

CENTRUM VOOR AGROBIOLOGISCH ONDERZOEK
Wageningen

FYSIOLOGISCHE ACHTERGRONDEN VAN DIRECTE
BESMETTING VAN GEWASSEN MET ^{131}I EN ^{137}CS ;
LITERATUURONDERZOEK NAAR AANLEIDING VAN
HET REACTORONGELUK IN TSJERNOBYL

J.M. Braber
CABO-verslag nr. 67

april 1987

4/25252

Inhoud:	Pagina:
Samenvatting	5
1. Inleiding	9
2. De fall-out uit Tsjernobyl	15
3. Aërosol	17
.1 Deeltjesgroottespectrum	17
.2 Chemische samenstelling en reacties	19
4. Interceptie door gewas	21
.1 Natte depositie	21
.2 Droge depositie	22
5. Retentie op gewas	25
6. Opname door het blad	29
.1 Gasvormige verbindingen	29
.2 Deeltjes	31
.3 Vloeibare vorm	32
.1 Organische verbindingen	32
.2 Anorganische ionen	34
7. Verdeling over de plant	36
8. Discussie	39
9. Suggesties	43
10. Literatuur	45

Bijlage: 1. De gemeten radionucliden met hun fysische halveringstijden.

SAMENVATTING

Deze literatuurstudie is gericht op de fysiologische achtergronden van de gewascontaminatie door directe besmetting vanuit de lucht met radionucliden naar aanleiding van het reactorongeluk van Tsjernobyl. Door de brand in de reactor zijn de meeste radioactieve nucliden in het milieu gekomen in de vorm van ^{131}I en ^{137}Cs .

Het jodium-131 is een kortlevend nuclide (halveringstijd 8 dagen), maar het levert gevaar op voor de volksgezondheid vanwege de snelheid waarmee het zich in de voedselketen begeeft via de route gras-melk-mens en het onvermijdelijke inademen van de potentieel aanwezige gasvormige producten door mens en dier. In het lichaam accumuleert jodium specifiek in de schildklier (en in de melkklier). Het cesium-137 is gevaarlijk omdat het een halveringstijd heeft van 30 jaar. Dit nuclide blijft dus langdurig in het milieu aanwezig. Omdat het sterk adsorbeert aan klei en organisch materiaal in de grond (humus) spoelt er weinig uit en blijft het in het bovenste grondlaagje geconcentreerd. Vooral oppervlakkig wortelende gewassen, waaronder paddestoelen, zullen het opnemen. Verder wordt de opname via de wortel beïnvloed door de pH van de bodem, de grondsoort en het organische stofgehalte.

Als er radioactieve deeltjes met een diameter kleiner dan 1 micrometer aanwezig zijn bestaat ook de mogelijkheid dat er door inademen besmetting optreedt.

Maatregelen die op korte termijn genomen worden bij calamiteiten als deze, zoals het verbod op het grazen door vee, het schillen en wassen van besmette verse groenten en vruchten van de volle grond, zijn gebaseerd op de gevolgen van vooral directe gewasbesmetting.

We onderscheiden directe en indirecte besmetting van een gewas en de duurzaamheid ervan hangt samen met de retentie van de contaminerende elementen op de planten. De directe besmetting is een gevolg van depositie van radioactieve verbindingen uit de atmosfeer en eventueel opname van de ingevangen stoffen door bovengrondse plantedelen. De indirecte geschiedt door opname via het wortelstelsel uit de grond en door opgewaaide gronddeeltjes.

Depositie op vegetatie vindt plaats in droge vorm (sedimentatie, impactie en diffusie) en in natte vorm (met regen en dauw). Het uitregenen is de meest efficiënte manier om de activiteit uit de lucht te verwijderen. De mate van gewascontaminatie is dan afhankelijk van de bodembedekkingsgraad, planteigenschappen zoals ontwikkelingsstadium en bladstructuur en van meteorologische omstandigheden, waarvan luchtvochtigheid en temperatuur de belangrijkste zijn.

In gras komt alles in de grasmat terecht en bovendien kunnen koeien en schapen ook nog eens door het eten van gecontamineerde gronddeeltjes besmet raken. Om de bijdrage van de droge depositie naar waarde te kunnen schatten is de kwaliteit ervan nader bekeken, die bepalend is voor de verblijftijd (retentie) van een besmettend element op de plant.

Elk element vertoont een eigen opname- en verspreidingsgedrag in en op een plant, waarmee al wordt aangegeven dat het uiteindelijke besmettingspatroon van een gewas bepaald wordt door een complex van factoren.

Het ligt voor de hand dat de manier van contaminatie samenhangt met de fysische vorm waarin de radioactiviteit voorkomt. De fall-out bestond uit een fijnverdeeld aërosol, waarin zelfs zuivere ¹⁰³Ru-deeltjes voorkwamen.

Het jodium was vooral in de eerste dagen na het begin van het ongeluk in gasvormige toestand aanwezig en uit metingen van o.a. de KEMA met drie achter elkaar geschakelde filtertypen blijkt dat 70% in de vorm van vluchtige organische verbindingen voorkwam. De rest was aan deeltjes gebonden en niet vluchtig. Er is geen elementaire jodiumdamp aangetoond. Het cesium was vooral aan deeltjes gebonden aanwezig in vaste vorm.

De deeltjes waren, wat normaal is bij een grafietbrand, zeer fijn verdeeld met een diameter beneden 1 micrometer.

Gassen worden vooral via de huidmondjes opgenomen in de plant. Ook kleine deeltjes kunnen in de huidmondjes binnendringen, waardoor deze verstopt kunnen raken. Met water of detergentia zijn deze deeltjes niet van een plant te verwijderen; wel met verdund zuur of door koken. Het ziet ernaar uit, dat het jodium behalve als methyljodide vooral aan deeltjes gebonden op blad en op vruchten, waarvan de meeste (behalve rijpe tomaten) ook huidmondjes bevatten, terecht is gekomen.

Ook cesium zal, gebonden aan kleine deeltjes, onafwasbaar in de stomata gezeten hebben. Het is bovendien zeer goed in water oplosbaar en gedraagt zich als kalium bij de opname en verspreiding door de plant (en in de grond). Zo kan het als tegenion van organische anionen in het floëem naar de wortels worden getransporteerd, waar het weer met nitraat als tegenion de hele plant door kan. Ook rechtstreeks kan het wel met organische anionen of fotosynthese-produkten naar een naburige "sink" gaan, bv. een afrijpende vrucht.

Samenvattend rijst het beeld dat we in het geval van Tsjernobyl te maken gehad hebben met een contaminatie van vooral ^{137}Cs en ^{131}I aan kleine deeltjes gebonden, die in de huidmondjes terecht zijn gekomen. Daaruit kunnen deze nucliden in het blad zijn opgenomen.

Tegelijkertijd is jodium als methyljodide in de huidmondjes opgenomen of in andere vormen op het blad gekomen, waarna transport het blad in mogelijk is via de cuticula, vooral onder vochtige omstandigheden (dauw, nevel). In de praktijk zal zuiver droge depositie van ^{131}I nauwelijks optreden onder Nederlandse klimaatsomstandigheden, omdat gewas vaak vochtig is, wat de invangst van reactieve of oplosbare vluchtige verbindingen bevordert. Kleine deeltjes op het bladoppervlak kunnen zich door regen herverdelen waardoor ze vaster komen te zitten.

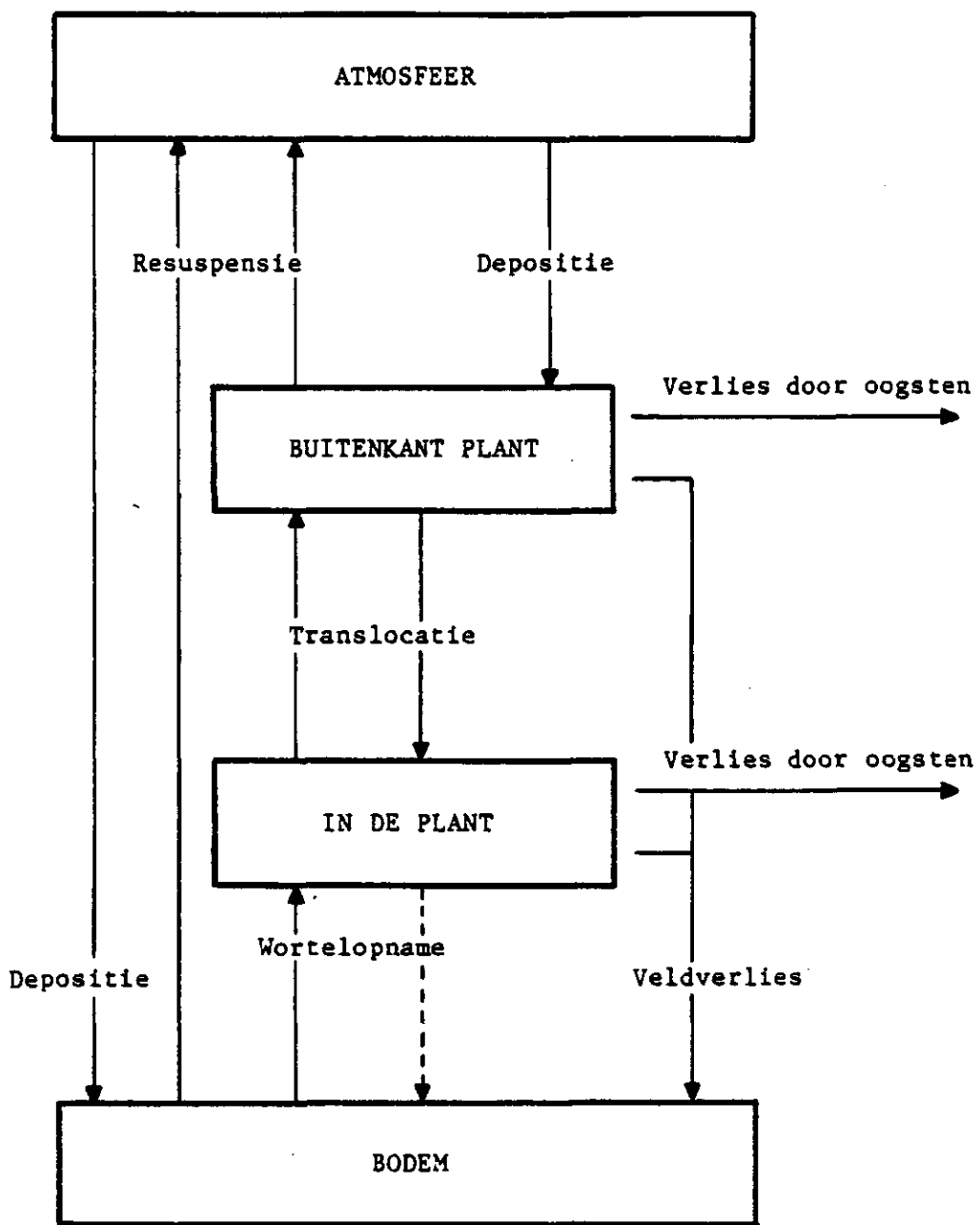
Hierdoor en doordat de nucliden echt in het blad zijn opgenomen of in de huidmondjes aanwezig zijn, zijn ze niet meer af te wassen.

