料国家重点实验室, 绵阳 621010)

摘要: 放射性碘是典型的核裂变产物之一, 吸附-分离-固化放射性碘(¹²⁹I、¹³¹I 等)对于核电运营、乏燃料后处理具有重要意义。本研究采用静电纺丝技术和热还原方法, 以一种聚甲基倍半硅氧烷树脂(MK 树脂)为原料, 成功制备出一种新型铋基复合纳米纤维膜(Bi@SiOCNF)。该材料以 SiOC 纤维为基体, 金属单质铋负载在 SiOCNF 表面与三维网络空间, 对气体碘表现出良好的捕获与固定能力。吸附实验结果表明, 该材料在 2 h 内可达到最大饱和吸附容量(515.2 mg/g)。XRD、XPS 等测试结果表明, 铋基 SiOCNF 复合纳米纤维膜通过化学吸附与物理吸附机制共同吸附气态碘。热分析表明, Bi@SiOCNF 具有良好的热稳定性。该材料在核电站、乏燃料后处理厂对放射性气态碘的捕获、固定和储存等方面具有潜在的应用前景。

关键词: 气态碘; 放射性; 静电纺丝; 铋; 吸附

中图分类号: TL941 文献标志码: A

Adsorption Properties of Novel Bismuth-based SiOCNF Composite Membrane for Radioactive Gaseous Iodine

LIU Cheng^{1,2,3}, ZHAO Qian^{2,3}, MOU Zhiwei^{2,3}, LEI Jiehong¹, DUAN Tao^{2,3}

(1. School of Physics and Astronomy, China West Normal University, Nanchong 637001, China; 2. National Co-Innovation Center for Nuclear Waste Disposal and Environmental Safety, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China; 3. State Key Laboratory of Environment-friendly Energy Materials, School of National Defense Science & Technology, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

Abstract: Radioactive iodine is one of the typical nuclear fission products. As a result, adsorption-separation-solidification of radioactive iodine (¹²⁹I, ¹³¹I, etc.) is important for nuclear power operations and spent fuel reprocessing. In this study, a novel type of bismuth-based composite nanofiber membrane (Bi@SiOCNF) was prepared by thermal reduction and electro-spinning technology using a kind of commercial poly-thylsilsesquioxane resin (MK resin) as raw material. Based on SiOC fiber, the bismuth metal was uniformly loaded on the surface of SiOCNF and in the three-dimensional network space, showing excellent capability for capturing and immobilizing gaseous iodine. According to the adsorption experiment results, the material can reach the maximum saturated adsorption capacity as high as 515.2 mg/g within 2 h. Adsorption mechanism of gaseous iodine on bismuth-based SiOCNF composite

收稿日期: 2022-01-07; 收到修改稿日期: 2022-03-06; 网络出版日期: 2022-04-07

基金项目: 国防科工局乏燃料后处理科研(KY20007); 四川省科技厅四川省青年科技创新研究团队(2021JDTD0019); 国家自然科学基金(11805157); 四川省杰出青年科技人才计划(2021JDJQ0016)
Spent Fuel Reprocessing (KY20007); Science and Technology Department of Sichuan Province (2021JDTD0019); National Natural Science Foundation of China (11805157); Sichuan Outstanding Young Scientific and Technological Talents Project (2021JDJQ0016)

作者简介: 刘城(1994-), 男, 硕士研究生. E-mail: liucheng536@163.com

LIU Cheng (1994-), male, Master candidate. E-mail: liucheng536@163.com

通信作者: 段涛, 教授. E-mail: duant@ustc.edu.cn; 雷洁红, 教授. E-mail: jiehonglei@126.com

DUAN Tao, professor. E-mail: duant@ustc.edu.cn; LEI Jiehong, professor. E-mail: jiehonglei@126.com

nanofiber membrane was through chemical adsorption and physical adsorption which was verified by XRD, XPS and other tests. Thermogravimetry analysis (TGA) demonstrated that the Bi@SiOCNF owned an excellent thermal stability. All above properties indicate that the material has potential applications in the capturing, fixation and storage of radioactive gaseous iodine in nuclear power plants and spent fuel reprocessing plants.

Key words: gaseous iodine; radioactivity; electrospinning; bismuth; adsorption

核工业生产、核能开发和核武器研制等过程会产生大量放射性废物, 如何安全有效地处理处置放射性废物, 是实现核工业和核能可持续发展的关键。核电运行和乏燃料后处理过程会产生 ^3H 、 ^{14}C 、 ^{85}Kr 、 ^{127}Xe 、 ^{129}I 、 ^{131}I 、 ^{133}Xe 等多种气态放射性同位素^[1]。其中 ^{129}I 是 ^{235}U 的裂变产物, 具有半衰期长(1.6×10^7 a)、含量高、毒性大、易挥发和流动性强等特点^[2-3]。 UO_x 乏燃料在沸腾的硝酸溶液中溶解时, 大部分 CsI 会被氧化成易挥发的放射性 I_2 (^{129}I 、 ^{131}I), 它们若释放到环境中将会导致人体代谢紊乱、智力低下以及患甲状腺癌等疾病风险, 必须对其进行净化处理^[4]。

