

大气颗粒物中 ^{129}I 的加速器质谱测量

谢林波^{1,2}, 李奇³, 王世联³, 何明², 董克君², 拓飞⁴,
武绍勇², 刘广山¹, 姜山^{2,*}

(1. 厦门大学环境与生态学院, 福建 厦门 361102; 2. 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413;
3. 禁核试北京国家数据中心和北京放射性核素实验室, 北京 100085;
4. 中国疾病预防控制中心辐射防护与核安全医学所, 北京 102206)

摘要:建立了通过制备大气颗粒物中碘样品并采用加速器质谱(AMS)测量颗粒物样品中 ^{129}I 浓度的方法。采用此方法对日本福岛核电站泄漏事故期间北京大气颗粒物样品进行了 ^{129}I 测量,以此探讨 ^{129}I 在环境监测中的作用。北京地区大气颗粒物 ^{129}I 的测量结果显示,2011年3月26日的大气颗粒物中 ^{129}I 浓度已高于正常本底值的数倍,据推测这部分 ^{129}I 来源于福岛核电站泄漏事故。 ^{129}I 是重要的核裂变产物,其来源具有特殊性,较长的半衰期使其在核反应堆中长期积累,核泄漏早期存在区域环境高浓度 ^{129}I 现象,所以 ^{129}I -AMS测量在辐射安全及应急监测方面具有潜在优势。

关键词:加速器质谱;大气颗粒物; ^{129}I ;福岛核电站事故;环境监测

中图分类号:TL817.4 文献标志码:A 文章编号:1000-6931(2014)09-1675-06

doi:10.7538/yzk.2014.48.09.1675

Measurement of ^{129}I Concentration in Air Particle Samples by AMS

XIE Lin-bo^{1,2}, LI Qi³, WANG Shi-lian³, HE Ming², DONG Ke-jun², TUO Fei⁴,
WU Shao-yong², LIU Guang-shan¹, JIANG Shan^{2,*}

(1. College of the Environment and Ecology, Xiamen University, Xiamen 361102, China;
2. China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275-50, Beijing 102413, China;
3. CTBT Beijing National Data Centre and Radionuclide Laboratory, Beijing 100085, China;
4. National Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety,
Chinese Center for Disease Control and Prevention, Beijing 102206, China)

Abstract: A method to measure the ^{129}I concentration in air particle samples using accelerator mass spectrometry (AMS) was developed, together with the preparation of AgI target of air particle. At the same time, for the radiation monitoring use, the measurement of ^{129}I during the accident of Fukushima Nuclear Power Plant (FNPP) with the AMS facility at the China Institute of Atomic Energy (CIAE) was discussed. The results show that early on March 26, 2011, ^{129}I derived from FNPP accident had arrived and the ^{129}I concentration in air particle increased greatly relative to the background

收稿日期:2013-03-01;修回日期:2013-05-28

基金项目:国家自然科学基金资助项目(11075221)

作者简介:谢林波(1988—),男,四川南充人,硕士研究生,海洋化学专业

*通信作者:姜山, E-mail: jiangs@ciae.ac.cn

value. Due to the long half life of ^{129}I and its accumulation in the NPP, the event of regional high ^{129}I concentration occurs in the early stage of the nuclear leakage, consequently, and the ^{129}I -AMS measurement has great potential to be applied for radiation safety and emergency monitoring.

Key words: AMS; air particle; ^{129}I ; accident of Fukushima Nuclear Power Plant; environmental monitoring

^{129}I (半衰期 1.57×10^7 a)是 β 放射性核素,发出的 β 射线最大能量为152 keV。天然 ^{129}I 主要是宇宙射线和大气氙的散裂反应和地壳中的 ^{238}U 自发裂变产生的。人工 ^{129}I 主要是中子诱发 ^{235}U 裂变产生的,裂变产额为0.8%。反应堆运行、事故泄漏和乏燃料后处理均会释放 ^{129}I 到环境中,并在环境中累积, ^{129}I 便成为对人类造成潜在危害最大的核素之一^[1-2]。故 ^{129}I 在环境中的水平和行为是国际上十分重视的研究课题,各国科学家对此进行了许多研究,美国、欧共体国家及日本等均已将 ^{129}I 纳入常规监测^[3]。