Suggesties voor verder onderzoek; kennis ontbreekt op het gebied van:

- verwijdering van vluchtige radionucliden uit buitenlucht in de kasteelt;
- opname en verspreiding van diverse vormen van jodium in een plant;
- interceptie en retentie van diverse, niet aan deeltjes gebonden vluchtige jodiumverbindingen onder invloed van bladstructuur en luchtvochtigheid;
- depositie, interceptie en retentie van aan kleine deeltjes (diameter kleiner dan 1 micrometer) gebonden radionucliden als functie van deeltjesgrootte en bladstructuur;
- decontaminatie door behandeling met verdund zuur of anderszins van met radioactieve stofdeeltjes besmette voedingsmiddelen.

Voor proeven met cesium is het niet noodzakelijk dat er met een radioactief isotoop wordt gewerkt, omdat het van nature niet in de plant voorkomt. Er moet natuurlijk wel een gevoelige analysemethode beschikbaar zijn.

Met jodiumproeven is het wenselijk om met radioactief jodium te werken omdat er onderscheid moet kunnen worden gemaakt met de van nature reeds aanwezige hoeveelheid. Proeftechnisch leveren experimenten met radionucliden en zeker de vluchtige, problemen op. Onderzoek over gedrag van deeltjes hoeven helemaal niet met radionucliden te worden uitgevoerd, mits er een detectiemethode beschikbaar is.



Schema 1. Overdrachtsmodel van radioactiviteit voor een plant volgens Nielsen (1981).

1. INLEIDING

Als gevolg van de brand in de kernreactor van Tsjernobyl, die begon op 26 april 1986 en waarbij gedurende enkele weken radioactief materiaal in de atmosfeer werd uitgestoten, zal nog jarenlang een lichte verhoging van de radioactieve straling in het milieu meetbaar zijn. De resultaten van de geïntensiverde meetprogramma's van de overheid zijn samengevat in het rapport van de Coördinatie-Commissie voor de Metingen van Radioactiviteit en Xenobiotische Stoffen onder de titel De radioactieve besmetting in Nederland ten gevolge van het Kernreactor ongeval in Tsjernobyl (CCRX, oktober 1986). Dat rapport bevat de feiten over de opgetreden radioactieve besmetting van voedsel, oppervlaktewater en bodem waarnaar in deze literatuurstudie waar nodig verwezen is.

Door middel van voorliggende studie is een analyse gemaakt van de fysiologische achtergronden van de directe radioactieve besmetting van de plant. Besmetting van gewas is het gecombineerde resultaat van depositie, beter te definiëren als de initiële retentie, interceptie of invangst, en de retentie op iets langere termijn. Met retentie wordt bedoeld de fractie aan radioactiviteit die op of in de plant aanwezig blijft.

In de jaren zestig is veel onderzoek gedaan met radionucliden over bladopname van diverse elementen en verbindingen (bladbemesting) en in de jaren zeventig met herbiciden om de beste toepassingsmethode te ontwerpen. Inzicht in aërosol-samenstelling en gedrag ervan is pas de laatste vijftien jaar verkregen. Er is onderzoek gedaan naar de droge depositiesnelheden van diverse radionucliden en naar de retentie op verschillende soorten vegetatie, in veldsituaties en onder gecontroleerde omstandigheden in windtunnels. Ook zijn veldproeven uitgevoerd met radioactief gemerkte kwartsdeeltjes in diverse groottematen om interceptie en retentie te bepalen.

De waargenomen verschijnselen in de voedselprodukten en in de fall-out samenstelling na het reactorongeluk van Tsjernobyl zijn gerelateerd aan literatuurgegevens over de depositie op het gewas en de retentie erin of eraan.

Het blijkt moeilijk in detail te voorspellen welke effecten op korte en lange termijn te verwachten zijn na een reactorongeluk, omdat elk ongeval uniek verloopt en daarmee een eigen fall-outsamenstelling levert en omdat daardoor ook de experimentele gegevens ontbreken. Vanwege de onmogelijkheid om de noodzakelijke omvangrijke proeven te doen moeten de ongelukken zelf zoveel mogelijk als onderzoeksobject worden aangegrepen, waarvoor plannen moeten klaarliggen.

Na de atoombomexplosies rond de jaren zestig is duidelijk geworden dat vooral Cs, Sr en I gevaar opleveren omdat ze zich snel (I) of langdurig (Cs en Sr) in de voedselketen begeven en een groot deel van de fall-out vormen. Bij hoge temperaturen zullen vooral vluchtige nucliden vrijkomen. Na de brand in Tsjernobyl blijken I en Cs de belangrijkste fall-out componenten te zijn. Sr is nauwelijks vrijgekomen.

Radionucliden vertonen overeenkomsten wat betreft het uitzenden van radioactieve straling, maar ze zijn verder fysisch en chemisch totaal verschillend en moeten diensgevolge afzonderlijk worden beschouwd met betrekking tot verspreiding in het agro-ecosysteem. Elk radioactief isotoop heeft zijn eigen specifieke gevarenpatroon op korte en op langere termijn. Omdat de halveringstijd van ^{131}I acht dagen is, zijn hier vooral de korte-termijn effecten belangrijk. Voor ^{137}Cs , met een halveringstijd van 30 jaar, spelen zowel de korte-termijn als de langere-termijneffecten een rol. Voor beschouwingen over het risico van een nuclide voor gezondheid hebben we behalve met de fysische halveringstijd ook te maken met de biologische halveringstijd, die de verdwijning van het radioactieve isotoop betreft ten gevolge van alle denkbare processen behalve het fysisch verval. In de ecologische literatuur is dit $T_w =$ "environmental half-time" (Miller en Hoffman, 1982) of voorheen "weathering half-life" (Witherspoon en Taylor, 1970 en 1971). De effectieve halveringstijd kan daaruit berekend worden met de formule $T_{\text{eff}} = T_f \times T_b / (T_f + T_b)$. Voor de mens gelden voor ^{131}I waarden van $T_b = 120$ d en $T_{\text{eff}} = 7,5$ d en voor ^{137}Cs is $T_b = 110$ d en $T_{\text{eff}} = 109$ d (ICRP, 1979). Met het eten van jodiumtabletten kan men de opname van het radioactieve isotoop verminderen.

Vlak na een reactorongeluk is de besmetting van gewas door directe droge of natte depositie van fall-out-elementen een potentieel gevaar voor de volksgezondheid. Op iets langere termijn komt de indirecte erbij, door opname via het wortelstelsel of door opgewaaide gecontamineerde gronddeeltjes. De directe besmetting kan worden onderscheiden in bloeiwijze-besmetting (vooral voor granen van belang), bladbesmetting (vooral in bladgroenten) en besmetting van de plantbasis (vooral in gras) (Schuffelen, 1961). In gras komt alle depositie op het gewas terecht en kan daar voordat het aan klei of humus wordt gebonden door de stengelbasis of de bovenste wortels worden opgenomen. Radionucliden kunnen ook via bovengrondse plantedelen zoals blad, stengel, vrucht en schors in de plant worden opgenomen (Tukey et al., 1961). Oppervlakkig besmette producten kunnen soms door schillen of wassen schoongemaakt worden en gaan dan niet verloren voor de consumptie. Na het Tsjernobyl-ongeluk zijn er besmette producten gevonden die niet eenvoudig waren schoon te wassen, o.a. spinazie en kersen. Een dergelijke partij moet dan "vernietigd" worden. Getracht is in deze studie een verklaring te vinden voor deze vorm van contaminatie.

Er is in het verleden veel onderzoek gedaan, met wisselende resultaten, naar de opname van radionucliden uit de bodem of via het wortelstelsel. Frissel (ITAL, 1982) stelt, dat resultaten uit potproeven niet simpel overdraagbaar zijn naar veldsituaties. Proeven in lysimeters geven nog de beste resultaten wat dat betreft en worden momenteel nog uitgevoerd, nu bij het RIVM. In deze studie worden alleen de bijdragen beschouwd van directe depositie. Recente literatuursamenvattingen over het gedrag van de belangrijkste radionucliden in het milieu zijn gemaakt door Nielsen (1981) en Komarov (1983). Zie schema 1.