目前已有多种方法用于去除废气中的放射性碘污染物, 常用的方法大致分为两类: 湿法洗涤和固体吸附法^[5-6]。湿法洗涤通过使用溶剂从气相中洗涤碘^[7], 但工艺复杂、腐蚀性强、设备成本高, 且会产生大量的二次废物。固体吸附法操作简单, 维护和运行成本低, 对放射性碘的吸附分离具有良好的应用前景。常用的吸附剂有沸石^[8]、活性炭^[9]、活性氧化铝^[10]、气凝胶^[11]、层状双氢氧化物(LDH)^[12]、多孔有机聚合物(POPs)^[13]和金属-有机框架(MOFs)^[14-15]等。活性炭因其多孔结构和比表面积高而具有较高的碘吸附能力, 但由于自身着火点低, 限制了在后处理厂的高温尾气处理中的应用。载银沸石(AgX、AgZ 等)是最常用的碘吸附材料, 通过形成难溶性的 AgI, 实现对碘的高吸附容量^[16], 但银存在毒性、高成本等缺陷。为了最大限度地克服上述弊端, 有必要开发环境友好且具有成本效益的碘吸附材料。

近年来, 铋基材料成为一种新兴的碘吸附剂^[17-18]。负载铋的多孔材料能快速捕获气态碘, 与其他功能材料(如载银沸石、MOFs 材料等)相比, 具有成本低、材料易合成、毒性低、吸附容量高等特点。铋基材料的固化相 BiI_3 和 $\text{Bi}_5\text{O}_7\text{I}$ 具有很好的热力学稳定性, 是一种新型高效的碘固体。

静电纺丝技术可以制备出孔隙率高、比表面积大的纳米级纤维, 其工艺操作简单, 材料制备成本低, 此前已有纳米纤维材料对放射性核素吸附分离

的研究报道, 但铋基静电纺丝材料的相关研究较少^[19-20]。 SiOC 纤维原料价格低廉, 并具有良好的热稳定性和较强的疏水性能, 对放射性碘的吸附分离以及固化处理方面具有潜在的应用前景。本工作采用静电纺丝技术制备了铋基 SiOC 纤维材料 (Bi@SiOCNF), 并研究了该材料对碘蒸气的吸附性能和吸附机理。

1 实验方法

1.1 试剂

聚甲基倍半硅氧烷(MK 树脂)购自德国瓦克化学有限公司; 五水合硝酸铋($\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, AR)、四氢呋喃(THF, AR)、硝酸(HNO_3 , AR)、碘(I_2 , AR)均购自阿拉丁试剂有限公司。

1.2 材料制备

配置纺丝溶液: Bi@SiOCNF 的制备流程如图 1 所示, 首先将 6 g MK 树脂加入到 4 g 四氢呋喃中搅拌 1 h 至完全溶解, 得到质量分数为 60% 的 MK 溶液, 然后在溶液中加入 30 μL HNO_3 搅拌 10 min, 最后加入不同质量(0.5、0.8、1 g)的 $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, 超声 30 min 后继续搅拌 3 h, 得到三种不同负载量的纺丝溶液。

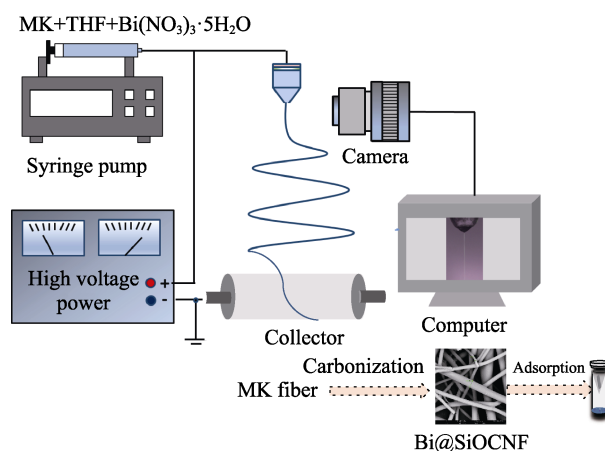


图 1 Bi@SiOCNF 材料静电纺丝过程示意图

Fig. 1 Electrospinning process of Bi@SiOCNF material

静电纺丝过程: 将上述得到的纺丝溶液吸入 5 mL 塑料注射器中, 然后放入静电纺丝设备进行纺丝成型(如图 1)(纺丝参数为: 针头: 25 号不锈钢针头; 纺丝电压: 12 kV; 电极距: 15 cm; 注射泵推进速率: 0.08 mL/min; 环境温度: 18 °C; 环境湿度: 40%), 得到 MK 纤维膜。

热还原过程: 在氩氢混合气氛中将上述静电纺丝得到的 3 种纤维膜以 3 °C/min 升温至 800 °C, 煅烧 2 h, 得到 Bi@SiOCNF 复合纤维膜, 按不同负载量分别命名为: Bi@SiOCNF-5、Bi@SiOCNF-8、Bi@SiOCNF-10。

1.3 表征

利用 X 射线衍射仪(XRD, D8 ADVANCE, 德国 Bruker 公司)对吸附碘前后的 Bi@SiOCNF 和 I-Bi@SiOCNF 样品进行结构表征, 分析样品的物相组成; 采用 X 射线光电子能谱(XPS, K-Alpha, 美国赛默飞世尔公司)分析吸附前后样品表面的元素组成和价态变化。利用扫描电子显微镜(SEM, Prox, 荷兰 Phenom 公司)和超高分辨场发射透射电子显微镜(TEM, JEM-2100F, 日本 JEOL 公司)分析吸附前后材料的微观形貌。利用能谱分析仪(EDS, Prox, 荷兰 Phenom 公司)对元素分布图谱进行分析。利用同步热重分析仪(TGA, STA 8000, 美国 PerkinElmer 公司)检测材料在升温过程中的热稳定性(气氛: 氩气, 升温速率: 10 °C/min, 温度范围: 室温~800 °C)。

