

^{129}I 年代学初始值研究进展

范煜坤^{1,2}, 周卫健^{1,2}, 侯小琳^{1,2}

1. 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 陕西省加速器质谱技术与应用重点实验室, 西安 710061
2. 西安加速器质谱中心, 西安 710061

摘要: ^{129}I 由于具有较长半衰期, 为 2 Ma—80 Ma 的地质定年提供了可能, 因此, 近几十年来, ^{129}I 定年的关键参数“初始值”受到了学术界关注。海洋系统中 ^{129}I 初始值研究已较为成熟, 并得到广泛认可和应用。陆地环境的认知有限, 但一定程度上暗示了海陆间可能存在差异。由于环境中天然 ^{129}I 和 ^{127}I 来源的不同, 影响地表碘同位素混合过程的环境因素是讨论陆地 ^{129}I 初始值水平的关键, 将为以后确定陆地环境的 ^{129}I 初始值提供思路。

关键词: ^{129}I ; 初始值; 地质定年

Progress on the study of initial value for ^{129}I dating

FAN Yukun^{1,2}, ZHOU Weijian^{1,2}, HOU Xiaolin^{1,2}

1. State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Shaanxi Key Laboratory of Accelerator Mass Spectrometry Technology and Application, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710061, China
2. Xi'an Accelerator Mass Spectrometry Center, Xi'an 710061, China

Abstract: Background, aim, and scope Since ‘Age’ has been playing an important role in the research on geoscience, geological dating is one of the fields that have attracted plenty of attentions and works. However, rare dating methods are available for age range from millions to tens of millions of years and each method has its applicability and limitation. Exploring and establishing a new geochronometer, especially an absolute dating method, is of great significance for geoscience research. Radionuclide iodine-129 has a long half-life (15.7 Ma). This special feature provided a great potential of dating with range of 2 Ma—80 Ma. Since ^{129}I decays exponentially with time, confirming the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio at the preliminary stage of decay is critical to the establishment of ^{129}I dating method. Early researches mainly focused on the initial value in marine system, while few studies on the terrestrial system are available. Interestingly, some recent analytical results coming from experiments on the pre-nuclear ^{129}I level in the terrestrial environment showed difference. Meanwhile, some speculations are evoked by these observations and findings. **Materials and methods** To make a forward step of exploring the initial value of ^{129}I on the entire earth surface and of understanding the possible mechanism of iodine isotopes circulation in

收稿日期: 2017-03-12; 录用日期: 2017-05-14

Received Date: 2017-03-12; **Accepted Date:** 2017-05-14

基金项目: 中国科学院西部博士基金

Foundation Item: Western Light Talent Culture Project of CAS

通信作者: 范煜坤, E-mail: fanyk@ieecas.cn

Corresponding Author: FAN Yukun, E-mail: fanyk@ieecas.cn

引用格式: 范煜坤, 周卫健, 侯小琳, 等. 2017. ^{129}I 年代学初始值研究进展 [J]. 地球环境学报, 8(4): 285–291.

Citation: Fan Y K, Zhou W J, Hou X L. 2017. Progress on the study of initial value for ^{129}I dating [J]. Journal of Earth Environment, 8(4): 285–291.

the environment, we reviewed most of the relevant literatures in the past decades. **Results** ^{129}I initial value started from estimations since 1960s. Experimental results in deep sea sediment gave an initial value to be 1.5×10^{-12} . This value was widely accepted and applied for geological dating with samples formed in marine phase. Investigations on terrestrial environment including analysis of fluvial sediment, lake sediment, lignite, petrified wood and loess samples showed variations of the pre-nuclear level, most of the results being higher than that in the marine system. Illustrations were made for the indetermination and those unreliable results. Our work on the speciation analysis of ^{129}I in loess profile presented the pre-nuclear level of ^{129}I in Chinese loess deposits which is still an order of magnitude higher than the initial value in marine. The initial value in the terrestrial environment is in suspense, but there seems to be possibility of the clue in formation and possible variation of the iodine isotopes in the environment. **Discussion** Iodine can easily reach to isotopic equilibrium in the marine system, the main reservoir on the earth surface. However, it might be difficult for the iodine to transport to the terrestrial environment uniformly because of the different sources of ^{129}I and ^{127}I as well as the distance to the sea. These are all the possible factors that might influence the composition of the isotopes. Based on the knowledge from early studies and some recent observations, authors speculated that the different sources of ^{129}I and ^{127}I , together with the lack of stable iodine induced by the depletion of marine-source iodine during the transportation of air mass into the inner land, might be the main cause of the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ level difference between marine and terrestrial system. **Conclusions** Difference in the initial value of ^{129}I in marine and terrestrial system might exists while it is still obscure in the terrestrial environment. Clue in the isotopic difference seems possible to be found in the work on natural ^{129}I in Chinese loess. **Recommendations and perspectives** Our speculation about the cause of the iodine isotopic difference between marine and terrestrial system remained subjective and arbitrary. The initial value of ^{129}I in the terrestrial environment and the mechanism of the transportation of iodine isotopes on the earth surface need further study.

