

土壤样品中超微量¹²⁹I 的无载体共沉淀分离及加速器质谱测定

罗茂益^{1,3} 周卫健^{1,2,3} 侯小琳^{*2,3} 陈宁^{2,3} 张路远^{2,3} 刘起^{2,3}
贺朝会¹ 范煜坤^{2,3} 梁旺国^{1,2} 王志文¹ 付云翀^{2,3}

¹(西安交通大学环境科学系,西安 710049)

²(中国科学院地球环境研究所黄土与第四纪地质国家重点实验室,西安 710075)

³(西安加速器质谱中心,西安 710052)

摘要 环境样品中超微量¹²⁹I 的准确测定是天然¹²⁹I 地质定年和环境示踪应用的关键。本研究通过高温热解法分离土壤中的碘,并将其收集于碱性捕集液中,再利用 AgI-AgCl 共沉淀方法实现捕集液中碘的无载体分离;采用 3 MV 加速器质谱仪测量沉淀样品中¹²⁹I/¹²⁷I 比值。通过优化分离和分析条件,高温热解过程中碘的分离效率达 95% 以上;无载体共沉淀过程碘的回收率为 75% ~ 85%;样品中碘的总分离效率大于 70%。应用本方法对低碘含量土壤样品中¹²⁹I/¹²⁷I 原子比值低至 10⁻¹¹ 的超微量¹²⁹I 进行了准确测定。结果表明:本方法适用于¹²⁹I/¹²⁷I 比值低至 10⁻¹² 的同类型样品的分析。

关键词 碘-129; 同位素示踪; 共沉淀分离; 土壤; 加速器质谱

1 引言

¹²⁹I 为碘的一种长寿命放射性同位素(半衰期为 1.57 × 10⁷ 年)。在自然界,¹²⁹I 通过²³⁸U 自发裂变、²³⁵U 的中子诱发裂变及大气层中宇宙射线同氡的相互作用生成。海洋沉积物分析以及理论计算表明,海洋环境中天然¹²⁹I/¹²⁷I 水平为 10⁻¹² [1]。然而,大气核试验、核反应堆事故、特别是核燃料后处理厂向环境释放了大量的¹²⁹I,导致目前地表环境中¹²⁹I/¹²⁷I 比值升高至 10⁻¹⁰ ~ 10⁻⁶ [2]。目前,¹²⁹I 研究主要集中在核设施周围环境监测^[3]、利用人为释放的¹²⁹I 进行海洋和环境示踪研究^[4]以及用天然¹²⁹I 进行石油卤水的年代测定和来源研究等^[5]。国内有关¹²⁹I 的研究较少^[6,7]。加速器质谱是目前灵敏度最高,也是唯一可对¹²⁹I/¹²⁷I 低于 10⁻¹⁰ 的样品进行准确分析的方法。

¹²⁹I 因其较长放射性半衰期和独特的天然来源,非常适合于对地质年龄为 2 × 10⁶ ~ 80 × 10⁶ 年的地质样品进行年代测定。由于缺乏有效分离和分析方法,目前¹²⁹I 地质定年主要针对碘含量较高的海生样品。陆生样品由于其总碘含量较低,尚未见利用¹²⁹I 对其定年的报道。另外,¹²⁹I 地质定年的关键是¹²⁹I/¹²⁷I 初始值,即核活动前地球环境样品中¹²⁹I 水平。海洋环境总碘水平远高于陆生环境,因而海洋中¹²⁹I/¹²⁷I 的初始值无法用于陆生环境。目前,有关陆生环境中人类核活动前¹²⁹I 水平研究极少,且报道的值变化极大,难以应用。土壤中总碘含量为 0.5 ~ 40 mg/kg 之间,通常为 1 ~ 3 mg/kg^[8]。对于深层土壤,其中¹²⁹I 主要为天然生成,¹²⁹I/¹²⁷I 原子比值为 10⁻¹³ ~ 10⁻¹⁰。分离土壤中¹²⁹I 通常需加入 1 ~ 10 mg 稳定碘载体,然后用碱熔、酸浸或氧化燃烧法将碘转移至溶液中。然而稳定碘载体中也含有少量¹²⁹I,因此载体加入法无法应用于超低¹²⁹I 水平环境样品的分析。