1.4 吸附实验

由于放射性碘具有毒性和放射性, 本实验均选用非放射性的碘单质(I₂)进行模拟吸附实验。将 0.3 g 碘和 0.03 g 的 Bi@SiOCNF 吸附剂分别放置在 30 mL 玻璃瓶的底部和锥形滤纸中并密封(如图 1 所示), 在静态条件(75 °C 和环境压力)下进行吸附实验。经过不同的时间间隔进行称重测量。根据公式(1)计算材料对碘的吸附容量。

$$q_e = \frac{m_1 - m_0}{m_0} \times 1000 \quad (1)$$

其中, q_e 表示总吸附容量, 单位为 mg/g; m_0 和 m_1 分别表示吸附剂的初始质量和吸附后的质量, 单位为 mg。

同时, 为了确定实验结果中吸附剂质量的增加是由吸附作用而不是与空气反应形成氧化物引起的, 进行了空白对照组实验。类似地, 将 Bi@SiOCNF 吸附剂放置在不含碘的装置中, 其他条件相同, 测定最终质量。另外热重分析表明, Bi@SiOCNF 在 75 °C 下几乎不与空气反应。

为了研究材料的碘吸附性能与气态碘浓度之间的关系, 通过添加不同质量的碘来控制装置中碘蒸气的浓度(0~300 mg/L)。为确保达到饱和和吸附量, 吸附实验的吸附时间均为 12 h。

为了验证该材料对碘气体吸附的循环性, 进行了循环吸附测试实验。将上述吸附后的吸附剂放入 150 °C 的烘箱中进行碘气体脱附, 脱附 3 h 进行称重测量, 再用公式(2)计算出物理吸附容量, 用公式(3)算出化学吸附容量, 将上述步骤重复 3 次, 取平均值得到不同负载量材料的物理及化学吸附容量。

$$q_p = \frac{m_1 - m_2}{m_0} \times 1000 \quad (2)$$

$$q_c = q_e - q_p \quad (3)$$

其中, q_p 表示物理吸附容量, q_c 表示化学吸附容量, 单位为 mg/g; m_0 和 m_1 分别表示吸附剂的初始质量和吸附后的质量, m_2 表示脱吸附后吸附剂的质量, 单位为 mg。

2 结果与讨论

2.1 材料表征

图 2 为通过静电纺丝和热还原得到的 MK 纤维膜和 Bi@SiOCNF 的光学图片, 从图 2(a,b)可以看出通过静电纺丝得到的 MK 纤维膜, 柔韧性较好, 从图 2(c)可以看出通过热还原煅烧得到 Bi@SiOCNF 复合纤维膜柔韧性降低, 但仍具有自支撑完整的膜结构, 表

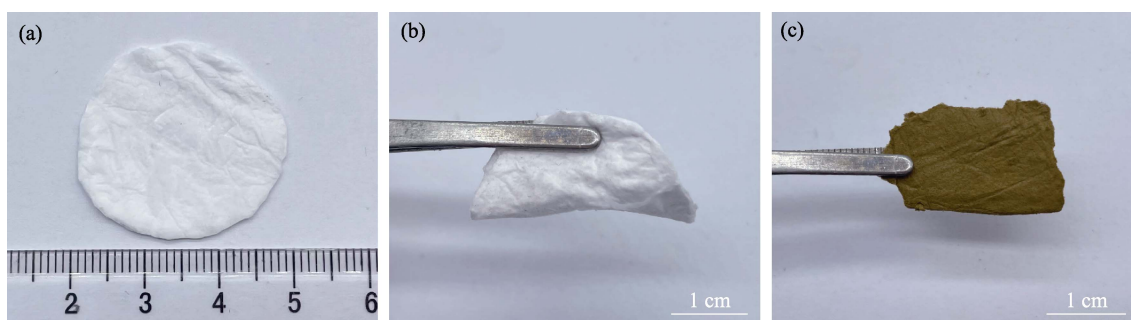


图 2 (a,b)MK 纤维膜和(c)Bi@SiOCNF 的光学照片

Fig. 2 Photos of (a,b) MK fiber membrane and (c) Bi@SiOCNF

明该材料在气态碘的捕获中具有实际应用的潜力。

图3为Bi@SiOCNF材料的XRD图谱, $2\theta=27.1^\circ$ 、 38.0° 、 39.6° 、 44.6° 、 46.0° 、 48.7° 、 55.6° 、 59.3° 、 62.1° 和 64.5° 处的特征峰分别对应金属Bi的(012)、(104)、(110)、(015)、(113)、(202)、(024)、(107)、(116)和(122)晶面(ICDD PDF 85-1330), 证明Bi@SiOCNF材料中存在铋单质。

不同铋负载量的Bi@SiOCNF的SEM形貌如图4(a~c)所示。通过静电纺丝工艺制备的复合纤维的

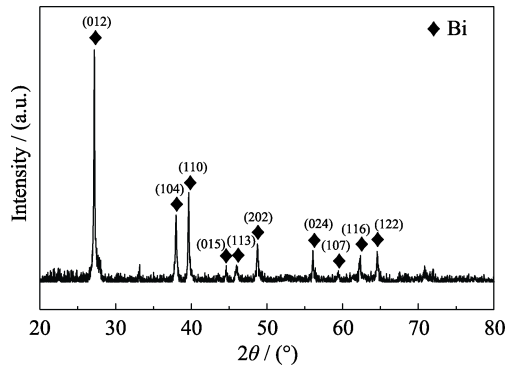


图3 Bi@SiOCNF的XRD图谱
Fig. 3 XRD pattern of Bi@SiOCNF

直径为800 nm~2 μm , 铋单质颗粒分布在纤维表面, EDS分析表明存在铋元素, 含量为3.62%(图4(d, e))。TEM照片(图4(f~g))表明, Bi@SiOCNF的单根纳米纤维直径约为800 nm左右, 与SEM结果一致。图4(h)给出了纳米纤维的高分辨TEM(HRTEM)照片, 其中0.328 nm的晶面间距对应Bi的(012)晶面, 证明纤维内部的黑色小点为金属铋颗粒。铋颗粒在SiOC纳米纤维上的负载可以提供大量的活性位点, 进而提高碘的吸附性能。