-Cesium

Cesium is chemisch verwant aan Li, Na, K en Rb en gedraagt zich in de plant en in mens en dier als kalium. De ionen zijn zeer mobiel, verdelen zich in de gehele plant en worden bij mens en dier vooral in spierweefsel aangetroffen. Cesium komt van nature nauwelijks op cultuurgronden, in natuurgebieden of in de lucht voor. Het wordt gewonnen uit ertsen. Ook in de grond gedraagt Cs zich als kalium.

Cesium uit fall-out wordt in de grond vastgelegd en is weinig mobiel. Na drie tot vijf jaar is het nog niet dieper doorgedrongen dan 2 cm. Vooral op gronden met kleimineralen van gelaagde silicaten, zoals mica, vermiculieten en illieten, kunnen sporen Cs in het kristalrooster worden ingebouwd. Dit ingebouwde Cs is niet beschikbaar voor opname door de plant. Als er organische stof in de grond zit, worden de adsorptieplaatsen op de kleimineralen afgeschermd, waardoor het Cs beter opneembaar wordt. Deze situatie treffen we aan op permanent grasland (Barber, 1964) en op plaatsen waar paddestoelen plegen te groeien. Ook de inspoeling is iets groter. Op natte, venige en podzolachtige gronden is de opname door de vegetatie tot 10x hoger dan op gronden met mica-achtige kleimineralen. Op gronden die arm zijn aan kalium kan K-bemesting de opname van Cs tegengaan. Cs kan zich via de voedselketen mos-rendier-mens verspreiden (Komarov, 1983).

-Jodium

De fysische vorm waarin de nucliden aanwezig zullen zijn wordt behalve door de omstandigheden tijdens de emissie bepaald door de afstand tot de bron, de weersomstandigheden en de samenstelling van het aanwezige aërosol. Een jodiumwolk kan in 20-30 dagen de hele wereld rondgaan. Jodium kan voorkomen als elementair jodium (I_2 en I), als organisch gebonden jodium (vooral CH_3I), als hypojoodzuur (HOI), als jodaat en perjodaat (IO_3 en IO_4) en in diverse vormen (o.a. jodide) aan deeltjes gebonden.

In de atmosfeer is vaak het grootste deel in de diverse gasvormen aanwezig (Brauer et al., 1974). Over de onderlinge verhouding tussen anorganische en organische vormen zijn weinig gegevens bekend. Door de grote reactiviteit zal vrij jodiumgas snel fotochemisch worden omgezet tot stabielere vormen. Van de organische verbindingen is het methyljodide erg stabiel en wordt ook het meest aangetroffen (Voillequ e, 1979). In de buurt van kerncentrales is onder normale omstandigheden en afhankelijk van de getroffen afvalvoorzieningen vaak slechts een gering percentage van het jodium in deeltjesvorm aanwezig. Bij een drukwaterreactor in de VS was 31% organisch gebonden, 40% HOI, 27% elementair en 2% in deeltjesvorm (Pelletier et al., 1978a). Rond een kokend waterreactor was 40% organisch gebonden, 20% HOI, 28% elementair en 12% in deeltjesvorm (Pelletier et al., 1978b). Bij atoombomexplosies is de samenstelling anders. In 1961 was in fall-out in Engeland van russische atoomproeven 75% van het vrijgekomen jodium aan deeltjes gebonden en de rest in dampvorm aanwezig in twee vormen, waarvan de ene vorm alkyljodide was met overwegend methyljodide (Eggleton et al., 1963). In 1962 (VS) lag de hoeveelheid deeltjesgebonden ¹³¹I tussen 10 en 90%, ook na atoomproeven in Rusland en de VS. Voor 2/3 gedeelte bestond dit uit HI en elementair deeltjesgebonden jodium en voor de rest uit jodaat (HIO₃). De variabiliteit is te verklaren uit de fysische en chemische omzettingen die het jodium onderweg in de atmosfeer kan ondergaan. In de eerste dagen na een emissie ten gevolge van een atoomproef was 50-70% aan deeltjes gebonden, na twee maanden nog maar 30%. In de gasfase neemt de fractie organische gebonden jodium in die tijd toe van 25 tot 75%. Perkins (1963) stelt dat het elementaire jodium dat aanwezig is bij een emissie na verloop van tijd juist aan deeltjes zal worden gebonden. In alle gevallen verdwijnt het elementaire jodiumgas snel. Ook valt te verwachten dat de onverzadigde koolwaterstoffen die in de atmosfeer aanwezig zijn, zoals ethyleen en terpenen ("boslucht"), geïodeerd zullen worden. Deze verbindingen zijn instabiel, dus de samenstelling is zeer dynamisch.

De vorm van de besmetting van het voedselpakket hangt samen met de aard en de verdeling van de radionucliden, de deeltjessamenstelling van de fall-out en de reacties die de produkten in de atmosfeer ondergaan voordat ze neerkomen op het aardoppervlak.

Besmetting van mens en dier treedt op door deeltjes direct op de huid, door inademing en door voedselopname. Gasvormige verbindingen en deeltjes kleiner dan 1 micrometer komen in de longen terecht. Ze kunnen ook weer uitgeademd worden. Bij inademen van anorganisch jodide of CH_3I wordt 70% van het jodium geabsorbeerd in het bloed. Na inademen van Ag^{131}I -deeltjes met een diameter van 0,2-0,3 micrometer, een als zeer oplosbaar beschouwde vorm van jodium, vond snel translocatie plaats (Willard en Bair, 1961). Elementaire jodiumdamp wordt voor meer dan 90% geabsorbeerd. Absorptie in het bloed van oraal opgenomen jodium is snel en volledig na twee uur (Komarov, 1983).

Vooraf voor CH_3I is de besmetting via inademen belangrijker dan via de gras-melk-route, omdat CH_3I slecht adsorbeert aan gewas vanwege een lage oplosbaarheid in water (Atkins et al., 1967).

Uit onderzoek in de jaren zestig is bekend, dat een vanwege de snelheid gevaarlijke route van fall-out door de voedselketen loopt via depositie van ^{131}I op gras, opname door de koe en concentratie in de melk. Gras vangt veel fall-out in vanwege de hoge graad van bodembedekking. Deze melk wordt vervolgens door iedereen, maar vooral door het meest stralingsgevoelige deel van de bevolking, namelijk de jeugd, geconsumeerd. Het jodium stapelt zich op in de schildklier en in de melkklier. Melk kan behalve via gras ook via de lucht die een koe inademt besmet worden. De bijdrage van deze route is niet groot, maar zal groter zijn naarmate de gecontamineerde deeltjes kleiner zijn en de vluchtige radionucliden een groter aandeel in de fall-out hebben. Het literatuuroverzicht van Koster (1974) schenkt geen aandacht aan deze mogelijkheid. Tenslotte kan een koe ook nog een relatief grote hoeveelheid radioactiviteit binnenkrijgen met de gronddeeltjes in het voedsel.

Jodium is een normale component van het milieu. Een goed overzicht van de verdeling en de omzettingen ervan is gegeven door Whitehead (1984).

Gemiddelde normale gehalten van jodium op drogestof-basis zijn: 0,5-10 mg/kg in grond, 0,05-0,5 mg/kg in hogere planten, 45-60 microgram/l in zeewater, 0,5-5,0 microgram/l in regenwater en 10-20 nanogram/ m^3 in de atmosfeer. Jodium komt in de atmosfeer uit zee, voor een aanzienlijk deel in de vorm van CH_3I (Cicerone, 1981). Het zou biologisch geproduceerd worden in getijdenzones. In de atmosfeer zou dit door zonlicht kunnen dissociëren tot elementair jodium, wat door ozon kan worden geoxideerd tot jodaat (Chameides en Davis, 1980).

Stof en aërosoldeeltjes adsorberen gemakkelijk elementair jodium, maar veel minder gemakkelijk anorganische en organische vormen. Gemiddeld is 2 tot 6x zoveel in gasvormige toestand aanwezig als in deeltjesvorm. Uit de grond kan jodium vervluchtigen als I_2 , HI of CH_3I . Dat laatste vooral uit vochtige, arme gronden. Verder wordt jodium in de atmosfeer aangevoerd door opgewaaide gronddeeltjes en door verbranding van fossiele brandstoffen.

In de grond is jodium alom aanwezig als elementair jodium, jodide en jodaat en wordt voortdurend aangevoerd via de lucht uit zee. Hoe verder uit de kust, hoe minder aanwezig is. Humusrijke gronden hebben van nature een hoger jodiumgehalte dan bos-, podzol- of zandgronden. Van de totale bodemvoorraad is slechts weinig wateroplosbaar, maar het wordt wel door planten opgenomen, het best als jodaat. Het is niet duidelijk of jodium een essentieel element is voor de plant. Bij hogere pH gaat er meer in oplossing, bij lagere pH wordt het in kristalroosters van klei vastgelegd (Merzweiler, 1983).

2. DE FALL-OUT UIT TSJERNOBYL

Zodra bij routinemetingen op diverse meetstations in Europa eind april een verhoogde radioactiviteit werd gemeten en bekend werd dat er een reactor in brand stond, zijn de metingen overal geïntensiveerd en uitgebreid. Resultaten zijn op zeer korte termijn gepubliceerd in het tijdschrift Nature.