Key words: ^{129}I ; initial value; geological dating

^{129}I 是碘元素的唯一长寿命放射性核素。自然成因的 ^{129}I 主要产生于上层大气中宇宙射线与氙元素的核反应, 部分来源于地壳中 ^{238}U 的自发裂变以及热中子诱发的 ^{235}U 裂变, 少量来源于核反应 $^{128}\text{Te}(\text{n}, \gamma)^{129}\text{I}$ 与 $^{130}\text{Te}(\text{n}, 2\text{n})^{129}\text{I}$ 。因其具有较长的半衰期 (15.7 Ma), 早在 20 世纪 60 年代 ^{129}I 研究初期, 就有人提出用 ^{129}I 进行地质定年 (Edwards, 1962)。

由衰变公式 (式 1) (韩吟文等, 2003) 可以看出, 确定衰变初期的放射性同位素比值对于定年方法的建立至关重要。因此, 初始值是近几十年来人们探索 ^{129}I 定年方法的主要研究内容。对于 ^{129}I 来说, 初始值是指地表环境中天然碘同位素 ^{129}I 和 ^{127}I 的原子比值 (国际上常用 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 表示环境中 ^{129}I 水平), 即大气氙和宇宙射线的散裂反应和铀裂变反应 (^{238}U 自发裂变和少量 ^{235}U 中子诱发裂变) 生成的 ^{129}I 在地表环境达到同位素平衡的 ^{129}I 水平。早期研究认为, 相比海洋中的碘通过气态形式 (包括有机质分解释放的形式) 向大气中传输的贡献

速率, 大气中宇宙成因 ^{129}I 的生成非常缓慢, 因此大气和海洋中的碘应达到同位素平衡。那么, 整个水圈在核前时期的碘同位素比值则应是一致的 (Moran et al, 1998)。

$$R = R_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (1)$$

式中: R 是经过衰变时间 t 后同位素比值, R_0 是同位素进入封闭体系前的初始比值, λ 是衰变常数。

20 世纪 60 年代, 由于检测方法的限制, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 低于 10^{-10} 的样品都无法测量, 主要通过估算和推测来认识 ^{129}I 初始值。Edwards (1962) 早先估算核前时期海洋中的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 在 10^{-14} 水平; Fabryka-Martin (1984) 通过模型计算认为水圈的初始值应落入 $(3-4) \times 10^{-12}$ 的范围, 并计算出 6.5×10^{-13} (Fabryka-Martin et al, 1985) 是深海环境的水平。直到 20 世纪 80 年代高灵敏度加速器质谱技术的应用, ^{129}I 定年方法的研究才得以实质性开展 (Elmore et al, 1980)。然而, 有关 ^{129}I 初始值的研究工作主要集中在海洋系统中 (包括深层海水、海洋沉积物等), 对于陆地环境的了解

甚少。这限制了 ^{129}I 定年在陆地环境中的应用，并对认知碘同位素在海陆系统中的分布特征带来了困难。本文综述了近几十年来 ^{129}I 初始值研究的进展情况，并探讨了海陆系统之间可能的差异及其影响因素。