2011年3月11日由地震引发的日本福岛第一核电厂的核泄漏事故导致核电厂冷却系统无法正常运转,反应堆内正常核反应停止后乏燃料继续衰变所产生的余热不能有效移除,导致反应堆堆芯熔毁,锆包壳与水在高温下反应生成的氢积累,并发生爆炸,致使燃料棒融化后释放于反应堆包壳中的放射性核素大量释放于大气,并发生扩散,使得核电站附近环境放射性物质含量急剧升高。 ^{131}I 、 ^{132}I 和 ^{133}I 等放射性碘对人体的辐射危害很大,是核事故状态下需首先进行检测的核素,但在核泄漏事故发生早期,针对短寿命核素的传统放射性测量方法往往存在灵敏度低、测量时间长等缺点。 ^{129}I 是长寿命核素,在燃料棒中不断累积,原子数不断增加,释放出来的长寿命核素的原子数远远高于 ^{131}I 等短寿命核素的,且具有和 ^{131}I 等短寿命放射性碘相同的化学性质,因此 ^{129}I 可作为核设施运行状况以及核燃料循环对环境评价的指示性核素。

目前,加速器质谱(AMS)是测量环境中痕量 ^{129}I 的最有力手段,测量 ^{129}I 的灵敏度可达 $10^6 \sim 10^4$ 个原子, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子比探测限可达 10^{-14} ^[4],用AMS测定环境样品中的 ^{129}I 已成为国际上进行核查的重要手段。本工作拟建立大气颗粒物中 ^{129}I 浓度的AMS测量方法,并将其

应用于福岛核电站事故后北京地区大气颗粒物中 ^{129}I 的测定,以初步讨论 ^{129}I -AMS测量在辐射安全及应急辐射监测方面的潜在应用价值。

1 样品采集与处理

由于大气颗粒物中的碘含量较低,无法达到AMS测量的样品需求量,因此在本实验中采取加载体方法以满足测量需求,该方法需得到大气颗粒物中碘的浓度信息,在保证不影响测量精度的情况下选择载体加入量。

1.1 样品采集

采样装置是禁核试北京国家数据中心和北京放射性核素实验室研制的PMS-800大流量大气颗粒物采样器。PMS-800采用变频技术保持流量稳定,自动控制软件实现采样过程的控制、数据采集和数据处理功能;用聚丙烯纤维滤材作为颗粒物的收集介质。采样器的性能指标为:最大采样流量可达 $800 \text{ m}^3/\text{h}$ 以上,流量不确定度小于5%;采样期间流量波动在 $\pm 5\%$ 之内;当负载达到20 kPa时,实现停机保护;采样滤材对 $0.2 \mu\text{m}$ 气溶胶的收集效率为82.5%;自采样开始每10 min存储一次系统参数^[5]。

1.2 颗粒物中碘的确定

为确定合适的载体加入量,首先需了解颗粒物中碘的含量。实验中选取一份空气采集量为 824.6 m^3 的颗粒物样品进行测量,主要测量其中无机碘的含量。具体操作步骤如下:截取所需用量的大气颗粒物滤膜样品,剪碎并置入烧杯中,向烧杯中加入约200 mL 0.05 mol/L NaOH与0.025 mol/L NaHSO_3 的提取液,封口置于超声清洗器中超声震荡2 h,再封口后置于振荡器中震荡8 h,以充分提取样品中的可溶无机碘,最后过滤样品溶液,滤出液用于离子色谱(IC)测量颗粒物中碘的含量^[6-7]。颗粒物样品和标准I⁻溶液的离子色谱示于图1,测量结果列于表1。