De kernreactor van Tsjernobyl is een grafiet-gemodereerde, lichtwatergekoelde kokend-waterreactor (RBMK-reactor), van welk type er alleen in de Sovjet-Unie een aantal voorkomen. Bij de brand in de kernreactor is een temperatuur van boven de 2500 graden Celsius bereikt geweest, waardoor behalve de vluchtige radionucliden ^{131}I , ^{137}Cs en ^{132}Te ook relatief hoge gehalten aan de minder vluchtige ^{103}Ru en ^{106}Ru , ^{141}Ce en ^{239}Np in de atmosfeer terecht kwamen. De fall-out wordt geanalyseerd door de deeltjes uit de lucht te filteren met glasvezelfilters en de straling van deze deeltjes daarna te meten en ze te identificeren met gammaspectroscopie; voor de invangst van gasvormige jodiumverbindingen zijn speciale filters nodig. Elementair jodium wordt gevangen in een "absoluut"-filter geïmpregneerd met kool, en overig gasvormig, organisch gebonden jodium tenslotte in een koolpatroon. Zie voor de aangetroffen radionucliden met hun halveringstijden bijlage 1 (CCRX-rapport p. 127).

De fall-out bevatte "hot spots" met een diameter tot 1 micrometer, die uit zuivere nucliden bestonden, met overwegend ^{103}Ru of ^{140}Ba en ^{140}La . Van deze deeltjes werd er in Zweden ca. 1 per m^2 aangetroffen. Verder werden daar 16 verschillende nucliden aangetoond, jodium was voor 75-80% vermoedelijk als gas aanwezig of in elk geval niet in de deeltjesfilters op te vangen. In melk werd 10 Bq/liter van ^{131}I aangetroffen bij koeien die op stal waren gezet en geen gecontamineerd voer kregen. Geconcludeerd wordt dat de besmetting via inademing tot stand is gekomen. De droge depositie in Studsvik eind april was 20000-80000 Bq/ m^2 aan ^{131}I en 500-2000 Bq/ m^2 van ^{137}Cs . Het heeft daar niet geregend in die periode. In de eerste week van mei viel er nog eens 5000-20000 Bq/ m^2 ^{131}I (Devell et al., 1986).

De totale depositie op 1-2 mei in Petten was 37000 Bq/ m^2 , waarvan ^{131}I de voor helft van de straling verantwoordelijk was. Uit de berekende depositiesnelheden, die voor de diverse nucliden overeenkomstig waren, blijkt dat ze in gelijksoortige vorm door de lucht getransporteerd zijn, nl. op een fijn verdeeld aërosol met een deeltjes diameter van enkele tiende micrometer doorsnede. Dat aërosol is normaal in de atmosfeer aanwezig en het zal ook gedeeltelijk bij de grafietbrand zijn ontstaan (Davids en Van Weers, 1986).

Er kon onderscheid worden gemaakt tussen de diverse jodiumvormen. In het begin was 30% van het ^{131}I aan deeltjes gebonden, nauwelijks elementair jodium aanwezig en 70% in organisch gebonden vorm (Dr.ir.J.A.M.M.Kops, N.V.KEMA, Arnhem, pers.med.).

Ook uit de activiteitsmetingen in Zuid-Engeland, waar het droog was en de depositie vooral uit ^{131}I bestond, zat toch op 2 mei al jodium in de melk (met een maximum van 54 Bq/l op 6 mei), zodat geconcludeerd wordt dat er een gasvormige jodiumwolk voorafgaande aan de deeltjeswolk is opgetreden. In Noord-Engeland was de depositie plaatselijk veel hoger, en anders van samenstelling, omdat het daar hevig regende met onweersbuien. Piekconcentraties waren voor ^{131}I 1-10 Bq/m³ lucht en 10-10000 Bq/liter regenwater, idem voor ^{132}Te - ^{132}I en voor ^{137}Cs 0,5-5 Bq/m³ lucht en 20-2000 Bq/liter regenwater (Fry et al., 1986; Smith en Clark, 1986).

In Parijs is de radioactieve wolk op 29 april aangekomen, waarin 20 nucliden zijn geïdentificeerd, met vooral jodium, tellurium en cesium. De stralingspiek op 1-2 mei viel samen met een piek in atmosferisch stofgehalte van 0,11 mg/m³, die na regen en storm op 3 mei was gedaald tot 0,02 mg/m³. Er was een depositie op de grond voor ^{137}Cs van 74-1500 Bq/m² (Thomas en Martin, 1986).

In Japan is de maximum activiteit gemeten tussen 5 en 10 mei met een niveau dat op 1/50 van dat in Studsvik lag en vooral ^{131}I betrof. De maximum depositie aan ^{131}I was op Honshu (2220 Bq/m²). De verdeling van de jodiumactiviteit over de aërosoldeeltjes is bepaald en bleek een piek te hebben bij deeltjes van 0,43 micrometer. Meer dan de helft zat op kleinere deeltjes. Gedurende de eerste acht of negen dagen na het vrijkomen was 65-70% van het jodium in gasvormige toestand aanwezig en ging daarna over in deeltjesvorm. In regenwater was jodium voor 80% aanwezig als jodide en voor de rest als jodaat (Ayoama et al., 1986).

In Noord-Griekenland arriveerde de fall-outwolk op 1-2 mei met de piekactiviteit op 5 mei. Geïdentificeerd werden 14 nucliden en er bleven zes onbekende pieken over. De onderlinge verhouding tussen de pieken bleef gelijk tussen 1-10 mei. Dit is te verklaren uit het voortduren van de brand. Er kon geen Sr worden aangetoond. De grootste bijdragen werden geleverd door ^{103}Ru , ^{132}Te en I- en Cs-isotopen (Alexandropoulos et al., 1986).

Uit al deze metingen blijkt dat er een gasvormige jodiumwolk is geweest voorafgaande aan een wolk met deeltjes kleiner dan 1 micrometer, die vooral cesium en jodium bevatten. Jodium zat vooral op deeltjes met een diameter van 0,43 micrometer of minder. Plaatselijk kunnen variaties opgetreden zijn in de verdeling van het jodium.

3. AEROSOL

Om na te kunnen gaan hoe de fall-outprodukten van het Tsjernobyl-ongeluk zich hebben verspreid over het gewas moeten we ons eerst een voorstelling maken van de samenstelling van de atmosfeer en de processen die zich daarin afspelen.

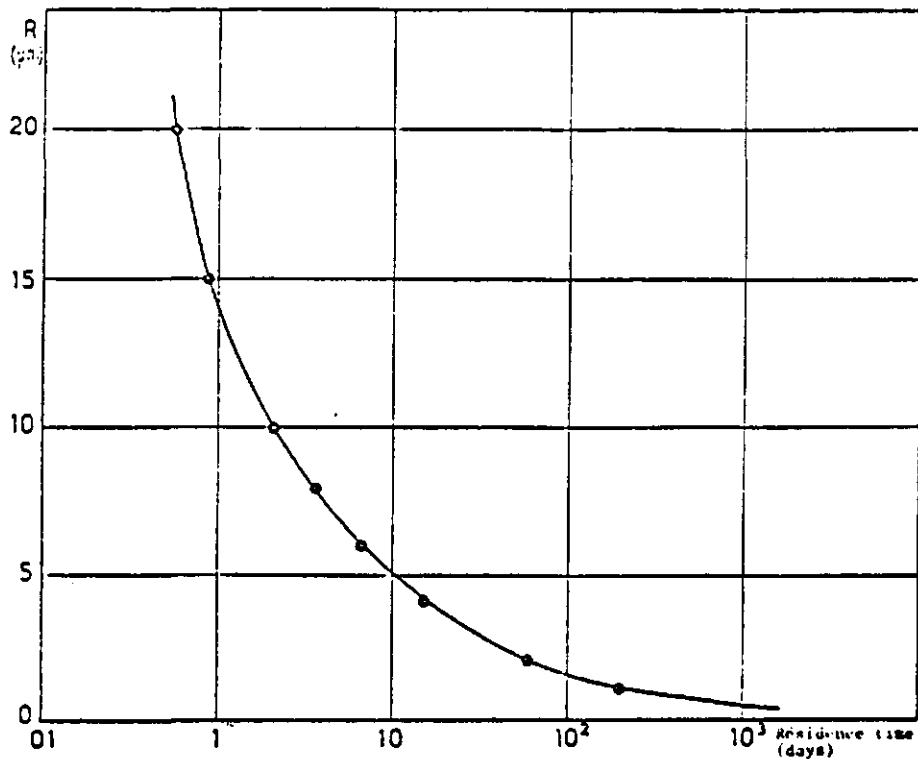
3.1 Deeltjesgroottespectrum

In de ons omringende lucht (troposfeer) bevinden zich naast waterdamp (1-4%) ook gasvormige verbindingen en deeltjes die erin gekomen zijn ten gevolge van natuurverschijnselen of menselijk handelen. Dit systeem als geheel is een aërosol.

Een normaal deeltjesgehalte in de stad is 50-500 microgram per m³ lucht en op het platteland een factor 10 lager. De deeltjes kunnen vast of vloeibaar zijn en de grootte is in dit verband gedefinieerd tussen die van een enkel molecuul (diameter 0,0002 micrometer) en 0,5 mm, de diametergrens waarboven deeltjes snel uitzakken ten gevolge van de zwaartekracht. Ze zijn zeer heterogeen in eigenschappen.

De vervuiling van de atmosfeer is een dynamisch proces. Stoffen, die in de atmosfeer terecht komen zullen na verloop van tijd weer op het aardoppervlak terugkomen. Er vindt een voortdurende aanvoer van primaire deeltjes plaats (emissie en nucleatie), omzetting tot secundaire (coagulatie, chemische reacties) en tenslotte afvoer door dispersie en uitregenen. De verblijftijd en daarmee de mogelijke afstand waarover de verbinding getransporteerd kan worden, is afhankelijk van de vorm waarin die erin kwam, van de luchtbeweging in de atmosfeer, van de deeltjesgrootte (figuur 1) en van de eigenschappen van de stof.