1 海洋系统中的 ^{129}I 初始值

基于碘在海洋中的滞留时间(40 ka)远大于海水循环时间(1 ka)这一前提(Fabryka-Martin et al, 1985)，人们普遍认为 ^{129}I 和稳定碘 ^{127}I 在海洋中可均匀混合并达到同位素平衡。20世纪80年代以来Fehn et al (1986)分析了Cape Hatteras大陆坡沉积物中的 ^{129}I ，发现人类活动以前海洋中天然成因 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 为 $(1.1\text{--}1.8)\times 10^{-12}$ (图1)；之后补充分析南北美洲西岸的四个沉积物钻孔将该比值修正至 1.5×10^{-12} (Moran et al, 1998; Fehn et al, 2007)。由于人类核活动向环境中释放了大量的 ^{129}I ，表层沉积物中的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 较深层高1—3个数量级。因此，碘元素在沉积物中的垂向迁移是初始值相关研究中必须考虑的因素之一。同时，由于洋底沉积物的沉积速率极低，年代较老(如十几

个百万年)的深层沉积物中的碘随着有机质的分解以无机态很容易进入较浅层沉积物中，从而使得所观测到的核前天然 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 小于真实值。在上述工作中，学者通过确定四个钻孔中现代人工 ^{129}I 向下迁移的最大深度，并同时确立深层天然 ^{129}I 的端元最大值，最终将 1.5×10^{-12} 定义为海洋系统中天然 ^{129}I 初始值(图1)。该值被广泛接受并成功地应用于海相沉积系统的定年研究，如油田卤水定年、地壳热液以及洋底天然气水合物的运动及来源的研究(Moran et al, 1995; Fehn et al, 2000; Fehn and Snyder, 2005; Tomaru et al, 2007, 2009; Lu et al, 2008, 2011)。后人的研究中，Fan et al (2016)发现我国胶州湾深层沉积物中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 与该初始值水平一致，验证了前人对于海洋系统中碘同位素混合均匀的认识，尽管两个研究区域(分别位于太平洋东西两岸)相距上万公里。另外，珊瑚中 ^{129}I 的研究发现，核前时代生长的珊瑚骨骼中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 也与报道的海洋沉积物中初始值吻合较好(Biddulph et al, 2006; Chang et al, 2010)，说明海洋系统中碘同位素的平衡可能不受环境介质的影响，无分馏发生。

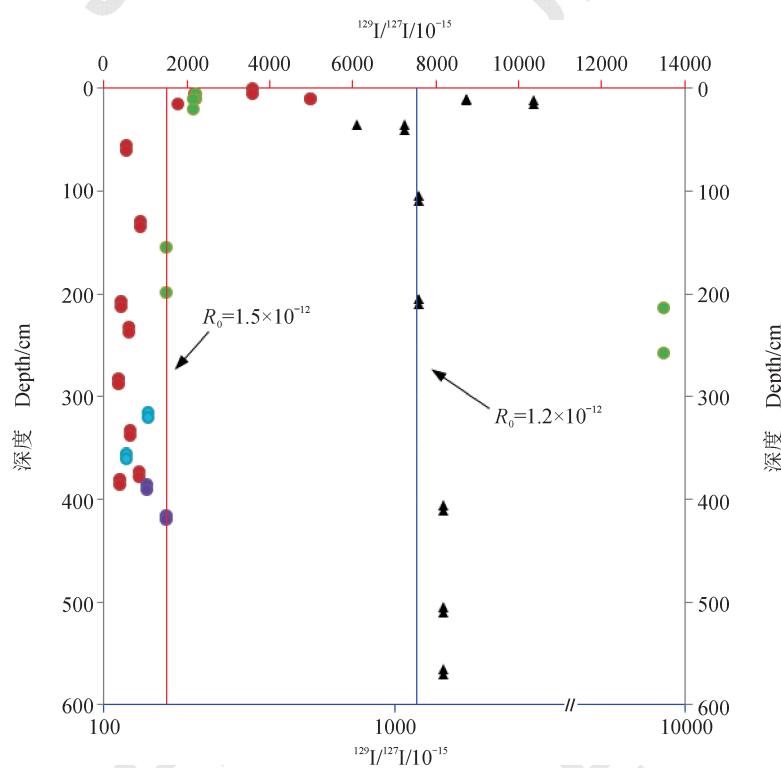


图1 深海沉积物 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 深度序列(数据取自Fehn et al, 1986; Moran et al, 1998)