2.2 碘吸附性能研究

为了评估Bi@SiOCNF材料对碘蒸气的吸附能力, 测试了材料的吸附动力学曲线和等温吸附曲线。如图5(a)所示, Bi@SiOCNF对碘蒸气的吸附速率较快, 约120 min即可达到饱和吸附容量。不同负载量的Bi@SiOCNF-5, Bi@SiOCNF-8, Bi@SiOCNF-10的最大吸附量分别为176、448、515.2 mg/g。在空白对照组中, Bi@SiOCNF-10在无碘蒸气环境中10 h仍保持稳定, 表明它与空气未发生反应。图5(b)为Bi@SiOCNF-5, Bi@SiOCNF-8, Bi@SiOCNF-10对不同浓度碘的吸附容量。结果表明, Bi@SiOCNF-10吸附性能最佳, 且在SiOC含量一定的情况下, 铋负

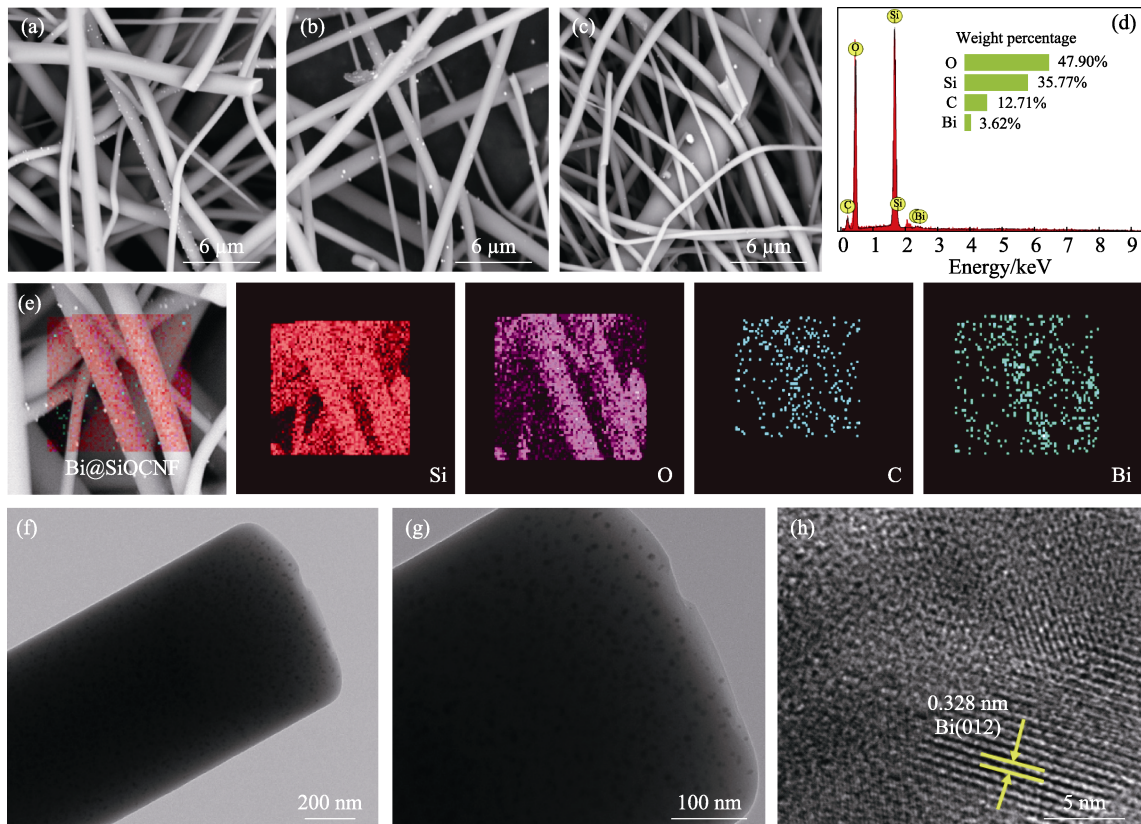


图4 (a~c)Bi@SiOCNF-5, Bi@SiOCNF-8, Bi@SiOCNF-10的SEM照片, (d, e)Bi@SiOCNF-8的EDS能谱和元素分布图, (f~h)Bi@SiOCNF-8的TEM照片
Fig. 4 (a-c) SEM images of Bi@SiOCNF-5, Bi@SiOCNF-8, Bi@SiOCNF-10, (d, e) EDS spectrum and mappings of Bi@SiOCNF-8, and (f-h) TEM images of Bi@SiOCNF-8

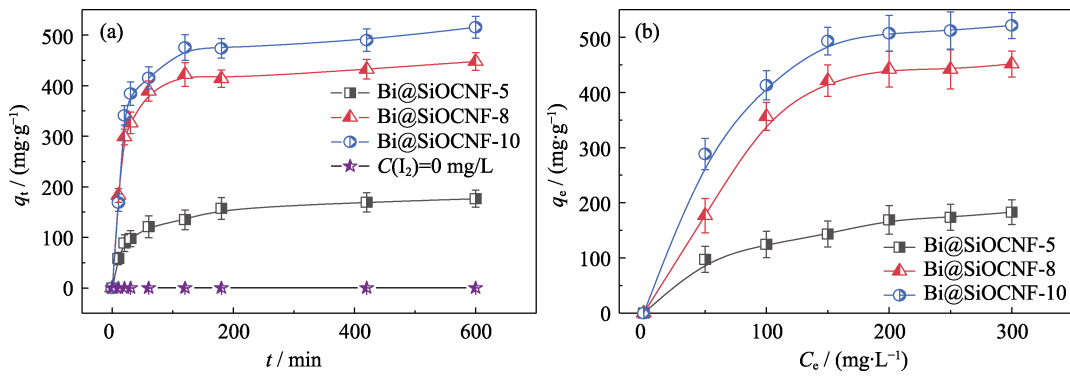


图 5 Bi@SiOCNF 吸附碘蒸气的特性曲线

Fig. 5 Bi@SiOCNF adsorption characteristic curves of iodine vapor
(a) Adsorption kinetic curves; (b) Adsorption isotherm curves