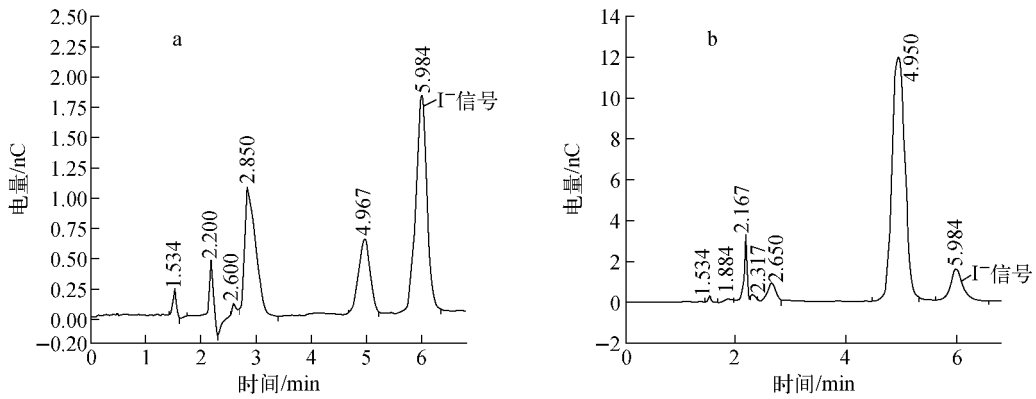


图1 大气颗粒物样品溶解液(a)和浓度为 100 ng/m³ 的标准碘溶液(b)中 I⁻ 的离子色谱
 Fig. 1 Chromatograph of I⁻ in extraction solution (a) and standard solution of 100 ng/m³ (b)

表 1 北京地区空气颗粒物总碘测量结果

Table 1 Iodine measurement results of air particle samples in Beijing

空气取样量/ m ³	溶液体积/ mL	标准碘溶液浓度/ (ng · m ⁻³)	标准溶液碘峰面积/ (nC · min)	样品溶液碘峰面积/ (nC · min)	样品中碘浓度/ (ng · m ⁻³)
824.6	125	100	0.42	0.38	13.7

1.3 载体加入量的确定

设颗粒物样品中碘总量为 m , 原子数为 n , ¹²⁹I 与 ¹²⁷I 的原子数之比(¹²⁹I/¹²⁷I)为 α ; KI 载体量为 M , KI 质量数为 N , ¹²⁹I/¹²⁷I 为 β ; ¹²⁹I/¹²⁷I 测量值为 η 。

颗粒物样品中 ¹²⁹I 和 ¹²⁷I 的原子数为 n_{129} 和 n_{127} , KI 载体中 ¹²⁹I 和 ¹²⁷I 原子数为 N_{129} 和 N_{127} , 则 ¹²⁹I/¹²⁷I 的测量值 η 为:

$$\eta = \frac{n_{129} + N_{129}}{n_{127} + N_{127}} \quad (1)$$

同时可推得:

$$\alpha = \eta + \frac{126.9}{166} \frac{M}{m} (\eta - \beta) \quad (2)$$

$$\chi' = \frac{\left(\frac{126.9}{166} \frac{M}{m} + 1\right) \chi \eta + \frac{126.9}{166} \frac{M}{m} \chi \beta}{\left(\frac{126.9}{166} \frac{M}{m} + 1\right) \eta - \frac{126.9}{166} \frac{M}{m} \beta} \quad (3)$$

一般情况下, $M \gg m$, 则式(3)可简化为:

$$\chi' = \frac{\eta + \beta}{\eta - \beta} \chi \quad (4)$$

其中: χ 为不确定度; χ' 为相对不确定度。

由此可知: 分母 $\eta - \beta$ 越小, 所得颗粒物样品 ¹²⁹I/¹²⁷I 真实值的相对不确定度就越大。同时, 在 $M \gg m$ 时, 式(1)可简化为:

$$\eta = \frac{166m}{126.9M} \alpha + \beta, \text{ 即 } \eta - \beta = \frac{166m}{126.9M} \alpha \quad (5)$$