Fig.1 Depth distribution of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in deep sea sediments (Data adopted from Fehn et al, 1986; Moran et al, 1998)

2 陆地系统中的¹²⁹I初始值

Szidat et al (2000) 报道了俄罗斯核前时期土壤中的¹²⁹I/¹²⁷I为 10^{-12} — 10^{-10} ，美国核前时期动物甲状腺中的¹²⁹I/¹²⁷I为 10^{-12} — 10^{-11} 。

Santos et al (2007) 分析了西班牙 Tinto 河流沉积物中¹²⁹I，发现深层沉积物(62 cm以下)中¹²⁹I含量约为 $10^6 \text{ atoms} \cdot \text{g}^{-1}$ ；假设沉积物中稳定碘含量为 $10 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ ，可得相应的¹²⁹I/¹²⁷I为 2×10^{-11} 。瑞典 Loppesjön 湖沉积物中¹²⁹I/¹²⁷I，其比值的深度分布具有显著的随深度增加而减小的指数特征(Englund et al, 2008)，¹²⁹I水平在深层(21—24 cm，对应1952—1935 a左右)保持基本恒定不变，其同位素比值为 $(4-7) \times 10^{-10}$ 。这两个工作所获得的比值比海洋沉积物中的初始值高1—2个数量级，研究者均将其归因于上层人工¹²⁹I向下迁移所致。

Wallner et al (2007) 分析了形成于第三纪的褐煤，其¹²⁹I/¹²⁷I为 $(0.6-2.1) \times 10^{-11}$ 。由于该样品的形成年龄晚于65 Ma，绝大部分宇宙成因的¹²⁹I应都已衰变至接近甚至小于加速器质谱法的检测限(10^{-14})；同时，由煤矿中的铀含量计算可得，铀裂变贡献的¹²⁹I/¹²⁷I亦小于 10^{-14} 。因此，Wallner等认为所观测到的较高的¹²⁹I水平可能是铀矿中的

¹²⁹I发生迁移或者现代人工成因¹²⁹I污染所致。由于缺乏该煤层形成的沉积环境的信息，无法明确该样品的海陆代表性。

Tania et al (2013) 分析了采于匈牙利硅化木中的¹²⁹I，比值分别为 1.15×10^{-12} 和 0.63×10^{-12} 。若用海洋系统中的初始值进行计算，可得样品年龄分别为8.0 Ma和20.2 Ma，这与样品所处的第三纪沉积层年代(2.6—65 Ma)相吻合。由于这些硅化木是被第三纪古河冲刷埋藏在沉积地层中的树干经交代作用而成，其测定结果代表了陆地环境中的¹²⁹I水平，因此该工作从另一角度验证了海洋系统中的¹²⁹I初始值在该陆相系统中的适用性。

然而，研究发现我国深层黄土(23.5 m和63.5 m)中的¹²⁹I/¹²⁷I约为 2×10^{-11} (Hou et al, 2010)。通过分析洛川和三义庙两个剖面中不同形态¹²⁹I的深度分布(Luo et al, 2013)，发现四种形态的¹²⁹I水平随着深度的增加呈指数迅速降低；两个剖面底部(60 cm和90 cm)难迁移的残余态和氧化物态的¹²⁹I/¹²⁷I与上述深层黄土近似，说明碘在黄土或土壤中的迁移是相对的、缓慢的行为(图2)。由此可见，黄土沉积物中的天然¹²⁹I水平有可能为 10^{-11} 水平，但仍需开展系统的工作方可下定论。