在¹²⁹I 加速器质谱分析中,用于加速器质谱仪靶源中的碘需要制成具有较高稳定性的碘化银沉淀。对于液体样品中微量碘的分离富集,常用的方法有溶剂萃取、离子交换、直接 AgI 沉淀和银粉吸附法。溶剂萃取法对于高盐度样品(如海水或碘的碱性吸收液)在无稳定碘载体加入的情况下,萃取回收率极低(<20%),难以用于分离捕集液中的微量碘。离子交换法适用于从大体积水样中分离碘,但分离后的碘仍存在于洗脱液中。由于土壤样品中碘含量较低(0.5 ~ 5 mg/kg),对于 20 g 土样,捕集液中总碘含量仅为 0.01 ~ 0.1 mg,难以采用 AgI 直接沉淀法分离出 AgI。Yiou 等^[9]报道了利用元素碘可与银粉反应形成稳

2010-06-20 收稿;2010-09-23 接受

本文系中国科学院百人计划(No. KZCX2-YW-BR-13)和知识创新项目(Nos. KZCX2-YW-447, KZCX2-YW-JS106)资助

*E-mail: houxl@ccit.ac.cn Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

定化合物的特性将其吸附于银粉上,分离出溶液中的碘。该方法已用于分离小体积海水(<100 mL)中的碘。但本实验发现,对于 35 mL 捕集液该方法的分离效率低于 30%,因此不适合对低碘含量溶液中碘的分离。本研究利用 AgI-AgCl 共沉淀法结合高温热解分离法,建立了土壤样品中超低水平¹²⁹I 的分析方法。

2 实验部分

2.1 仪器与试剂

Pyrolyser-4 Trio™ 恒温热解炉(英国 Raddec 公司); J1303/GBWN 型精密气动压力机(中国奥德铆压设备有限公司,用于靶样压制); FJ2021 型 γ 放射免疫计数器(西安核仪器厂)。

HNO₃, AgNO₃, NaCl, NaHSO₃ 均为优级纯试剂。NaI 溶液(¹²⁵I, 成都中核高通同位素股份有限公司), 经 0.001 mol/L NaOH 稀释后配制成 2000~3000 Bq/mL ¹²⁵I 示踪液。¹²⁹I 标准溶液(NIST-SRM-4949c 美国国家标准技术研究所)。所有溶液均用二次去离子水(18.2 M Ω cm) 配制。

2.2 实验方法

2.2.1 样品采集与前处理 在西安地区不同地点采集 4 个土壤样品(见表 1)。采集的土壤样品经自然风干并去除其中植物根和石块后研磨,过 0.098 mm 孔径筛。

2.2.2 土壤样品中碘的高温热解分离 称取 20.00 g 土壤样品,置于高温热解炉特制石英舟中,加入 0.10 mL 1000 Bq/mL ¹²⁵I 示踪剂溶液,与样品混合均匀后,放入高温热解炉第一温区,按高温热解炉升温程序(表 2)分解样品。用盛有 35 mL 捕集液(含 0.5 mol/L NaOH 和 0.02 mol/L NaHSO₃) 的鼓泡管收集高温热解过程中分解并经由载气带出的碘。图 1 为经改装的高温热解炉 Pyrolyser-4 Trio™ 示意图。该高温热解炉有 3 个温区,第一温区(Sample zone)和第二温区(Mid-zone)的升温程序设置如表 2;第三温区(Catalyst zone)于热解炉开启后 30 min 内快速升温至 900 °C,并保持此温度直至实验结束。热分解完成后将鼓泡管中的捕集液转移至 50 mL 离心管,准确称重。取 3.0 mL 溶液于 10 mL 离心管中,用 γ 计数器测量 ¹²⁵I 计数,计算高温热解分离过程中碘的分离效率。