当 $\frac{166m}{126.9M} \alpha$ 接近 0 时, χ' 呈反比例急剧增大至无穷。当载体的本底水平 β 确定时, 所加载体的量只能控制在一定的数值以下, 即 $\frac{m}{M}$ 的值要大于一定值, 测量不确定度才可控制。如果加速器质谱测量的相对不确定度为 2%, 则最后结果的 χ' 要控制在 20% 以内。由式(4)可得 $\eta = \frac{11}{9} \beta$, 将其代入式(5)可得:

$$\frac{m}{M} = \frac{2\beta}{9\alpha} \frac{126.9}{166} \quad (6)$$

即, 要使 χ' 小于 20%, 应满足 $\frac{m}{M} \geq \frac{2\beta}{9\alpha} \cdot \frac{126.9}{166}$ 。

因此, 最终颗粒物样品中总碘浓度为 13.7 ng/m³。根据 $\frac{m}{M} \geq \frac{2\beta}{9\alpha} \frac{126.9}{166}$ 的条件, 确定保证不确定度在 20% 内的载体用量。假设大气颗粒物中 α 的值在 10^{-11} 水平(因为自核工业兴起以来, 全球表层环境的 ¹²⁹I/¹²⁷I 已上升了 2~3 个量级, 比值范围在 $10^{-10} \sim 10^{-8}$ 水平乃至更高), 空气采集量约为 5 000 m³, 实验室中载体的 ¹²⁹I/¹²⁷I 为 2.4×10^{-13} , 则根据 $\frac{m}{M} \geq \frac{2\beta}{9\alpha} \frac{126.9}{166}$ 可

得到载体用量 $M \leq 20$ mg。鉴于加速器质谱测量对样品量的低需求,实验中采取 5 mg 左右的载体加入量,以保证较低的误差。

1.4 AgI 样品制备

AMS 测量 ^{129}I 要求样品为 AgI 形式,所以测量大气颗粒物中的 ^{129}I 要将碘从样品基质中分离出来,并将其纯化 AgI 形式。本研究的样品处理主要针对其中的无机碘,具体过程如图 2 所示。

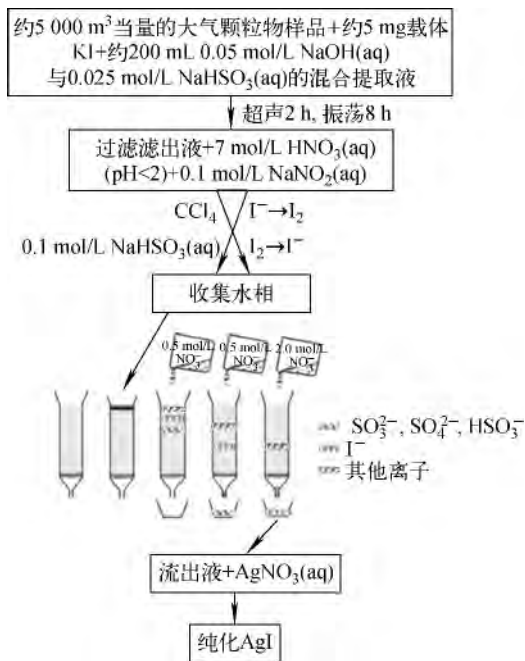


图 2 AgI 靶样制备流程

Fig. 2 Radiochemical procedure for pure AgI target preparation

1) 将滤膜样品剪碎,置入烧杯中,加入 2~5 mg 载体 KI,封口,于超声波清洗器中清洗 2 h,然后向烧杯中加入约 200 mL 0.05 mol/L NaOH 与 0.025 mol/L NaHSO₃ 的混合溶液(可适量多加,但不可过量,以避免增大流程空白),然后于振荡器中振荡 8 h。

2) 过滤,取上清液,取部分清液测量碘。向剩余提取液中加入 2~5 mg 载体 KI 用于 ^{129}I 靶样制备,将其转移至分液漏斗,加入 7 mol/L HNO₃ 至 pH < 2,少量 0.1 mol/L NaNO₂ 将溶液中的碘离子(I⁻)氧化成单质碘(I₂),并加入 CCl₄ 萃取剂,快速关闭漏斗,并摇匀。静置,分离,将流出的有机液水封,多次萃取,合并 CCl₄