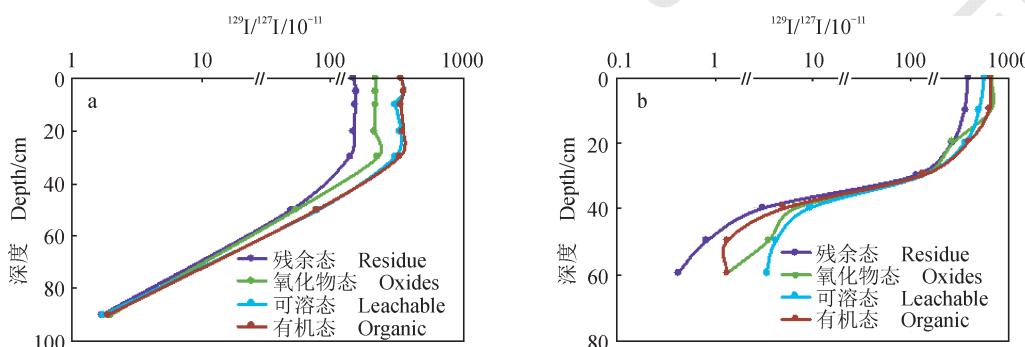


图2 三义庙(a)和洛川(b)黄土剖面不同形态¹²⁹I/¹²⁷I的深度分布(Luo et al, 2013)
Fig.2 Depth distribution of ¹²⁹I/¹²⁷I in different species of iodine in loess profile from Sanyimiao (a) and Luochuan (b) (Luo et al, 2013)

总的来说，目前对于陆地系统中¹²⁹I初始值，还没有形成统一的观点，仍需更为系统性的、深入的研究来获得结论性的认识。

3 ¹²⁹I初始值海陆差异的探讨

海洋系统中的碘混合均匀，使得¹²⁹I定年在海洋系统中具有良好的适用性。对于陆地环境而言，

碘同位素的来源以及是否达到同位素平衡即碘同位素的循环如何，是判断陆地环境中¹²⁹I初始值及定年适用性的关键所在。

海洋系统一直被认为是地表主要的碘库(Edwards, 1969)，其稳定碘(¹²⁷I)含量显著高于陆地环境(表1)。陆地上的大部分碘被认为来自海洋；海水中的碘可通过飞沫(Sea spray)和气态

有机碘(CH_3I)的形式进入大气进行扩散传输(Moran et al, 1998; Muramatsu and Wedepohl, 1998)。对于 ^{129}I 而言, 大气中由氤产生的 ^{129}I , 加上铀裂变生成的 ^{129}I , 共同组成地表环境中天然 ^{129}I 的主要来源。天然生成的 ^{129}I 与海水、海洋沉积物充分混合达到同位素平衡。这在太平洋、大西洋和我国胶州湾沉积物以及太平洋珊瑚的工作中已得到了充分的证明(Fehn et al, 1986; Moran et al, 1998; Biddulph

et al, 2006; Fan et al, 2016)。由于海洋系统中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 很小(10^{-12}), 海洋不断的向陆地输送的稳定碘量的多少, 对于陆地环境中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 则会有明显的影响。来自海洋的碘贡献较高时, 稳定碘含量较高, 宇宙成因以及非海洋直接输送的有限的 ^{129}I 对其 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 的影响较小, 比值更接近于海洋系统的水平 1.5×10^{-12} ; 相反, 海洋贡献较小时, 环境中稳定碘含量也较低, 从而使比值升高。

表1 环境中碘的含量(Hu and Moran, 2010)

Tab.1 Range of iodine concentration in the environment (Hu and Moran, 2010)

样品类型	Sample type	碘含量	Iodine content	样品类型	Sample type	碘含量	Iodine content
海洋沉积物	Marine sediment	20—200 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$		土壤	Soil	1—3 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	
海水	Seawater	45—60 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$		淡水	Fresh water	1—6 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	
海藻	Seaweed	10—6000 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$		陆生植物	Terrestrial plant	<1 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	