表 2 土壤样品高温热解升温程序设置

Table 2 Protocol of combustion furnace for decomposition of soil samples

步骤 Step	第一温区温度 Temperature at sample zone(°C)	持续时间 Duration(min)	第二温区触发否 Trigger to Mid-zone	第二温区温度(°C) Trigger temperature to Mid-zone	载气 Input gas
1	Room temperature ~ 250	20	No		N ₂ + O ₂
2	250	10	No		N ₂ + O ₂
3	250 ~ 400	30	Yes	350	N ₂ + O ₂
4	400	20	Yes	350	N ₂ + O ₂
5	400 ~ 800	40	Yes	400	O ₂
6	800	60	Yes	795	O ₂

2.2.3 共沉淀分离捕集液中碘 将捕集液转移至 50 mL 离心管,用 6 mol/L HNO₃ 调节至 pH 1~2,加入适量 NaCl,1 mol/L NaHSO₃ 及 2 mL 1 mol/L AgNO₃,充分混合后静置 20~30 min。离心 5 min 后收集沉淀,将上清液转移至另一离心管测定其 ¹²⁹I 计数,用以确定共沉淀过程中碘的分离效率。

表 1 土壤样品采样信息

Table 1 Sampling locations, layer and date collected

样品 Sample	位置 Location	采集日期 Date collected	层位 Depth(cm)
Soil 1	西安 Xi'an	2009.07	150
Soil 2	西安 Xi'an	2010.02	300
Soil 3	周至 Zhouzhi, Shaanxi	2009.09	0~20
Soil 4	洋峪口 Fengyukou, Shaanxi	2009.09	0~20

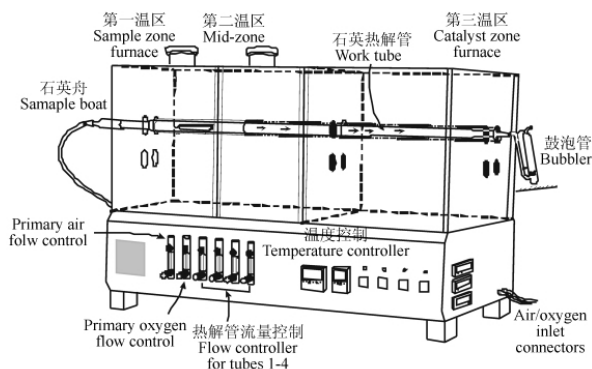


图 1 改装的高温热解炉 Pyrolyser-4 Trio™ 示意图

Fig. 1 Schematic diagram of modified Catalytic Pyrolyser-4 Trio™ furnace

向沉淀中加入 15 ~ 30 mL 3 mol/L HNO₃ 溶液,充分混合后,离心分离沉淀。测上清液中¹²⁵I 计数,计算碘在酸洗过程中丢失率。以水洗涤沉淀,离心、分离沉淀。最后将沉淀用水转入 1.5 mL 离心管中,离心分离,测量最终沉淀中¹²⁵I 的计数,计算碘的分离效率。

2.3 ¹²⁹I/¹²⁷I 比值测定

将制备好的 AgI-AgCl 沉淀在 60 °C 烘箱里烘干,研磨至粉状。按质量比 1: 2 与 Nb 粉混合均匀,用精密气动压力机将沉淀压入 Cu 靶。采用 3MV 加速器质谱仪测定¹²⁹I/¹²⁷I 比值。该仪器最小可探测¹²⁹I/¹²⁷I 比值(本底)为 2.0×10^{-14} ,对于¹²⁹I/¹²⁷I 比值为 10^{-10} 的样品,测量精度 $\leq 1.75\%$ [10,11]。将压制好的靶样置入离子源内的靶盘中。样品经 Cs⁺ 溅射后,以 I⁻ 形式进入注入分析系统。通过 54° 球形静电分析器和 90° 双聚焦能量跳跃磁铁分析,将¹²⁹I⁻ 和¹²⁷I⁻ 交替注入高能加速管。在加速管内,通过氙气剥离器使 I⁻ 转化成不同价态碘正离子。这些离子经过再次加速后,由 115° 的高能分析磁铁分离出¹²⁷I⁵⁺ 和¹²⁹I⁵⁺。¹²⁷I⁵⁺ 由法拉第杯测量其电量,¹²⁹I⁵⁺ 则经过能量选择和动量选择后由气体电离探测器测量其计数。