相,用 NaHSO₃ 反萃取。

3) 将反萃取溶液以 1 mL/min 流速通过装有 NO₃⁻ 的 AG-1-×8 阴离子树脂交换柱,先用 50 mL 0.5 mol/L KNO₃ 溶液淋洗交换柱,洗脱 HSO₃⁻、SO₄²⁻ 和 SO₃²⁻。然后用 140 mL 2.0 mol/L KNO₃ 溶液洗柱子,将树脂吸附的 I⁻ 洗脱出来。

4) 向流出液中加入硝酸酸化,待酸化后加入饱和 AgNO₃ 溶液,生成 AgI 沉淀。

5) 过滤,用水和无水乙醇冲洗 AgI 沉淀后用抽滤器将其固定在滤膜上,将滤膜放置在表面皿上,置于烘箱中烘干。将待测样放入 5 mL 小试剂瓶中,用锡纸包裹,放在干燥器中避光保存。

2 样品 ^{129}I 的 AMS 测量

2.1 AMS 测量系统

本文采用中国原子能科学研究所的 AMS 测量系统测量样品的 ^{129}I ,主设备是基于一台原美国高压工程公司生产的 HI-13 串列加速器(端电压可达到 13 MV)的 AMS 系统。

2.2 ^{129}I 测量靶的制备

按质量比 1:1 的比例将制得的 AgI 样品与银粉混合,压入离子源的靶锥中心小孔(小孔直径 3 mm,孔深 2~3 mm)中备测^[8]。

2.3 ^{129}I 的 AMS 系统传输

本研究用半导体探测器测量 ^{129}I 计数。测量前设备的调试过程如下:

1) ^{127}I 的传输:从离子源引出 $^{127}\text{I}^-$,经加速器端的碳膜剥离后,选择 9+ 电荷态。依次调节偏转磁铁、加速器、分析磁铁、开关磁铁、静电分析器以及相关的束流聚焦元件,使 ^{127}I 在整个 AMS 系统的束流传输效率达到最佳。

2) 用 ^{127}I 模拟传输 ^{129}I :改变高能分析磁铁的磁场到理论设置的测量 ^{129}I 的磁场值,调节加速器的端电压使 $^{127}\text{I}^{9+}$ 具有和 $^{129}\text{I}^{9+}$ 相同的磁刚度,并调节开关磁铁、静电分析器的电压将 ^{127}I 传输到 AMS 系统末端的法拉第筒,以此确定 ^{129}I 的传输参数。

3) 完成上面的传输后,将 ^{129}I 注入到加速器,利用前面确定的 ^{129}I 传输参数将 ^{129}I 传输到探测器,利用探测器的信号微调加速器的端电压和开关磁铁的磁场使探测器的计数率达到最

大。由此完成束流的传输,进行¹²⁹I测量,测量结果列于表2。

表2 ¹²⁹I的AMS测量参数

Table 2 Measurement parameters of ¹²⁹I-AMS

样品的化学形式	引出离子	工作电压/MV	电荷态	探测器	灵敏度
AgI	I ⁻	7.78	9+	金硅面垒半导体	10 ⁻¹⁴

2.4 样品中¹²⁹I束流与¹²⁷I计数比的测定过程
 用偏置法拉第筒测量¹²⁷I的束流 $B(^{127}\text{I})$, 用半导体探测器测量¹²⁹I的计数 $n(^{129}\text{I})$, 进而求出 $n(^{129}\text{I})/B(^{127}\text{I})$, 此比值即为归一后的¹²⁹I计数率 $\text{CR}(^{129}\text{I})$ 。将被测靶样与标准样品的 $\text{CR}(^{129}\text{I})$ 进行比较, 然后由标准样品中已知的¹²⁹I/¹²⁷I的比值 $R(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{标样}}$ 得到被测靶样的¹²⁹I/¹²⁷I比值 $R(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{靶样}}$, 公式如下:

$$\frac{R(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{靶样}}}{R(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{标样}}} = \frac{n(^{129}\text{I})_{\text{靶样}}/B(^{127}\text{I})_{\text{靶样}}}{n(^{129}\text{I})_{\text{标样}}/B(^{127}\text{I})_{\text{标样}}} = \frac{\text{CR}(^{129}\text{I})_{\text{靶样}}}{\text{CR}(^{129}\text{I})_{\text{标样}}} \quad (7)$$