载量越大, 吸附容量越高, 说明该材料对碘气体的吸附性能关键是单质金属铋的作用, Bi@SiOCNF-10 的最大吸附容量可达 515.2 mg/g, 高于大多数无机材料(表 1), 如 Ag 基沸石、Ag-ETS-2、Ag@Mon-POF 等, 吸附容量均低于 300 mg/g; 但小于多孔有机聚合物。相较于其他粉体铋基材料(如 Bi₆O₇、Bi-BP₂-O 等)^[21-22], Bi@SiOCNF 的吸附能力可与之相媲美, 且宏观的膜材料特性更易于回收利用和固化处理, 从而更具有竞争优势。

图 6 为不同负载量 Bi@SiOCNF 的物理吸附和化学吸附容量柱状图, Bi@SiOCNF-5, Bi@SiOCNF-8 中的铋含量较少, 吸附形成的 BiI₃ 的含量较少, 所以主要以物理吸附为主, 物理吸附容量比化学吸附容量高; 而随着铋含量的增加, 化学吸附所占比例增加, Bi@SiOCNF-10 主要以化学吸附为主。通过碘气体循环实验发现, 物理吸附部分可以通过 150 °C 脱吸附后再进行物理吸附; 而化学吸附部分由于形成了 BiI₃, 不能再循环吸附。但该材料通过负载金属单质铋可用于对碘气体的固化作用。

表 1 不同吸附材料对碘的吸附性能

Table 1 Adsorption performance of different adsorbents for iodine

Adsorbent	T/°C	Adsorption Capacity/(mg·g ⁻¹)	Ref.
HT	40	1400	[23]
PU1	70	1300	[24]
Cu-BTC@PES	75	639	[25]
Al-O-F	90	49	[26]
Ag ⁰ Z	100-200	156	[27]
Ag-ETS-2	80	255	[28]
Ag@Mon-POF	70	250	[29]
Bi ₆ O ₇	25	285	[21]
Ag-loaded aerogel	150	410	[30]
Bi-BP ₂ -O	200	468	[22]
Bi@SiOCNF-10	75	515.2	This work

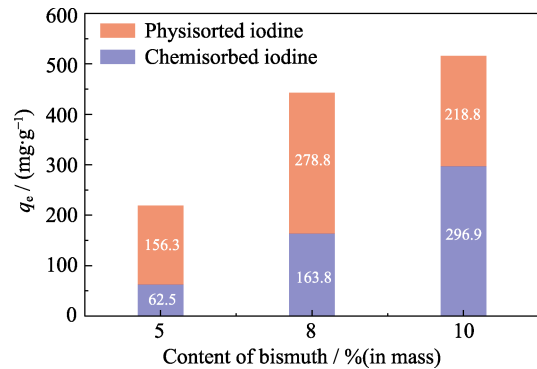


图 6 不同负载量 Bi@SiOCNF 的物理吸附和化学吸附容量柱状图

Fig. 6 Histograms of physisorption and chemisorption capacities of Bi@SiOCNF with different loadings

2.3 机理分析

为了探究 Bi@SiOCNF 的吸附机理, 通过不同手段对吸附后的 I-Bi@SiOCNF 进行了表征分析。如图 7(a)所示, 吸附碘蒸气后的 I-Bi@SiOCNF 材料在 2θ=27.0°、35.2°、41.5°、46.2°、50.3°、55.6°和 63.8°处分别对应于 BiI₃ 的(113)、(116)、(300)、(119)、(223)、(226)、(229)晶面(ICCD PDF 48-1795)。根据文献报道和 XRD 分析结果, Bi 与 I₂ 反应形成稳定的 BiI₃, 反应如式(2)所示^[18]:



为了进一步验证, 对 I-Bi@SiOCNF 进行形貌分析。如图 8(a~e)所示, 吸附后的 I-Bi@SiOCNF 表面分布 Bi 和 I 元素, 与 EDS 结果一致。TEM 照片(图 8(f~h))显示, 晶格间距为 0.33 nm, 对应于 BiI₃ 的(113)晶面, 表明白色颗粒是 BiI₃。通过 XPS 光谱分析得到碘吸附前后的价态变化, 如图 7(b)所示, Bi@SiOCNF 吸附碘蒸气后, 在 630 eV 结合能附近出现了 I3d 光谱, 说明存在碘元素。在图 7(c)的 Bi4f 的光谱中, 159.47 和 164.66 eV 分别归属于 Bi@SiOCNF 中 Bi4f7/2 和 Bi4f5/2 处的金属 Bi 峰^[31]。而在吸附碘气体后, I-Bi@SiOCNF 中 Bi 的峰值位置 Bi4f7/2