De meeste deeltjes en gassen in de atmosfeer zijn afkomstig uit natuurlijke bronnen, zoals de bodem (gronddeeltjes), vulkanische activiteit (zwavelverbindingen, zware metalen en fluor), van biologische aard (pollen, schimmels en sporen), rottingsprocessen (H₂S), bosbranden en oceanen en zeeën (zoutdeeltjes, vooral sulfaat). Plaatselijk en tijdelijk kunnen antropogene bijdragen belangrijker kan zijn, denk bijvoorbeeld aan (bio-)industrie, verkeer en huisverwarming in een stedelijke omgeving, of kernproeven en -ongelukken. Antropogene bronnen leveren SO₂, NO₂, NH₃, CO₂, HF en fluoride, pesticiden, metalen en metaalverbindingen, aldehyden en koolwaterstoffen, radionucliden en deeltjes (Weise, 1985).



Figuur 1. Verblijftijd van deeltjes in het aërosol als functie van de grootte. Uit: Vié le Sage et al., 1985.

De opname van deeltjes door mens, dier en plant wordt overwegend bepaald door de grootte ervan. Deeltjes met een diameter kleiner dan ongeveer 1 micrometer kunnen bij inademen in de longen terecht komen en zijn daardoor een regelrecht gevaar voor de volksgezondheid. Ook de mogelijkheid van binnendringen in de huidmondjes van planten hangt samen met de deeltjesgrootte. Daarom volgt nu een beschouwing over het deeltjesgrootte spectrum bij verschillende bronnen van luchtverontreiniging.

De meeste secundaire deeltjes in een aërosol hebben een diameter van 0,01 tot 1 micrometer. Fotochemische reacties leiden tot deeltjes kleiner dan 0,05 micrometer, en bij coagulatie en condensatie ontstaan vooral deeltjes van 0,05 tot 1 micrometer. Deeltjes met een diameter beneden 1 micrometer ontstaan ook bij hoog-energetische processen, zoals in verbrandingsinstallaties en smelterijen. In de fractie van 1 tot 10 micrometer vinden we vooral gronddeeltjes, processtof, industriële verbrandingsprodukten en zeezout. Deeltjes die groter zijn dan 10 micrometer zijn meestal ontstaan bij mechanische processen, zoals winderosie, malen of spuiten.

Het groottespectrum van deeltjes in een aërosol vertoont meestal een normale spreiding, maar soms wordt een bi- of trimodale verdeling aangetroffen. Het spectrum in een bepaalde omgeving hangt samen met de afzonderlijke spectra van de bronnen. In een stedelijke omgeving zullen 's winters ten gevolge van verkeer en huisverwarming vooral de kleinere deeltjes vertegenwoordigd zijn (Smith en Staskawicz, 1977).

Uit onderzoek naar het deeltjesgroottespectrum en de verdeling van de nucliden daarover na een gesimuleerd ongeluk met een kernreactor met UO₂, zirconium-alloy en staal, waarbij de kern smolt (2500 graden Celsius), bleek dat de deeltjesrange lag tussen 0,06-3 micrometer en multimodaal was. De relatief vluchtige elementen zaten vooral op de kleine deeltjes, de minder vluchtige op de grote (Albrecht en Wild, 1981).

3.2 Chemische samenstelling en reacties

De chemische samenstelling van een aërosol wordt bepaald door de activiteiten die hebben bijgedragen tot de vorming ervan en is daarom karakteristiek voor de emissie ter plaatse. Hieruit volgt onder andere dat er een seizoensvariatie zal zijn.

Reacties die in de gasfase in een aërosol op kunnen treden zijn bv. radicaal reacties met zwavelverbindingen (Becker, 1985) en smogvorming door fotochemische reactie van lucht, stikstofoxiden en onvolledig verbrande koolwaterstoffen uit uitlaatgassen.

Er zijn meer dan 100 reacties bekend die in gasfase verlopen in de troposfeer. Reacties tussen gassen en aërosoldeeltjes zijn bv. NH₃ met zwavelzuurdruppeltjes, salpeterzuurdamp met zeezoutdeeltjes en ozon met organische deeltjes (Cadle, 1972; Thrush, 1984).

Bij een gegeven deeltjesgroottespectrum hoeft de verdeling van de massa van luchtverontreinigende elementen niet evenredig daarmee te zijn. Bij een aërosol uit een stadsverwarmingsinstallatie met een bimodale deeltjesspreiding (range 0,43-20 micrometer, pieken bij 0,54 en 5,6) bleek dat K, S en in mindere mate Ni en Mn een voorkeur hadden om op het oppervlak van de kleinere deeltjes te gaan zitten, terwijl er gemiddeld toch meer massa stof op de grotere deeltjes aanwezig was (Singh, 1978). De toegenomen emissie van zwavelverbindingen in de atmosfeer heeft een verzurende invloed op het milieu, omdat die fotochemisch tot SO₂ worden omgezet en tenslotte tot zwavelzuur, dat met NH₃ een aërosol van ammoniumsulfaatdeeltjes vormt (diameter van 0,1-1 micrometer).

Zowel de droge als de natte depositie werkt verzurend. De chemische samenstelling van de depositie is seizoensgebonden; 's winters is er meer neerslag, maar 's zomers is de regen zuurder (Vié le Sage et al., 1985). De normale pH van regenwater in evenwicht met CO_2 in de atmosfeer is 5,6. Bij een pH-waarde beneden 4,7 treedt schade op aan de plantegroei (Ryaboshapko, 1986). In grote delen van Europa is de gemiddelde pH van de regen al 3,0, met uitschieters van 2,4 (Lendzian en Unsworth, 1983).

Uit het voorgaande wordt duidelijk dat het voor het voorspellen of verklaren van het gedrag van fall-out van belang is te weten in welke fysisch-chemische vorm de radionucliden aanwezig zijn in het aërosol en hoe de verdeling over de deeltjes is.

4. INTERCEPTIE DOOR GEWAS

4.1 Natte depositie

De stoffen die in gasvorm of in de vorm van vloeibare of vaste deeltjes in de atmosfeer aanwezig zijn kunnen op verschillende manieren op de grond of op de daarop aanwezige vegetatie terecht komen. De meest efficiënte manier van luchtzuivering is door een regenbui, dus door natte depositie. Dat bleek ook weer uit recente metingen in Frankrijk en in Engeland. Bij een vochtige lucht of een bui gaat de depositie in versneld tempo omdat de deeltjes zelf condensatiekernen (aitkenkernen) vormen of uit de lucht worden gewassen. De uitwas-efficiëntie door regen is het grootst voor deeltjes van 20-30 micrometer. Deeltjes met een diameter kleiner dan 5 micron worden niet gemakkelijk onderschept door regendruppels. Voor jodium gaat uitregenen volgens een "in-cloud" mechanisme (het jodium zit in de regenwolk) nog beter dan volgens een "wash-out" mechanisme, waarbij het jodium zich onder de wolk bevindt (Smith en Clark, 1986). Het effect op de besmetting van het gewas zal groter zijn naarmate de bodembedekkingsgraad hoger is, zoals bij gras en spinazie. De activiteit spoelt voor een deel meteen weer van de vegetatie af. Berekeningen over de situatie in 1961 wijzen uit dat door natte depositie 50% van de gevallen hoeveelheid jodium op gras achterblijft (Komarov, 1983). Bij natte depositie worden vooral de gasvormige elementaire en deeltjesgebonden vormen van jodium uit de lucht verwijderd en in veel mindere mate (1/100) het methyljodide. Dit is een gevolg van de grote oplosbaarheid van elementair jodium en de grote reactiviteit in water bij aanwezigheid van sporen jodide en oxidatiemiddelen als zwaveldioxide. Methyljodide lost wel op maar is stabiel in het waterig milieu (Nielsen, 1981). In regenwater komt het jodium voor 45% als jodaat en voor 55% als jodide voor (Whitehead, 1984). Bij een relatieve luchtvochtigheid van meer dan 80% zou men ook van natte depositie kunnen spreken. Uit onderzoek van opname van elementair jodium door boneblad bleek dat onder deze omstandigheden opname door de cuticula belangrijker is dan opname door de stomata. Een groot deel is afwasbaar, dus zit waarschijnlijk opgelost in het vocht op het blad (Garland en Cox, 1984). Een depositievorm die tussen natte en droge in ligt, is oplossen van verbindingen uit de lucht in dauw of guttatedruppeltjes op de plant of door dauwval. Voor HF wordt dit vermeld door Less et al. (1975). Dauwvorming treedt vooral op bij heldere lucht, hoge luchtvochtigheid en zwakke wind (Slatyer en McIlroy, 1961). De condensatie komt uit de lucht en van de grond en kan duren van zonsondergang tot zonsopkomst. De gevormde dauw kan dan nog uren op het blad aanwezig blijven.

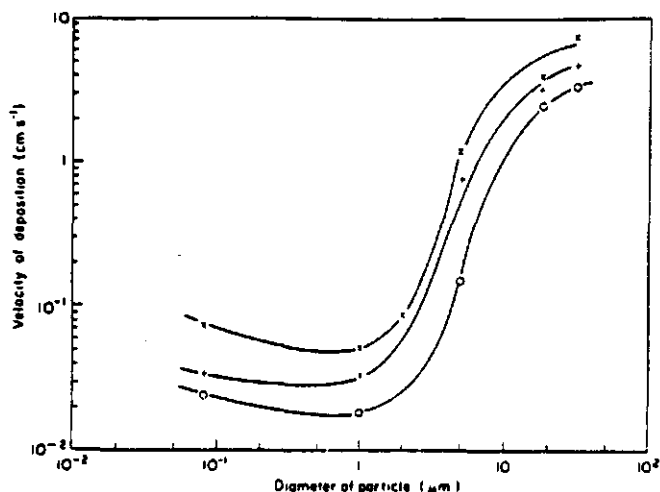
De maximum hoeveelheid neerslag uit dauw is 0,5 mm per nacht, met een snelheid van 0,07-0,15 mm per uur. Depositiepatronen van Tsjernobyl fall-out in Polen zouden kunnen worden verklaard uit dit type neerslag (Rich, 1986). De interceptiefactor van elementair jodium op gras is op vochtig blad meer dan tweemaal zo hoog als op droog blad (Heinemann et al., 1976; Heinemann en Vogt, 1980; Nielsen, 1981). Dit zal dus ongeveer de invloed van dauw op de interceptie zijn. Proeven over de invloed van kunstmatige dauw op gewasbesmetting door fall-out zijn omstreeks 1970 uitgevoerd aan de Universiteit van Californie (Anonymous, Samenvatting van Rapporten van Berkeley, 1971-1973).