2.5 大气颗粒物中¹²⁹I浓度的计算

AMS测定时仅给出靶样的¹²⁹I/¹²⁷I值, 环境样品分析时¹²⁹I原子数浓度则按下式计算:

$$A^{129}\text{I}_{\text{sample}} = \frac{n_{127}\alpha}{Q} = \frac{mN_A\alpha}{126.9Q} \quad (8)$$

式中, Q 为空气采集量, m^3 。根据式(2), 式(8)可转化为:

$$A^{129}\text{I}_{\text{sample}} = \frac{mN_A}{126.9Q}\eta + \frac{MN_A}{166Q}(\eta - \beta) \quad (9)$$

由于 $m \ll M$, 式(9)可进一步简化为:

$$A^{129}\text{I}_{\text{sample}} = \frac{MN_A}{166Q}(\eta - \beta) \quad (10)$$

3 结果与讨论

对福岛事故期间北京地区的大气颗粒物样品进行检测, 实验中采用的 KI 载体用量为 5.55 mg (5 mL), 载体碘当量为 4.25 mg (5.55 mg × 127/166), ¹²⁹I/¹²⁷I 比值为 $(2.41 \pm 0.98) \times 10^{-13}$ 。大气颗粒物样品中¹²⁹I含量随时间的变化示于图3。

由图3可知, 北京地区3月26日空气颗粒物中¹²⁹I的浓度开始高于3月20日的本底水平, 说明此时事故来源的¹²⁹I已传输到北京, 同

时¹²⁹I浓度在4月4—5日间达到峰值, 这与大气颗粒物¹³¹I数据的峰值时间点符合。而环境保护部公布的¹³¹I的测量结果显示, 截止3月28日, 传统的 γ 谱仪仍未检测出事故来源的¹³¹I。

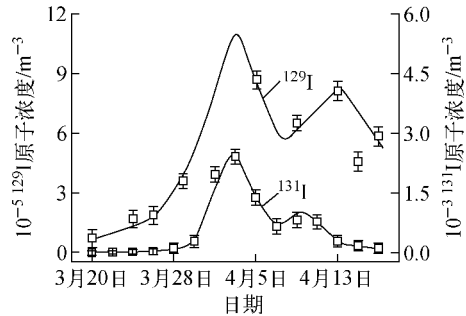


图3 2011年福岛事故期间北京地区大气颗粒物¹²⁹I与¹³¹I的浓度
 Fig. 3 ¹²⁹I and ¹³¹I concentrations of air particle samples in Beijing during FNPP accident in 2011

事故前后日本地区环境中¹²⁹I含量值增加了1~3个量级^[9]。此次福岛事故的¹²⁹I总释放量为7 GBq, 约为1986年切尔诺贝利核电站事故大气释放量(13 GBq)的1/2^[10]。本研究中福岛事故环境释放所致北京地区大气环境中¹²⁹I含量及随时间的变化显示, 4月5日—13日北京地区环境中¹²⁹I含量较本底水平增加1个量级。

4 结语

1) ¹²⁹I是核环境安全长期监测的有效核素, AMS测量环境中的¹²⁹I为核事故早期诊断提供了可能, 可作为更加灵敏、耗时更短的放射性监测手段。

2) 核泄漏事故发生早期或低泄漏量的核事故存在时, AMS测量¹²⁹I具有三方面优势: (1) 测量时间短, ¹²⁹I-AMS测量时间仅2 h, 样品处理需8 h, 采样时间2~5 h即可, 而¹³¹I低本底 γ 谱仪测量需20 h, 采样时间20 h; (2) 测量灵敏度高, 首先¹²⁹I-AMS的探测灵敏度高于¹³¹I低本底 γ 谱仪探测限, 其次核泄漏事故早期, ¹²⁹I释放量高于¹³¹I一到两个量级, 释放出的¹²⁹I信号用超高灵敏度的AMS易于分辨; (3) 仪器花费“低”, 1台AMS每天可测量50~