3 结果与讨论

3.1 高温热解法分离土壤中微量碘

在氧化性高温环境下,样品中的碘转化成挥发性单质碘或其它形式碘,应用载气将其转移至碱性吸收液中。用 35 mL 捕集液(0.5 mol/L NaOH-0.02 mol/L NaHSO₃) 收集碘。在碱性溶液(如 NaOH) 中,单质碘发生歧化反应生成碘化物和碘酸盐,而其它形态碘也会在 NaOH 溶液中被吸收并转化成碘酸盐或次碘酸盐。在多数文献报道中,捕集液中都加入了 NaHSO₃。由于碱性环境下亚硫酸盐不能将碘酸盐还原为碘化物,故捕集液中 NaHSO₃ 对歧化反应生成产物影响不大。实验发现,高温热解分解土壤样品所得的捕集液酸化后加入 AgNO₃ 溶液,生成的 Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄ 沉淀极少,而流程空白(空石英舟中加入¹²⁵I 示踪剂) 所得的捕集液中有大量的 Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄ 沉淀生成,说明土壤中某些物质在高温热解过程中挥发进入捕集液,并消耗捕集液中的 NaHSO₃。通过¹²⁵I 示踪发现,如仅用 0.5 mol/L NaOH 为捕集液,高温热解过程碘的回收率(80% ~ 90%) 略低于由 0.5 mol/L NaOH-0.02 mol/L NaHSO₃ 组成的捕集液(>95%)。这可能是由于捕集液中的 NaHSO₃ 可与样品在高温热解过程中释放的部分氧化性物质反应,对进入捕集液中的碘起到保护作用,从而提高了碘在捕集液中的收集效率。

本研究通过尽量缩短燃烧管出口与装有捕集液的鼓泡管之间的距离(< 2 cm),保证在高温(>400 °C) 下,碘进入捕集液鼓泡管,避免其在管壁的吸附丢失。燃烧过程中碘极高的回收率说明无碘因凝结吸附而丢失。在连续分析碘含量相差 3 个量级的样品中未出现交叉污染现象。

3.2 NaCl 加入量对 AgI-AgCl 共沉淀的影响

在 35 mL 含有¹²⁵I 示踪剂及 0.02 mg 稳定碘的 1 mol/L NaNO₃ 溶液(模拟捕集液) 中,分别加入 0.5, 0.8 和 1.0 mg NaCl、0.8 mL 1 mmol/L NaHSO₃ 和 4 mL 6 mol/L HNO₃,混匀后,加入 2 mL 1 mol/L AgNO₃ 形成 AgI-AgCl 共沉淀。结果表明:NaCl 加入量越多,共沉淀过程中碘的损失越少,酸洗过程中碘的丢失量也越少,沉淀中碘的回收率越高(图 2)。水洗沉淀过程中碘的损失率 < 2%。

在热分解和酸化过程中,捕集液中的部分 NaHSO₃ 与碘酸盐和其它氧化性物质反应生成 Na₂SO₄。当加入过量 AgNO₃ 时,Ag⁺ 可生成 AgI、AgCl、Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄ 等多种沉淀。由于 Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄ 溶于 HNO₃,而 AgI 和 AgCl 不溶,利用酸洗可除去 Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄。NaCl 加入量越大,生成的 AgCl 越多,AgI 的载带越多,碘的回收率提高。NaCl 加入越多,AgI-AgCl 共沉淀量相对于 Ag₂SO₃ 和 Ag₂SO₄ 沉淀越大,在酸洗步骤中碘的丢失越小。实验结果如图 2 所示,当加入 1 mg NaCl 时,沉淀中碘的回收率虽然能达到 90% 以上,但最终沉淀的质量约为 4 mg,与 Nb 粉按质量比 1: 2 混合后,所得的沉淀不能全部压到靶中;还提高了的单位质量土壤样品中¹²⁹I 的加速器质谱分析探测极限,导致测量精度降低。选择 NaCl 加入量为 0.5 mg,最终沉淀总量为 1.5 ~ 1.8 mg,与适量 Nb 粉混合,可全部压入靶源。