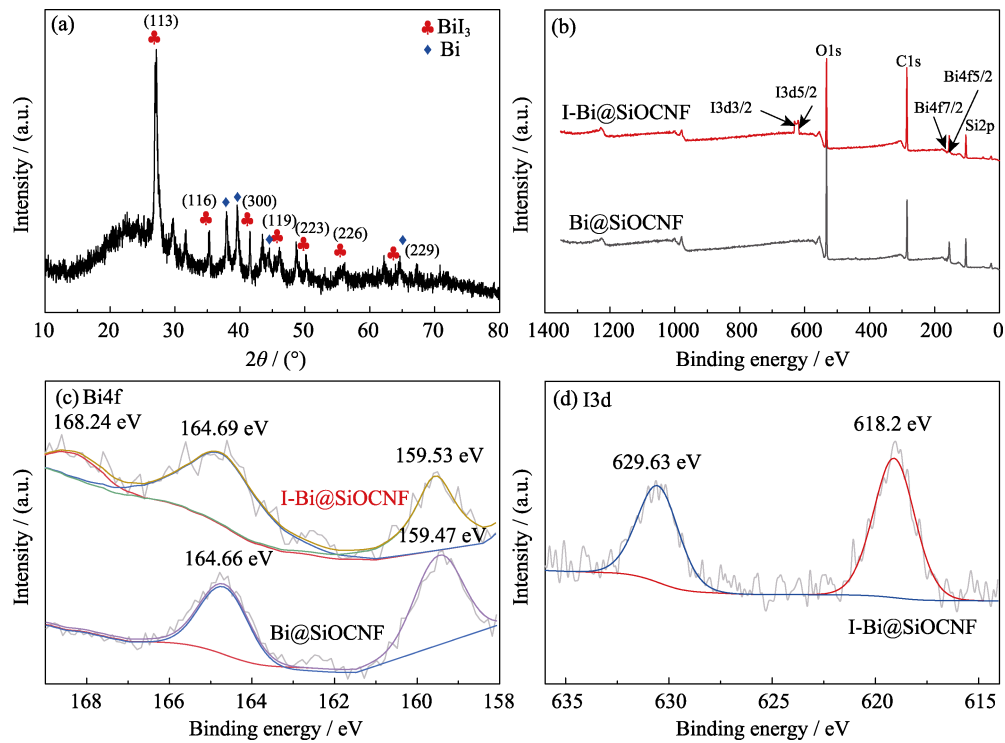


图 7 I-Bi@SiOCNF 的(a) XRD 图谱, I-Bi@SiOCNF 和 Bi@SiOCNF 的(b) XPS 全谱及其 (c) Bi4f 图谱, (d) I-Bi@SiOCNF 的 I3d XPS 图谱

Fig. 7 (a) XRD pattern of I-Bi@SiOCNF, (b) XPS survey spectra, corresponding (c) Bi4f spectra of I-Bi@SiOCNF and Bi@SiOCNF and (d) I3d XPS spectra of I-Bi@SiOCNF

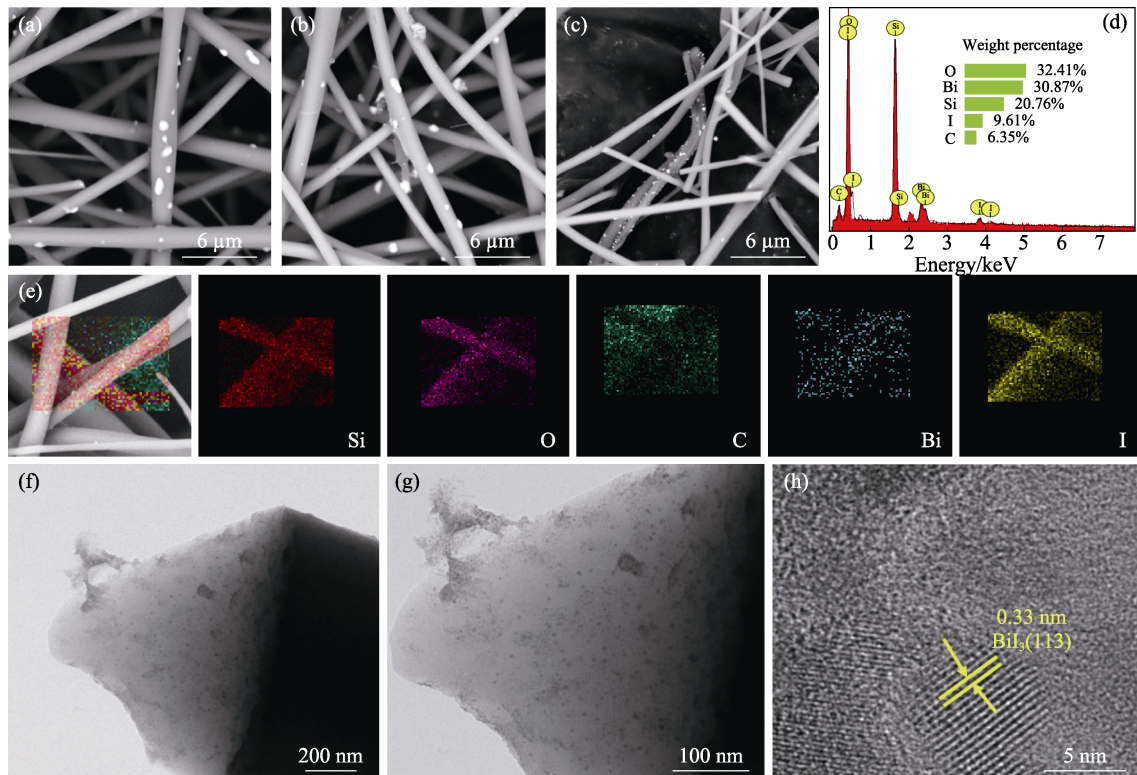


图 8 (a~c)I-Bi@SiOCNF-5, I-Bi@SiOCNF-8, I-Bi@SiOCNF-10 的 SEM 照片, (d, e)I-Bi@SiOCNF-8 的 EDS 能谱和元素分布图, (f~h)I-Bi@SiOCNF-8 的 TEM 照片