100 个样品,在相同样品量的情况下 AMS 具有优势,无需长时间排队测量。同时,AMS 小型化趋势下,在满足样品快速测量的同时,AMS 还具有价格优势,“1 台 AMS=10 台 γ 谱仪”。如今,AMS 小型化技术日趋成熟,仪器成本大幅降低,加之 AMS 较传统放射性测量仪器的优势,因此 ^{129}I -AMS 测量能为早期核泄漏监测提供更有利的条件。

3) 大气颗粒物中碘的提取和纯化至关重要,在处理过程中要严格控制实验条件,避免碘的不必要损失。本研究从滤膜上解析碘的过程花费时间较长,且未进行碘形态分析,未来如果采用高温释放的方法,可充分提取样品中的碘,且制样时间将大幅缩短,使从采样到得到结果的时间控制在数小时内。同时若要满足地球环境科学和地质学中的低水平 ^{129}I 样品的检测要求,还应严格控制载体的加入量,以避免载体中微量 ^{129}I 掩盖样品的真实信号。

4) ^{129}I -AMS 测量为我国核环境安全监测提供了一种新手段,若要全面系统地开展辐射监测应用的研究,还需对不同类型的样品进行连续采样分析。这不但对以后核设施的核安全监测十分重要,也有助于确定我国环境中 ^{129}I 的来源。

参考文献:

- [1] WAGNER M, DITTRICH-HANNEN B, SYNAL H A, et al. Increase of ^{129}I in the environment[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 1996, 113(1-4): 490-494.
- [2] REITHMEIER H, LAZAREV V, NOLTE E, et al. Anthropogenic ^{129}I in the atmosphere: Overview over major sources, transport processes and deposition pattern[J]. Science of the Total Environment, 2010, 408(21): 5 052-5 064.
- [3] ZHOU W, HOU X, CHEN N, et al. Preliminary study of radioisotope ^{129}I application in China using Xi'an accelerator mass spectrometer[J]. INCS News, 2010, 25: 8-23.
- [4] 姜山,董克君,何明. 超灵敏加速器质谱技术进展及应用[J]. 岩矿测试, 2012, 31(1): 7-23.
JIANG Shan, DONG Kejun, HE Ming. Development and application of ultrasensitive accelerator mass spectrometry[J]. Rock and Mineral Analysis, 2012, 31(1): 7-23(in Chinese).
- [5] 常印忠,刘龙波,王世联,等. PMS-800 大流量大气颗粒物采样器的研制[J]. 辐射防护, 2011, 31(1): 39-44.
CHANG Yinzhong, LIU Longbo, WANG Shilian, et al. Development of PMS-800 atmospheric particulate sampler[J]. Radiation Protection, 2011, 31(1): 39-44(in Chinese).
- [6] LOPEZ-GUTIERREZ J, GARCIA-LEON M, SCHNABEL C, et al. Determination of ^{129}I in atmospheric samples by accelerator mass spectrometry[J]. Applied Radiation and Isotopes, 1999, 51(3): 315-322.
- [7] SANTOS F J, LOPEZ-GUTIERREZ J M, CHAMIZO E, et al. Advances on the determination of atmospheric ^{129}I by accelerator mass spectrometry (AMS)[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2006, 249(1-2): 772-775.
- [8] 蒋崧生,何明,谢运棉,等. 环境中人造 ^{129}I 的 AMS 方法测定[J]. 质谱学报, 1999, 20(3-4): 127-128.
JIANG Songsheng, HE Ming, XIE Yunmian, et al. AMS measurement of anthropogenic ^{129}I in the environments[J]. Journal of Chinese Mass Spectrometry Society, 1999, 20(3-4): 127-128 (in Chinese).
- [9] MIYAKE Y, MATSUZAKI H, FUJIWARA T, et al. Isotopic ratio of radioactive iodine ($^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$) released from Fukushima Daiichi NPP accident[J]. Geochemical Journal, 2012, 46(4): 327-333.
- [10] HOU X, POVINEC P P, ZHANG L, et al. Iodine-129 in seawater offshore Fukushima: Distribution, inorganic speciation, sources, and budget[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(7): 3 091-3 098.