早在20世纪60年代, Edwards(1969)就通过估算得出, 天然 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 在地表环境中表现为: 上层大气>陆地>海水>海洋沉积物(表2)。Fabryka-Martin et al(1985)通过建立模型计算认为, 大气、土壤和生物圈中的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 基本一致, 但均略高于海洋。虽然在后来的研究中有人提出, 相比于碘从海洋向大气中逃逸的速率, 宇宙成因 ^{129}I 的生成是一个缓慢的过程(Moran et al, 1998), 但本文作者认为, 逃逸至海洋上空大气中的碘传输至陆地上不同地区的效率可能更为重要, 其中影响此效率的一个十分重要的因素则是与海洋的距离。随着从海洋上空进入内陆气团的持续运动, 碘会通过干湿沉降不断的消耗, 导致到达更为内陆地区的碘量减小。在早期的研究中, 许多前苏联学者均认为内陆土壤中的碘含量相比沿海地区以及海洋中岛屿上的土壤要贫瘠, 并提到土壤中碘的含量具有向内陆方向降低的趋势(Zyrin and Imadi, 1967; Safrazbekyan, 1970; Magomedova et al, 1970; Irinevich et al, 1970); Låg and Steinnes(1976)更是在挪威土壤中直接观测到了这一现象。但同时, 对此观点仍存在过异议: Köhler(1928)认

为土壤中的碘含量与距海洋距离无关; Whitehead(1973)通过分析英国23个土壤样品, 发现没有规律可循的分布。本文作者认为, 由于碘具有较强的挥发性和水溶性, 可以在大气中停留较长时间(15 d, Fabryka-Martin, 1984), 因此, 在讨论土壤中碘含量与海洋距离时, 应在更大的空间尺度上进行讨论。Låg和Köhler的工作中, 采样点距海洋均在100 km以内, 可能不具备统计规律性, 无法表达分布趋势。欧洲的两大核燃料后处理厂Sellafield(英国)和La Hague(法国)向海洋中排放的大量 ^{129}I 随着洋流扩散到欧洲的几个主要的海域(包括北海、波罗的海等), 使相应表层海水中的 ^{129}I 浓度和 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 上升4—6个数量级(陈宁等, 2010)。表层海水中 ^{129}I 经二次挥发进入大气进行传输成为欧洲地区乃至北半球陆地环境中 ^{129}I 的主要来源(Reithmeire et al, 2006; Xing et al, 2015; Fan et al, 2016)。最新研究发现, 土壤中 ^{129}I 浓度和 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 在400 km以内随着与波罗的海距离的增加而降低(Ežerinskis et al, 2016), 说明研究区中来自海洋的碘向陆地传输时受到距海距离的影响明显, 但是否具有普遍性还需要更多数据来验证。

表2 不同环境/介质中自然成因的 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 估计(Edwards, 1969)
Tab.2 The estimated natural $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in different environment/medium (Edwards, 1969)

	平流层 Stratosphere	降水 Precipitation	陆地 Land	海水 Seawater	海洋沉积物 Marine sediment
$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$>>2.2 \times 10^{-12}$	$>2.2 \times 10^{-12}$	$>2.2 \times 10^{-12}$	2.2×10^{-12}	$\leq 2.2 \times 10^{-12}$

此外，环境中碘的含量还与有机质含量有关，由于碘具有较强的亲生物性，它更易于与有机质结合（Englund et al., 2010; Hou et al., 2009）。这也是海陆环境之间的一个明显差异，海洋中有机质含量整体高于陆地。但是，有机质富集碘的过程中是否存在碘同位素的分馏，还未见直接证据。

4 总结

本文从海洋和陆地环境两方面回顾了自然成因¹²⁹I环境水平的研究进展并对影响海陆系统之间¹²⁹I天然水平可能的差异做了推测。早期的研究主要为理论推算；随着加速器质谱技术的发展，科学家在20世纪90年代首次确定了海洋沉积物中的¹²⁹I初始值，并被广泛认可和应用。由于陆地与海洋系统中自然成因的碘元素是否达到同位素平衡一直缺乏深入研究，没有直接的证据予以解释；个别研究发现，碘从地表碘库向陆地上传输时随着距离的变化存在不一致性，这一结论使得更应将海陆系统中的¹²⁹I初始值及年代测定分开对待。因此，¹²⁹I作为定年工具目前主要应用在海洋系统相关的研究工作中。近十年来，一些工作报道了陆地环境自然成因¹²⁹I的水平，但是仍不足以获得确凿的结果。我研究组发现我国黄土中各形态¹²⁹I/¹²⁷I均高于海洋系统，是探索陆地系统中¹²⁹I初始值的一次尝试，为今后相关工作的深入开展提供重要思路和启示。总之，关于陆地环境¹²⁹I的初始值探索以及海陆间¹²⁹I初始值差异及影响机制的研究还需开展大量工作，结合前人已有的认识，才能为陆相沉积系统中¹²⁹I年代学提供准确数据。