3.3 NaHSO₃ 浓度对 AgI-AgCl 共沉淀的影响

用土壤高温热解所获得的吸收液,加入 1.0 mg NaCl,研究共沉淀过程中 NaHSO₃ 加入量对碘回收率的影响。结果表明,随着 NaHSO₃ 加入量增加,共沉淀过程中碘的回收率升高,但是酸洗造成的损失增加(图 3)。

在加入 0.2 ~ 0.4 mL 1 mol/L NaHSO₃ 时, 回收率最高。因此选择在捕集液中加入 0.5 mg NaCl 和 0.2 或 0.4 mL 1 mol/L NaHSO₃ 进行 AgI-AgCl 共沉淀分离, 在此条件下碘最终回收率可达 70% 以上。

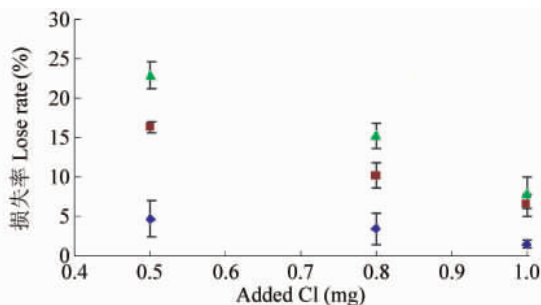


图 2 NaCl 加入量对共沉淀碘回收率的影响 ($n = 3$)

Fig. 2 Effect of amount of NaCl on recovery of iodine in AgI-AgCl co-precipitation

◆: 共沉淀损失 (Co-precipitation loss); ■: 酸洗损失 (Acid-eluting loss); ▲: 总共损失 (Total loss)。

3.4 西安部分地区土壤样品分析

应用此实验流程分离了采集于西安部分地区土

壤样品中的碘。结果表明(表 3), 采用本方法对¹²⁹I/¹²⁷I 比值为 10^{-11} 的样品的测量精度小于 5%; 空白样和坩粉中的¹²⁹I 计数和¹²⁷I 电流均比样品中¹²⁹I 计数和¹²⁷I 电流低 1 ~ 3 个数量级。说明 AgCl-AgI 共沉淀分离碘和靶源制备方法非常有效。按 3 倍空白标准偏差计算, 本方法可对¹²⁹I/¹²⁷I 比值低至 10^{-12} 的样品进行分析。而对于更低¹²⁹I 水平的样品, 样品量应大于 20 g。

表 3 西安部分地区土壤及空白样中¹²⁹I/¹²⁷I 加速器质谱分析结果

Table 3 Analytical result of ¹²⁹I/¹²⁷I ratio in blank and soil samples collected in Xi'an, China

土壤样品 Samples	样品编号 Sample ID	NaCl (mg)	Recovery (%)	¹²⁹ I 计数/5 min ¹²⁹ I, Counts (n=6)	¹²⁷ I, Coulomb/5 min (n=6)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I (n=6)	RSD (%, n=6)
Soil 1	XA-I100052	1.00	84.22	30.30	1.64×10^{-6}	1.90×10^{-11}	12.56
Soil 1	XA-I100054	1.00	87.26	33.29	1.73×10^{-6}	1.92×10^{-11}	11.72
Soil 2	XA-I100125	0.50	67.66	40.12	2.21×10^{-6}	1.32×10^{-11}	5.69
Soil 2	XA-I100128	0.50	79.35	55.55	3.33×10^{-6}	1.39×10^{-11}	3.90
Soil 3	XA-I100057	1.00	82.77	421.96	5.39×10^{-7}	5.55×10^{-10}	6.83
Soil 3	XA-I100061	1.00	84.65	472.08	6.03×10^{-7}	5.55×10^{-10}	5.97
Soil 4	XA-I100136	0.50	77.43	307.21	3.59×10^{-6}	8.02×10^{-11}	4.99
Soil 4	XA-I100138	0.50	72.29	454.50	5.34×10^{-6}	8.03×10^{-11}	3.93
空白 Blank	XA-I100051	1.00		1.96	7.47×10^{-8}		
空白 Blank	XA-I100067	0.50		2.24	7.58×10^{-8}		
捕集液空白 Blank of capture solution	XA-I100134	0.50		2.81	9.13×10^{-8}		
Nb	Nb-1			0.37	6.64×10^{-8}		
Nb	Nb-2			0.37	7.04×10^{-8}		