4.2 Droge depositie

Zolang het niet regent, sneeuwt of hagelt hebben we te maken met droge depositie. Grote deeltjes volgen een andere route dan kleine deeltjes en zullen over veel kortere afstand van de bron worden getransporteerd. Het mechanisme waarmee droge depositie plaatsvindt hangt samen met de deeltjesaard en -grootte. Deeltjes van 10-100 micrometer zakken vrij snel uit; die van 1-10 micrometer zweven en kunnen grote afstanden afleggen. Er treedt sedimentatie op onder invloed van de zwaartekracht. Voor bv. pollen en sporen (met een diameter van 30-40 micrometer) is de sedimentatiesnelheid 2 cm/s, wat weinig is t.o.v. de windsnelheid, zodat ze met de luchtstroom meegevoerd worden (tabel 1 en figuur 2).

Tabel 1. Deeltjes in de atmosfeer. Uit: Chamberlain en Little, 1981.

Deeltjes	Diameter (micrometer)	Belangrijkste depositievorm (anders dan met regen)
Grond en stof	10 tot 100	Sedimentatie
Sporen en pollen	5 tot 50	Sedimentatie, impactie
Vliegas	1 tot 20	Sedimentatie, impactie
Bacterien	1 tot 10	Onduidelijk
Zeezoutkernen	0,5 tot 5	Impactie, sedimentatie
Ammoniumsulfaat	0,1 tot 1	Onduidelijk
Lood van verkeer	0,04 tot 1	Brownse beweging
Rook van diesel- en huisbrandolie	0,01 tot 1	Brownse beweging



Figuur 2. Depositie van deeltjes op gras in een windtunnel experiment. Windsnelheden van 36-140 cm/s. Uit: Nielsen, 1981.

Vegetatie fungeert als deeltjesfilter en een bos of stadsgroen kan op die manier een luchtzuiverende werking hebben (Hoefken en Gravenhorst, 1981; Fortmann en Johnson, 1981). De principes die hieraan ten grondslag liggen zijn impactie voor de middelgrote deeltjes en Brownse beweging voor de deeltjes kleiner dan 1 micrometer. Impactie treedt op als een luchtstroom (snelheid boven 1 m/s) een klein obstakel tegenkomt (kleiner dan 1 cm) en uitwijkt, terwijl het deeltje (groter dan 10 micrometer) door de traagheid van zijn massa nog rechtdoor wil gaan. Des te retentiever het obstakel is, dus nat, kleverig of harig, des te groter de kans op impactie. Deeltjes van 1-5 micrometer worden vooral onderschept door bladhaartjes. De kleinste deeltjes diffunderen naar het plantoppervlak toe als een gas en blijven daarop achter. Dit type depositie is meestal zeer hecht. De depositiesnelheden van deze kleine deeltjes zijn lager dan van pollen en sporen en ook dan van gassen. Ook de aard van het plantoppervlak en de kleverigheid van het deeltje bepalen mede de retentie. Bij bomen wordt 60-80% van het totaal aan ingevangen deeltjes op het blad aangetroffen (Chamberlain en Little, 1981).

Een overzicht van literatuur over de vangst van radioactieve deeltjes, sporenelementen, pollen, sporen (2-30 micrometer) zout, stof en andere deeltjes door planten wordt gegeven door Smith en Staskawicz (1977). De deeltjescontaminatie op bomen treedt vooral op aan de centrale bladeren, op het midden van het blad en aan de bovenkant, meer op een glad bladoppervlak dan op een harig voor deeltjes waarvan de meeste een diameter in de range van 5-50 micrometer hadden. Submicrondeeltjes zaten vooral op de bladharen (trichomen). Soms waren de stomata aan de onderkant van het blad geblokkeerd. Interceptie en retentie zijn in dat overzicht niet te onderscheiden.

Met proeven onder gecontroleerde omstandigheden (windtunnels) zijn modellen ontwikkeld en getoetst voor berekening van de droge depositie van deeltjes en gassen. Hierbij is gebleken dat de droge depositiesnelheden, die hiervoor nodig zijn, niet voldoende bekend zijn. Voor jodiumgas bv. zijn in de literatuur waarden vermeld uiteenlopend van 0,02-26 cm/s (20 referenties), een factor 1000 verschil tussen de hoogste en de laagste. Dit getal, $V_g(\text{totaal})$, is eigenlijk een factor, waarmee de totale depositie op een m^2 grasland berekend kan worden door vermenigvuldiging met de activiteit in de lucht. Verwarring is ontstaan doordat experimenteel de $V_g(\text{vegetatie})$ voor jodiumgas is bepaald die alleen op de depositie op het gewas betrekking had, en die als $V_g(\text{totaal})$ is gebruikt. Voor berekeningen van gewasbesmetting zijn genormaliseerde depositiesnelheden nodig, die betrekking hebben op drooggewicht per m^2 (Hoffman, 1977). Whitehead (1984) geeft een depositiesnelheid van 1 cm/s voor I_2 , 0,01 cm/s voor CH_3I . De waarde voor HOI ligt daartussenin (Voillequé en Keller, 1981). Voor het aan deeltjesgebonden jodium geeft hij depositiesnelheden van 0,01-5 cm/s, afhankelijk van de grootte. Voor de droge depositie van gassen zijn belangrijke factoren de oplosbaarheid in water, het optreden van reacties in het waterig milieu en de concentratie in de gasfase voorafgaand aan de depositie (Sehmel, 1980). Uit de proeven onder gecontroleerde omstandigheden kwam ook naar voren dat de eerste hindernis voor droge depositie van gas of van deeltjes het luchtlaagje rond het bladoppervlak is. De dikte ervan hangt af van de structuur en de vorm van het blad en van de luchtbeweging. De weerstand hiervan werd oorspronkelijk onderschat (Lendzian en Unsworth, 1983). De depositie van deeltjes van 7 micrometer doorsnede (geen impactie) kan op ruwe bladoppervlakken (zonnebloem) 10x zo groot zijn als op gladde (tulp) (Wedding et al., 1975).

Uit het voorgaande blijkt, dat er verschil in interceptie zal optreden bij droge of natte depositie en dat luchtvochtigheid en dauw van invloed zijn. Deeltjes slaan het snelst neer door natte depositie. Radionucliden in gasvorm worden sneller uit de atmosfeer verwijderd naarmate de reactiviteit of de oplosbaarheid in waterig milieu hoger is. De depositiesnelheid van deeltjes onder droge omstandigheden hangt samen met de deeltjesgrootte. Tenslotte zijn de bodembedekkingsgraad van de beschouwde vegetatie en de bladstructuur doorslaggevende factoren bij invangst van radionucliden.

5. RETENTIE OP GEWAS

Over de verblijftijd van verbindingen die door depositie op een plant zijn gekomen, die tot uitdrukking komt in de retentiefactor, is ook onderzoek verricht. Bij rekenmodellen voor de radioactieve contaminatie van gewas onder omstandigheden van continue depositie gebruikt men de retentiehalveringstijd. Voor gras zijn deze rekenmethoden bruikbaar, voor graan en bladgroenten (koolsoorten, spruitjes en bloemkool) nog niet. Dat is een gevolg van verschillen in plantdichtheid. Cs en Sr bleven lang op het blad aanwezig, omdat ze worden opgenomen. Pu spoelt er snel weer af, waarschijnlijk omdat de Pu-oxiden moeilijk in water oplossen en niet opgenomen worden (Simmonds en Linsley, 1982; Simmonds, 1983).

Een dergelijk model is ook gebruikt voor de berekening van de contaminatie in de buurt van kerncentrales. De besmetting wordt berekend uit de bijdragen van opgewaaide gronddeeltjes, depositie van bronnen op grote afstand en depositie van de plaatselijke bron. De bijdrage van contaminatie door de lucht is het grootst op korte afstand van een reactor (Makhon'ko en Andrievskii, 1984).

Voor de voorspelling van gehalten van ^{137}Cs en ^{90}Sr in melk is aan de hand van 30 jaar metingen in Engeland een bruikbaar rekenmodel ontwikkeld, waarbij de depositiesnelheden worden ingevoerd en de radionuclidensamenstelling (Nair et al., 1983).

Voor zout en mineralendeeltjes is de retentie op gladde bladeren groter dan op harige (Smith en Staskawicz, 1977). De retentie van deeltjes (1-32 micrometer) in een industriegebied op diverse gewassen (gras, gerst en mais) gedurende het groeiseizoen is bestudeerd door Brabec et al. (1981). In een horizontale gewasdoorsnede is er een vrij homogene deeltjesdepositie op het blad. De grotere waaien er gemakkelijk weer af. Ten gevolge van regen was er een aanzienlijke herverdeling van het stof. Het water blijft in kuiltjes op het blad staan waardoor de verbindingen de gelegenheid krijgen om te sedimenteren en overgaan in een stabiel neerslag, dat bestand is tegen droge en natte verwijdering. De deeltjesconcentratie op het gewas moet worden gecorrigeerd voor verdunning door groei. Voor gras is die correctie het kleinst, omdat dat het langzaamst groeit. Bovendien treedt in gras weinig verlies op door bladafval, omdat dat in de zode aanwezig blijft. Door de hoge bodembedekkingsgraad is de retentie in de grasmat dus al met al zeer hoog. Door dit proces van herverdeling bij regen is er in droge perioden een groter verlies aan deeltjes van het blad dan in natte.