Fig. 8 (a~c) SEM images of I-Bi@SiOCNF-5, I-Bi@SiOCNF-8, I-Bi@SiOCNF-10, (d, e) EDS spectrum and mappings of I-Bi@SiOCNF-8, and (f~h) TEM images of I-Bi@SiOCNF-8

和 $\text{Bi}4f_{5/2}$ 分别变化为 164.69 和 168.24 eV。Bi 元素的氧化态从 0 变化到 +3, 但在 159.53 eV 处仍有铋单质的峰, 说明 Bi@SiOCNF 中的金属铋单质还未完全与碘气体反应。从图 7(a) 的 XRD 图谱也可看出吸附后的 I-Bi@SiOCNF 中还存在金属铋的峰, 这可能是因为少量铋被包覆在纤维内部而未与碘反应。在图 7(d) 的 I-Bi@SiOCNF 的 $\text{I}3d$ 光谱中, 618.2 和 629.63 eV 处的峰属于 Γ 的特征峰^[32]。结合上述结果可以得出, Bi@SiOCNF 不仅能以 BiI_3 形式化学吸附碘气体, 还能以 SiOCNF 孔结构物理吸附 I_2 分子, 这与吸附实验结果一致。

为了探究 Bi@SiOCNF 的热稳定性, 对碘吸附前后样品进行了 TGA 表征, 如图 9 所示, 当温度升高至 800 °C 时, Bi@SiOCNF-10 的质量略有下降, 但仅下降了 1.88%, 而 I-Bi@SiOCNF-10 的质量损失了 47.12%。通过对比分析, I-Bi@SiOCNF-10 的重量损失可归结为以下三个部分: 1.88% 是由于吸附空气中的水或吸附剂本身的少量分解; 32.98% 为物理吸附的碘分子挥发, 曲线从 75 °C 左右开始下降; 其余 12.26% 是由于化学吸附产生的 BiI_3 在 127~800 °C 的分解。室温升高到 800 °C 的过程中, I-Bi@SiOCNF-10 总共失重 47.12%, 与前面吸附实验获得的碘吸附性能 515.2 mg/g 大致吻合。

3 结论

本研究通过静电纺丝工艺和热还原方法将前驱体 $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3/\text{MK}$ 中的铋离子还原为分散良好的金属铋单质, 成功制备出一种新型铋基复合材料 (Bi@SiOCNF)。该材料以硅氧碳纤维膜为骨架, 金属铋单质负载在 SiOC 纤维的表面和内部, 提供了大量与碘蒸气的反应位点, 同时该结构避免了金属铋的团聚, 从而大大提高了碘气体吸附性能。在 75 °C, Bi@SiOCNF-10 对碘气体的吸附容量可达

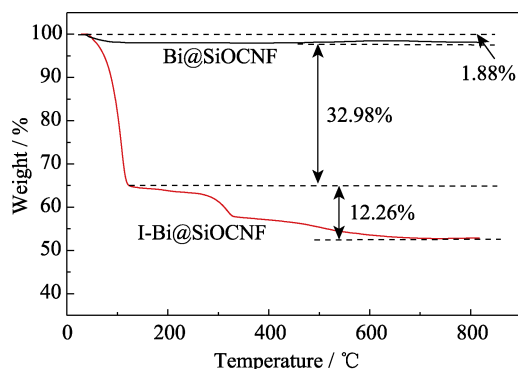


图 9 Bi@SiOCNF-10 和 I-Bi@SiOCNF-10 的热重曲线
Fig. 9 TGA curves of Bi@SiOCNF-10 and I-Bi@SiOCNF-10

515.2 mg/g, 约为商业银基沸石 (Ag^0Z) 的两倍左右。研究表明, 高吸附容量主要是由于 Bi 和 I_2 的化学反应和纤维膜的物理吸附。更重要的是, 与大多数粉体吸附剂相比, 宏观形态的纤维膜材料更适用于处理和固定放射性气态碘。因此, Bi@SiOCNF 是一种非常有潜力的放射性气态碘吸附剂。

参考文献:

- [1] SOELBERG N R, GARN T G, GREENHALGH M R, *et al.* Radioactive iodine and krypton control for nuclear fuel reprocessing facilities. *Science and Technology of Nuclear Installations*, 2013, **2013**: 702496.
- [2] SABRI M A, AL-SAYAH M H, SEN S, *et al.* Fluorescent aminal linked porous organic polymer for reversible iodine capture and sensing. *Scientific Reports*, 2020, **10(1)**: 15943.
- [3] UYBA V, SAMOYLOV A, SHINKAREV S. Comparative analysis of the countermeasures taken to mitigate exposure of the public to radioiodine following the Chernobyl and Fukushima accidents: lessons from both accidents. *Journal of Radiation Research*, 2018, **59(suppl_2)**: ii40–ii47.
- [4] SUNAVALA-DOSSABHOY G. Radioactive iodine: an unappreciated threat to salivary gland function. *Oral Diseases*, 2018, **24(1/2)**: 198–201.
- [5] FENG Y, WEI G, LIU Y, *et al.* Crystallization behavior of boron in low-temperature immobilization of iodine waste. *Journal of Solid State Chemistry*, 2022, **305**: 122698.
- [6] RILEY B J, VIENNA J D, STRACHAN D M, *et al.* Materials and processes for the effective capture and immobilization of radioiodine: a review. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, **470**: 307–326.
- [7] BEGHI I, LIND T, PRASSER H M. Experimental studies on retention of iodine in a wet scrubber. *Nuclear Engineering and Design*, 2018, **326**: 234–243.
- [8] HUVE J, RYZHIKOV A, NOUALI H, *et al.* Porous sorbents for the capture of radioactive iodine compounds: a review. *RSC Advances*, 2018, **8(51)**: 29248–29273.
- [9] ZHOU J, HAO S, GAO L, *et al.* Study on adsorption performance of coal based activated carbon to radioactive iodine and stable iodine. *Annals of Nuclear Energy*, 2014, **72**: 237–241.
- [10] ALSALBOKH M, FAKERI N, LAWSON S, *et al.* Adsorption of iodine from aqueous solutions by aminosilane-grafted mesoporous alumina. *Chemical Engineering Journal*, 2021, **415**: 128968.
- [11] CHONG S, RILEY B J, KUANG W, *et al.* Iodine capture with mechanically robust heat-treated Ag-Al-Si-O xerogel sorbents. *ACS Omega*, 2021, **6(17)**: 11628–11638.
- [12] LIN G, ZHU L, DUAN T, *et al.* Efficient capture of iodine by a polysulfide-inserted inorganic NiTi-layered double hydroxides. *Chemical Engineering Journal*, 2019, **378**: 122181.
- [13] PAN X, DING C, ZHANG Z, *et al.* Functional porous organic polymer with high S and N for reversible iodine capture. *Micro-porous and Mesoporous Materials*, 2020, **300**: 110161.
- [14] ASSAAD T, ASSFOUR B. Metal organic framework MIL-101 for radioiodine capture and storage. *Journal of Nuclear Materials*, 2017, **493**: 6–11.
- [15] TANG Y, HUANG H, LI J, *et al.* IL-induced formation of dynamic complex iodide anions in IL@ MOF composites for efficient iodine capture. *Journal of Materials Chemistry A*, 2019, **7(31)**: 18324–18329.

- [16] AKIYAMAA D, ISHIIA T, MASAKIA Y, *et al.* Sorption and desorption of radioactive organic iodine by silver doped zeolite and zeolite X. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 2021, **21**: 1–6.
- [17] REDA A T, ZHANG D, XU X, *et al.* Bismuth-impregnated aluminum/copper oxide-pillared montmorillonite for efficient vapor iodine sorption. *Separation and Purification Technology*, 2021, **270**: 118848.
- [18] REDA A T, PAN M, ZHANG D, *et al.* Bismuth-based materials for iodine capture and storage: a review. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2021: 105279.
- [19] GU G E, BAE J, PARK H S, *et al.* Development of the functionalized nanocomposite materials for adsorption/decontamination of radioactive pollutants. *Materials*, 2021, **14(11)**: 2896.
- [20] PHILIPPOU K, CHRISTOU C N, SOCOLIUC V, *et al.* Superparamagnetic polyvinylpyrrolidone/chitosan/Fe₃O₄ electrospun nanofibers as effective U(VI) adsorbents. *Journal of Applied Polymer Science*, 2021, **138(15)**: 50212.
- [21] LIU S, KANG S, WANG H, *et al.* Nanosheets-built flowerlike micro/nanostructured Bi₂O_{2.33} and its highly efficient iodine removal performances. *Chemical Engineering Journal*, 2016, **289**: 219–230.
- [22] YANG J H, SHIN J M, PARK J J, *et al.* Novel synthesis of bismuth-based adsorbents for the removal of ¹²⁹I in off-gas. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, **457**: 1–8.
- [23] DAS G, SKORJANC T, SHARMA S K, *et al.* Viologen-based conjugated covalent organic networks via Zincke reaction. *Journal of the American Chemical Society*, 2017, **139(28)**: 9558–9565.
- [24] WANG Y, SOTZING G A, WEISS R. Sorption of iodine by polyurethane and melamine-formaldehyde foams using iodine sublimation and iodine solutions. *Polymer*, 2006, **47(8)**: 2728–2740.
- [25] ZHAO Q, ZHU L, LIN G, *et al.* Controllable synthesis of porous Cu-BTC@ polymer composite beads for iodine capture. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, **11(45)**: 42635–42645.
- [26] MILLER A, WANG Y. AI-O-F materials as novel adsorbents for gaseous radioiodine capture. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2014, **133**: 35–39.
- [27] NAN Y, TAVLARIDES L L, DEPAOLI D W. Adsorption of iodine on hydrogen-reduced silver-exchanged mordenite: experiments and modeling. *AIChE Journal*, 2017, **63(3)**: 1024–1035.
- [28] WU L, SAWADA J A, KUZNICKI D B, *et al.* Iodine adsorption on silver-exchanged titania-derived adsorbents. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2014, **302(1)**: 527–532.
- [29] KATSOLIDIS A P, HE J, KANATZIDIS M G. Functional monolithic polymeric organic framework aerogel as reducing and hosting media for Ag nanoparticles and application in capturing of iodine vapors. *Chemistry of Materials*, 2012, **24(10)**: 1937–1943.
- [30] CHONG S, RILEY B J, PETERSON J A, *et al.* Gaseous iodine sorbents: a comparison between Ag-loaded aerogel and xerogel scaffolds. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, **12(23)**: 26127–26136.
- [31] ZOU H, YI F, SONG M, *et al.* Novel synthesis of Bi-Bi₂O₃-TiO₂-C composite for capturing iodine-129 in off-gas. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, **365**: 81–87.
- [32] LI G, HUANG Y, LIN J, *et al.* Effective capture and reversible storage of iodine using foam-like adsorbents consisting of porous boron nitride microfibers. *Chemical Engineering Journal*, 2020, **382**: 122833.