样品见表 1 (Sample number is the same as in Table 1)。

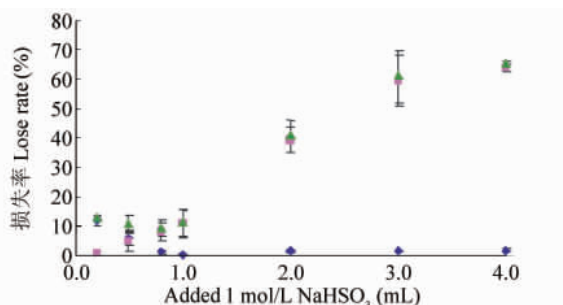
由于缺乏标准参考物质, 应用标准加入法检查方法的准确度。在燃烧过的深层土壤中加入 0.10 mg 以¹²⁹I 标准溶液 (NIST-SRM-4949c) 稀释成的¹²⁹I/¹²⁷I 标准溶液 (含有 0.10 mg/g 碘, ¹²⁹I/¹²⁷I = 1.14×10^{-10}) 采用本方法分析其中¹²⁹I/¹²⁷I 比值, 分析结果 ($(1.06 \sim 1.16) \times 10^{-10}$) 与加入值吻合极好^[12], 证明本方法可靠。

土壤 1 和土壤 2 (表 3) 为距地面 1.5 ~ 3.0 m 的深层土壤样品, 其比值接近。尽管土壤 2 比土壤 1 采集层位深, 总碘含量低, 用 0.5 mg NaCl 进行共沉淀时, 测得的¹²⁹I 的计数及¹²⁷I 的电流均比土壤 1 高, 同时测量的相对标准偏差减小到 6% 以内。其它土壤的测试结果也得到相应的结论。说明当加入 0.5

图 3 NaHSO₃ 加入量对 AgI-AgCl 共沉淀中碘回收率的影响 ($n = 3$)

Fig. 3 Effect of amount of NaHSO₃ on separation of iodine by AgI-AgCl coprecipitation

▲: 共沉淀损失 (Co-precipitation loss); ■: 酸洗损失 (Acid-eluting loss); ◆: 总共损失 (Total loss)。



mg NaCl 时,大大降低了 AgCl 及 Nb 粉对 AgI 的稀释,提高了靶中单位质量¹²⁹I 和¹²⁷I 的含量,所以提高了测量精度。土壤 3 和土壤 4 均为采集于西安地区的表层土壤,其¹²⁹I/¹²⁷I 比值比深层土壤高 4~30 倍,但与其它非核污染地区相比,仍处于全球大气沉降本底水平^[2,7,10]。