参考文献

- 陈 宁, 周卫健, 侯小琳, 等. 2010. 西安加速器质谱中心¹²⁹I 加速质谱分析方法建立及其在我国核环境示踪中的应用 [J]. 地球环境学报, 1(2):105–113. [Chen N, Zhou W J, Hou X L, et al. 2010. Analytical methods for the determination of ¹²⁹I established at the Xi'an Accelerator Mass Spectrometry Center and application of ¹²⁹I as a tool to trace nuclear environmental safety in China [J]. *Journal of Earth Environment*, 1(2): 105–113.]
- 韩吟文, 马振东, 张宏飞, 等. 2003. 地球化学 [M]. 北京: 地质出版社. [Han Y W, Ma Z D, Zhang H F, et al. 2003. Geochemistry [M]. Beijing: Geological Publishing House.]
- Biddulph D L, Beck J W, Burr G S, et al. 2006. Two 60-year records of ¹²⁹I from coral skeletons in the South Pacific Ocean [J]. *Radioactivity in the Environment*, 8: 592–598.
- Chang C, Burr S G, Jull A J T, et al. 2010. Iodine-129 time series records from the Pacific Ocean as recorded in modern corals [C]. San Francisco: American Geophysical Union Fall Meeting.
- Edwards R R. 1962. Iodine-129: Its occurrence in nature and its utility as a tracer [J]. *Science*, 137(3533): 851–853.
- Edwards R R. 1969. Terrestrial occurrence and distribution of ¹²⁹I [R]. Orange: Chapman College.
- Elmore D, Gove H E, Ferraro R, et al. 1980. Determination of ¹²⁹I using tandem accelerator mass-spectrometry [J]. *Nature*, 286(5769): 138–140.
- Englund E, Aldahan A, Hou X, et al. 2010. Speciation of iodine (¹²⁷I and ¹²⁹I) in lake sediments [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268(7/8): 1102–1105.
- Englund E, Aldahan A, Possnert G. 2008. Tracing anthropogenic nuclear activity with ¹²⁹I in lake sediment [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99: 219–229.
- Ežerinskis Ž, Hou X, Druteikienė R, et al. 2016. Distribution and source of ¹²⁹I, ^{239,240}Pu, ¹³⁷Cs in the environment of Lithuania [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 151:166–173.
- Fabryka-Martin J T. 1984. Natural iodine-129 as a ground-water tracer [D]. Tucson: University of Arizona.
- Fabryka-Martin J, Bentley H, Elmore D, et al. 1985. Natural iodine-129 as an environmental tracer [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49(2): 337–347.
- Fan Y, Hou X, Zhou W. 2016. ¹²⁹I record of nuclear activities in marine sediment core from Jiaozhou Bay in China [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, submitted.
- Fehn U, Holdren G R, Elmore D, et al. 1986. Determination of natural and anthropogenic ¹²⁹I in marine-sediments [J]. *Geophysical Research Letters*, 13(2): 137–139.
- Fehn U, Moran J E, Snyder G T, et al. 2007. The initial ¹²⁹I/I ratio and the presence of ‘old’ iodine in continental margins [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 259(1): 496–502.
- Fehn U, Snyder G T. 2005. Residence times and source ages of deep crustal fluids: interpretation of ¹²⁹I and ³⁶Cl results from the KTB-VB drill site, Germany [J]. *Geofluids*, 5(1): 42–51.
- Fehn U, Snyder G, Egeberg P K. 2000. Dating of pore waters with ¹²⁹I: Relevance for the origin of marine gas hydrates [J].