De afvoer van deeltjes van het bladoppervlak in droge perioden kan grotendeels worden verklaard uit afval van deeltjes van de waslaag, die zich in jong, groeiend blad steeds vernieuwt. Dit werd aangetoond met ^{89}Sr in kool, aardappel en gras. De radioactiviteit was aanwezig op deeltjes kleiner dan 4 micrometer, de grootte van de wasrestanten.

Als het blad is uitgegroeid vermindert de vernieuwing en de afval gaat door (Moorby en Squire, 1963).

De afwasbaarheid van elementen en deeltjes van een bladoppervlak is bestudeerd, evenals de mogelijkheid van uitlogen van het blad door bv. zure oplossingen. Dergelijke proeven zijn gedaan om na te gaan wat er nu eigenlijk in het blad thuishoort en wat er als verontreiniging op zit.

Bij bladeren (of naalden) van japanse ceder, witte eik en rode spar die gewassen werden met water, 2% detergens of 0,2 N zoutzuur (2 minuten) was het resultaat afhankelijk van de bladsoort. Met zuur werden zowel de meeste elementen (er werden er 16 geanalyseerd) als deeltjes afgewassen. Kalium werd niet afgewassen. Met zuur worden ook de huidmondjesholtes afgewassen (Salki en Maeda, 1982).

Uit een studie over de retentie van de zware metalen zink, lood en cadmium op boombladeren van *Ulmus glabra*, *Crataegus monogyna*, *Salix alba* en *Quercus robur* van Little (1973) bleek dat een groot gedeelte van de contaminatie met verdund zuur kon worden afgewassen. De verontreiniging was op het blad aanwezig, niet erin en er was een groot verschil in invangstgedrag tussen de soorten.

De afwasbaarheid van ^{131}I van groenten (sla, tomaten, bonen, kool en bleekselderie) werd bepaald na besproeien met een NaI-oplossing door Thompson en Howe (1973). De hoeveelheid activiteit die op de diverse produkten terecht was gekomen werd bepaald en de afwasbaarheid direct na de behandeling en een tijd later. Op sla kwam het meest terecht vanwege het ruwe bladoppervlak. In bonen was de afwasbaarheid bij oogst na een tijdje minder goed dan bij onmiddellijke oogst. Van de contaminatie kon 75-90% worden door wassen worden verwijderd. Na koken werd nog eens 10% verwijderd, behalve bij tomaten (Hungate et al., 1963).

Leininger et al. (1958) kwamen bij decontaminatieproeven na radioactieve besmetting met fall-out van kernproeven tot de conclusie dat graan opgeschoond kan door het in fracties te scheiden. Wassen met water had nauwelijks effect op decontaminatie van tarwe, gedroogd fruit, sojabonen, maiskorrels, katoenzaad en aardappelen.

Chamberlain (1970) geeft een overzicht van de interceptie en retentie van radioactieve aërosols door vegetatie en maakt berekeningen, waarbij onderscheid wordt gemaakt tussen acute en chronische blootstelling. Uit proeven met een emissie van deeltjesgebonden jodium (30 micrometer) en dampvormig elementair jodium op grasland leidt hij af dat de fysische vorm van het nuclide niet zo belangrijk is voor de initiële retentie bij een acute immissie. Het bladtype zou dan meer van belang kunnen zijn.

Verlies aan activiteit in gras in het veld kan een gevolg zijn van translocatie naar de wortels (Cs), vervluchtiging (I), uitspoelen door de regen, verdwijnen van deeltjesgebonden activiteit door wind, regen en andere oorzaken, afsterven of verweren van bladeren of van het bladoppervlak. Vervluchtiging van jodium treedt in gematigde klimaten niet op, wel in warme (Martin, 1964). Voor verlies aan jodiumactiviteit uit gras is translocatie van geen belang evenmin als regenval. Deeltjes kleiner dan 1 micrometer adsorberen sterk aan het bladoppervlak. Verlies aan was van het bladoppervlak levert zowel onder droge als natte omstandigheden de grootste bijdrage tot vermindering van radioactiviteit. De retentie van activiteit op gras is na een acute expositie 's winters en onder omstandigheden van weinig groei het grootst. De gemiddelde retentietijden T_b voor jodium op gras waren in het voorjaar 20 dagen en in november 50 dagen in de VS (Idaho). Op koolplanten was bij droog weer na een week 30% van de activiteit verdwenen. Bij continue fall-out is de contaminatie door directe bladbesmetting het grootst.

Ekman en medewerkers (Ekman et al., 1974; Greitz et al., 1974) vonden bij proeven op gras met radioactief gemerkte silicadeeltjes (met ^{140}La en ^{141}Ce) met een grootte van 40-63 en 100-200 micrometer onder droge en natte omstandigheden, dat de retentie van deeltjes bij droge depositie positief correleerde met de luchtvochtigheid op het moment van toediening.

Witherspoon en Taylor (1970 en 1971) deden veldproeven met kalebas, sojaboon, sorghum, pinda en Koreaanse klaver met kwartsdeeltjes van 1-44, 44-88 en 85-175 micrometer diameter, radioactief gemerkt met ^{134}Cs of ^{86}Rb en vervolgden de retentie tot acht weken na toediening. De verschillen ten gevolge van deeltjesgrootte en plantesoort kwamen vooral tot uitdrukking in de interceptie en de retentie gedurende de eerste weken.

Elementair jodium slaat neer op weidegras en treedt zo de voedselketen koemelk-mens binnen (droge depositiesnelheid 2×10^{-2} m/s). Organisch gebonden jodium wordt veel minder efficiënt vastgehouden door de vegetatie en de depositiesnelheid is 100-200x kleiner dan voor I_2 (5×10^{-5} m/s) (Heinemann et al., 1976; Heinemann en Vogt, 1980). De depositiesnelheden voor deeltjesgebonden jodium (10^{-3} m/s op gras, 2×10^{-3} m/s op klaver) en voor HOI liggen hiertussenin (Komarov, 1983).

Het gedrag van minerale elementen bij bladopname is anders dan bij uitscheiding of lek uit het blad. Uit jong, kruidig blad treden Na en Mn gemakkelijk uit het blad naar het regenwater of via guttatie. Moeilijker gaat dat bij Ca, Mg, K, S en Sr, en nauwelijks bij Fe, Zn, P en Cl (Wittwer en Teubner, 1959; Hungate et al., 1963).

Samengevat: de retentie van een door depositie op een plant gekomen radionuclide is afhankelijk van de grootte van het transporterende deeltje, van de bladstructuur en de plantdichtheid, van het vochtigheidsverloop en van de chemische eigenschappen van het nuclide (oplosbaarheid in waterig milieu, opname in het blad, translocatie in de plant).

6. OPNAME DOOR HET BLAD

De opname van gasvormige verbindingen door de plant vindt vooral plaats via het blad en de stengel, en van opgeloste mineralen via het wortelstelsel. Toch is een plant ook in staat om opgeloste voedingsstoffen via het blad op te nemen. In de jaren zestig is er veel onderzoek geweest naar bladbemesting met kationen en anionen, en in de jaren zeventig naar de toediening van herbiciden op het blad. Over de precieze plaats van opname is geen eenstemmigheid en vaak zijn er een aantal mogelijkheden die naast elkaar optreden. Gassen, en deeltjes met een diameter beneden 1 micrometer kunnen in de huidmondjes binnendringen. Sommige stoffen worden wel opgenomen maar niet verspreid, en andere, vooral eenwaardige kationen zoals bv. Cs, zijn zeer mobiel in de plant. Omdat jodium in elementaire en organische dampvorm, als jodide, jodaat en aan deeltjes gebonden aanwezig kan zijn, worden alle mogelijke opnameroutes in het blad hier behandeld.