References

- 1 Fehn U, Snyder G, Egeberg P K. *Science*, **2000**, 289: 2332 ~ 2335
- 2 Hou X L, Hansen V, Aldahan A, Possnert G, Lujanienec G. *Anal. Chim. Acta*, **2009**, 632(2): 181 ~ 196
- 3 Hou X L, Fogh C F, Kucera J, Andersson K G, Dahlgard H, Nielsen S P. *The Science of the Total Environment*, **2003**, 308(1-3): 97 ~ 109
- 4 Englund E, Aldahan A, Possnert G, Haltia-Hovi E, Hou X L, Renberg I, Saarinen A. *Environmental Science and Technology*, **2008**, 42(24): 9225 ~ 9230
- 5 Moran J E, Fehn U, Jeffrey S. *Hanor. Geochimica et Cosmochimica Acta*. **1995**, 59(24): 5055 ~ 5069
- 6 XIE Yun-Mian, BAN Ying, JIANG Song-Sheng, HE Ming, JIANG Shan, WU Shao-Yong(谢运棉, 班莹, 蒋菘生, 何明, 姜山, 伍绍勇). *Radiation Protection(辐射防护)*, **1998**, 18(2): 81 ~ 88
- 7 LI Bai, ZHANG Pei-Qun, CHEN Chun-Ying, HE Ming, CHAI Zhi-Fang(李柏, 章佩群, 陈春英, 何明, 柴之芳). *Chinese J. Anal. Chem.(分析化学)*, **2005**, 33(7): 904 ~ 908
- 8 Gerzabek M H, Muramatsu Y, Strebl F, Yoshida S. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*. **1999**, 162(4): 415 ~ 419
- 9 Yiu F, Raisbeck G, Imbaud H. *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research Section B*, **2004**, 223-224: 412 ~ 415
- 10 Zhou W J, Hou X L, Chen N, Zhang L Y, Liu Q, He C H, Luo M Y, Liang W G, Fan Y K, Wang Z W, Fu Y C, Li H B. *INCS News*, **2010**, 7(1): 8 ~ 23
- 11 ZHOU Wei-Jian, LU Xue-Feng, WU Zheng-Kun, ZHAO Wen-Nian, HUAN Chun-Hai, LI Lin-Lang((周卫健, 卢雪峰, 武振坤, 赵稳年, 黄春海, 李琳琅). *Nuclear Techniques(核技术)*, **2007**, 30(8): 702 ~ 708
- 12 Hou X L, Zhou W J, Chen N, Zhang L Y, Liu Q, Luo M Y, Fan Y K, Liang W G, Fu Y C. *Anal. Chem.*, **2010**, 82(18): 7713 ~ 7721

Determination of Low Level ¹²⁹I in Soil Samples Using Coprecipitation Separation of Carrier Free Iodine and Accelerator Mass Spectrometric Measurement

LUO Mao-Yi¹, ZHOU Wei-Jian^{1,2,3}, HOU Xiao-Lin^{*2,3}, CHEN Ning^{2,3}, ZHANG Lu-Yuan^{2,3}, LIU Qi^{2,3},
HE Chao-Hui¹, FAN Yu-Kun^{2,3}, LIANG Wang-Guo^{1,2}, WANG Zhi-Wen¹, FU Yun-Chong^{2,3}

¹(Department of Environmental Science, Xi'an Jiao Tong University, Xi'an 710049)

²(State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment,
Chinese Academy Sciences, Xi'an 710075)

³(Xi'an Accelerator Mass Spectrometric Center, Xi'an 710054)

Abstract The accurate determination of ultra low level ¹²⁹I in sample is critical and essential for the application of natural ¹²⁹I in geological dating and environmental tracer studies. In this work, iodine was first separated from soil by combustion at high temperature; the released iodine was collected in an alkali trap solution. AgI-AgCl coprecipitation was used to separate carrier free iodine from the trap solution and to prepare target. ¹²⁹I in the target was then measured using a 3.0 MV accelerator mass spectrometer. The recovery of iodine during the combustion is higher than 95%. An iodine recovery of about 75% - 85% was obtained in the coprecipitation and the total recovery of iodine is above 70%. The developed method has been successfully used to determine ¹²⁹I in soil sample with low iodine content. A ¹²⁹I/¹²⁷I atomic ratio as low as 10⁻¹¹ in the deep soil has been determined. The determination of ¹²⁹I/¹²⁷I was ratio down to 10⁻¹² in solid samples.

Keywords Iodine isotopic; Coprecipitation separation; Soil; Free iodine; Accelerator mass spectrometry