- Science, 289(5488): 2332–2335.
- Hou X, Hansen V, Aldahan A, et al. 2009. A review on speciation of iodine-129 in the environmental and biological samples [J]. *Analytica Chimica Acta*, 632(2): 181–196.
- Hou X, Zhou W, Chen N, et al. 2010. Determination of ultralow level $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in natural samples by separation of microgram carrier free iodine and accelerator mass spectrometry detection [J]. *Analytical Chemistry*, 82(18): 7713–7721.
- Hu Q, Moran J E. 2010. Iodine, encyclopedia of inorganic chemistry [M]. Hoboken: John Wiley & Sons, Ltd.
- Irinevich A, Rabinovich I, Fil'kov V. 1970. Iodine in Moldavian soils [J]. *Pochvovedenie*, 58–68.
- Köhler R. 1928. Studies of the iodine content of soils and the uptake of iodine by plants [J]. *Mitteilungen der Preuss Geologischen Landesanstalt*, 7: 11–29.
- Låg J, Steinnes E. 1976. Regional distribution of halogens in Norwegian forest soils [J]. *Geoderma*, 16: 317–325.
- Lu Z, Tomaru H, Fehn U. 2008. Iodine ages of pore waters at Hydrate Ridge (ODP Leg 204), Cascadia margin: Implications for sources of methane in gas hydrates [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 267(3/4): 654–665.
- Lu Z, Tomaru H, Fehn U. 2011. Comparison of iodine dates from mud volcanoes and gas hydrate occurrences: relevance for the movement of fluids and methane in active margins [J]. *American Journal of Science*, 311(7): 632–650.
- Luo M, Hou X, Zhou W, et al. 2013. Speciation and migration of ^{129}I in soil profiles [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 118: 30–39.
- Magomedova L, Zyrin N, Salmanov A. 1970. Iodine in the soils and rocks of mountainous Dagestan [J]. *Agrokhimiya*, 1: 117–125.
- Moran J E, Fehn U, Hanor J S. 1995. Determination of source ages and migration patterns of brines from the US Gulf Coast basin using ^{129}I [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(24): 5055–5069.
- Moran J E, Fehn U, Teng R T D. 1998. Variations in $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component [J]. *Chemical Geology*, 152(1/2): 193–203.
- Muramatsu Y, Wedepohl K H. 1998. The distribution of iodine in the earth's crust [J]. *Chemical Geology*, 147(3/4): 201–216.
- Reithmeier H, Lazarev V, Nolte E, et al. 2006. Estimate of European ^{129}I releases supported by ^{129}I analysis in an Alpine ice core [J]. *Environmental Science and Technology*, 40(19): 5891–5896.
- Safrazbekyan E. 1970. Iodine level in chestnut soils and chernozems in Armenia [J]. *Biologicheskii Zhurnal Armenii*, 23: 89–93.
- Santos F J, López-Gutiérrez J M, García-León M, et al. 2007. ^{129}I record in a sediment core from Tinto River (Spain) [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 259: 503–507.
- Szidat S, Schmidt A, Handl J, et al. 2000. Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters from Lower Saxony, Germany [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 172: 699–710.
- Tania J, Peter S, Gabriele W, et al. 2013. Investigation of the isotopic ratio $^{129}\text{I}/\text{I}$ in petrified wood [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 120C: 33–38.
- Tomaru H, Lu Z, Fehn U, et al. 2009. Origin of hydrocarbons in the Green Tuff region of Japan: ^{129}I results from oil field brines and hot springs in the Akita and Niigata Basins [J]. *Chemical Geology*, 264(1/2/3/4): 221–231.
- Tomaru H, Lu Z, Snyder G T, et al. 2007. Origin and age of pore waters in an actively venting gas hydrate field near Sado Island, Japan Sea: Interpretation of halogen and ^{129}I distributions [J]. *Chemical Geology*, 236(3/4): 350–366.
- Wallner G, Steier P, Brandl T, et al. 2007. Developments toward the measurement of I-129 in lignite [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 259(1): 714–720.
- Whitehead D. 1973. Studies on iodine in British soils [J]. *Journal of Soil Science*, 24: 260–270.
- Xing S, Hou X, Aldahan A, et al. 2015. Iodine-129 in snow and seawater in the Antarctic: level and source [J]. *Environmental Science and Technology*, 49(11): 6691–6700.
- Zyrin N, Imadi T K. 1967. Iodine in soils of the Russian Plain and Crimea [J]. *Agrokhimiia*, 1: 100–116.