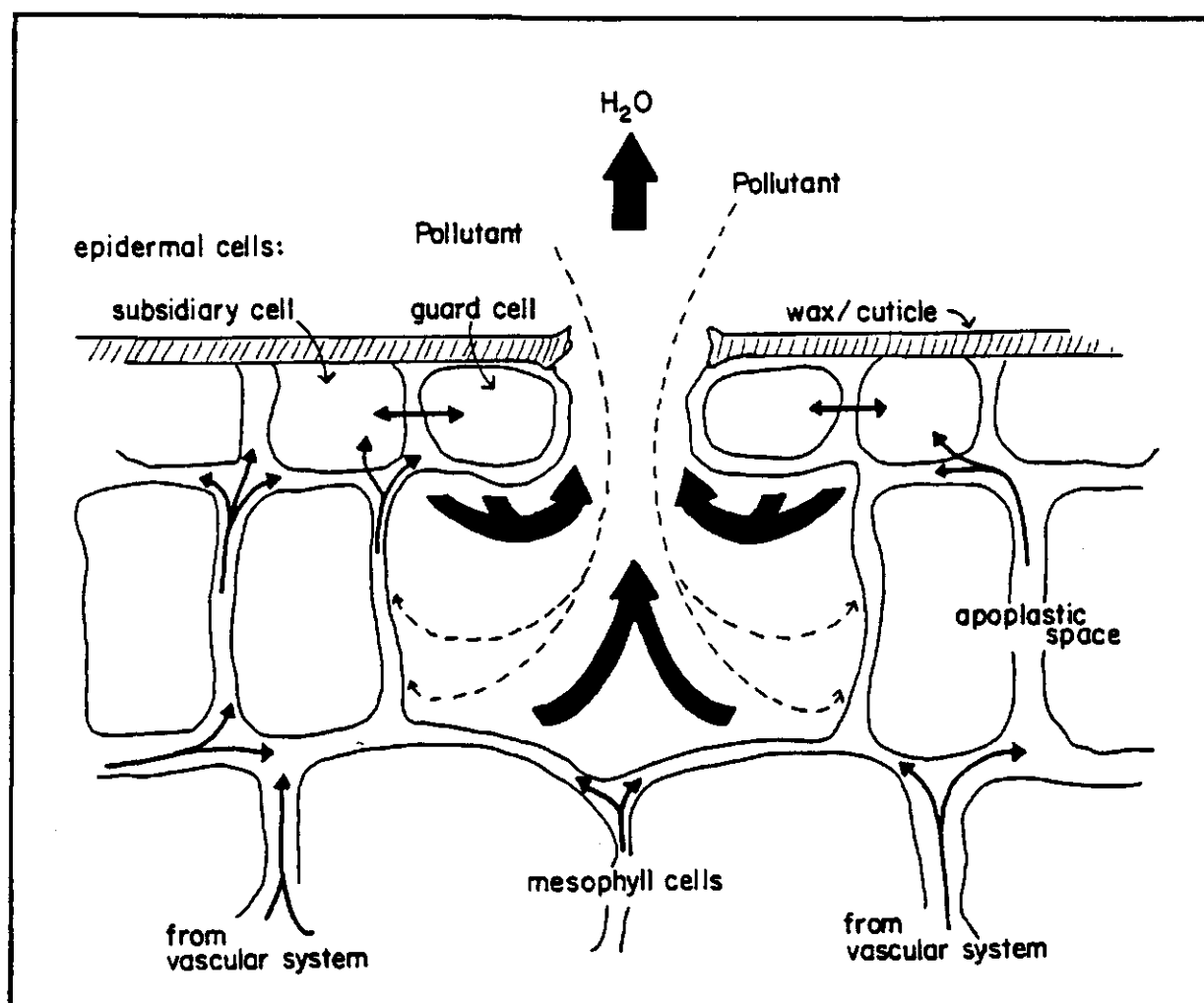
Over opname van jodium is op beperkte schaal onderzoek gedaan. ¹³¹I toegediend als elementair jodiumgas en als NaI-oplossing bij boon en geranium werd snel geabsorbeerd en langzaam verdeeld over de plant (Selders en Hungate, 1956; Wittwer en Teubner, 1959; Hungate et al., 1963).

Elementair jodiumgas kan het in blad worden opgenomen via de stomata, maar ook via de cuticula, en het aandeel via de cuticula is groter naarmate de luchtvochtigheid hoger is (Garland en Cox, 1984; Whitehead, 1984). Vocht in de lucht bevordert beide typen opname. Bij metingen aan boneblad bleek bij een relatieve luchtvochtigheid van minder dan 40% de opname vooral via de stomata te verlopen. Waarschijnlijk worden ander vluchtige jodiumverbindingen zoals methyljodide en hypojodiumzuur minder goed opgenomen. Er is niet veel onderzoek naar gedaan, ook niet naar de opname van jodide en jodaat op het blad.

Bladopname heeft juist bij jodium en cesium een grote invloed op de retentie van de radioactiviteit op gewas (Nielsen, 1981).

6.1 Gasvormige verbindingen

Gasvormige verbindingen worden in het algemeen via de huidmondjes in het blad (figuur 3) opgenomen. Dit gaat volgens een diffusieproces dat gestuurd wordt door de huidmondjesweerstand, de concentraties van het gas in de atmosfeer en in de huidmondjes en door de blootstellingsduur.



Figuur 3. Doorsnede van een huidmondje in het blad. Uit: Heath, 1981.

Omstandigheden of maatregelen die de stomata gesloten houden, zoals duister-
nis, lage luchtvochtigheid en droogte van de bodem, beperken de opnamesnel-
heid. Stomata komen voor in alle hogere planten op de bladeren, maar ook op
vruchten, stengels, petiolen en tendrils. Op in de schaduw groeiende bladeren
of planten zijn er minder stomata per cm² bladoppervlak, maar ze zijn groter.
In een vochtige omgeving is de dichtheid groter, maar ze zijn kleiner. Er
bestaan verschillende vormen van huidmondjes in verschillende plantesoorten,
elliptische en gramineeën-achtige. De openingstoestand wordt geregeld door de
osmotische potentiaal van de sluitcellen. Ze accumuleren in geopende toestand
kalium, dat in het celvocht voorkomt in een concentratie van 500-900 mol/liter
(Martin et al., 1983). In een onderzoek naar huidmondjes en bladbehaving
(trichomen) bij 35 kruiden werd een sluitspleetlengte tussen 21,6 en 57,0
micrometer gevonden en een dichtheid van 2,3-315,2 per mm² bladoppervlak
(Ormrod en Renney, 1968).

Omdat bij de meeste planten de huidmondjes vooral aan de onderkant (adaxiaal; op de bovenkant =abaxiaal) van het blad voorkomen zal de opnamesnelheid samenhangen met de bladvorm en de bladstand, naast de meteorologische factoren als windsnelheid, temperatuur en luchtvochtigheid.

Veel onderzoek naar de opname van gassen betreft vooral de luchtverontreinigende gassen SO_2 , ozon, NO_2 en HF en combinaties daarvan uit een oogpunt van schadelijkheid voor de plant. Sommige gassen, bv. SO_2 , kunnen ook het sluitingsmechanisme van de huidmondjes beschadigen zodat de opname wordt bevorderd (Mansfield en Majernik, 1970; Adepipe et al., 1972; Garsed en Read, 1977; Heath, 1980; Ormrod, 1982).

Fluoride verdeelt zich binnen de plant en accumuleert in een peregboom vooral in het blad en minder in de vrucht. Behalve zuurschade (HF) kan het aanleiding geven tot deficiënties van Ca en Mg in de plant, doordat het daarmee onoplosbare zouten vormt (Bonte, 1982; Cowling en Koziol, 1982; Davison, 1982; Mejsrik, 1985).

Uit opnamestudies in gras (*Lolium perenne*) van het slecht in water oplosbare, stabiele gas COS (als CO^{35}S) bleek dat het goed opgenomen en snel naar de wortels wordt getransporteerd (Kluczewski, 1983). Een aantal omvangrijke, goede overzichten van effecten van gasvormige luchtverontreinigingen op de plant laten de produkten van nucleaire bronnen (jodiumgas) buiten beschouwing, waarschijnlijk omdat dat incidentele emissies betreft (Mukammal, 1976; Ormrod, 1978). In het algemeen is vegetatie gevoeliger voor gasvormige verontreiniging dan voor deeltjesvormige (Heck, 1982).

Samenvattend kan worden gesteld, dat ook xenobiotische gasvormige verbindingen via de huidmondjes in de plant kunnen worden opgenomen en vervolgens binnen de plant kunnen worden getransporteerd.

6.2 Deeltjes

De spleetlengte van huidmondjes is voor de meeste planten minstens 20 micrometer. Dat houdt in dat deeltjes met een diameter van minder dan 1 micrometer in de huidmondjes terecht zouden kunnen komen. In een proef met jonge bonenplanten en een aerosol van ammoniumsulfaat (diameter 0,1-1 micrometer) met een deeltjesconcentratie van 26 mg/m^3 bleek de schade eerder op te treden door verstopping van de abaxiale huidmondjes en aantasting van de aangrenzende cellen dan op het blad (Gmur et al., 1983). Less et al. (1975) vergeleken de opname door gras van fluor uit HF en submicron deeltjes. Als gas werd het veel sneller opgenomen dan in deeltjesvorm. Er wordt geen verklaring voor gegeven.

De vermindering van huidmondjesweerstand door verstopping met stofdeeltjes werd bestudeerd door Flückiger et al. (1979). *Populus tremula* bladeren, die huidmondjes met een spleetlengte van 5-10 micrometer hebben, werden bestoven met silicagel van diverse maten tussen 5 en 60 micrometer. De kleinste deeltjes (5 micrometer) veroorzaakten een verlaagde weerstand, vooral ten opzichte van de controle bij nacht, wat erop wijst dat de deeltjes de sluiting van de stomata verhinderen.

6.3 Vloeibare vorm

Stoffen die door droge depositie op de plant zijn terechtgekomen, kunnen na oplossen in waterig milieu opgenomen worden door het blad. Ook als ze reeds in opgeloste of vloeibare vorm op het blad aankomen, kunnen ze vervolgens naar binnen worden getransporteerd.

Proeven met radioactief gemerkte saccharose op spinazieblad en *Viola tricolor* toonden aan dat dit bij de sluitcellen van de huidmondjes de plant inging. Daar zijn zg. ectodesmata aanwezig, fijnstructuren in de buitenste wanden van de epidermiscellen, die een directe verbinding schijnen te vormen tussen protoplasten en de buitenlucht (Franke, 1964a, 1964b en 1967).

De mogelijkheid van de bladopname wordt bepaald door de planteigenschappen, de stoffeigenschappen en de meteorologische omstandigheden. Inzicht hierover is vooral verkregen door proeven met pesticiden, die meestal (min of meer) polaire organische verbindingen zijn. Een overzicht van de rol van de bladstructuur bij de opname van pesticiden en andere verbindingen geeft Hull (1970).

6.3.1 Organische verbindingen

Opname kan plaatsvinden via de cuticula, die bestaat uit de epidermis van cellulose of pectine met daaroverheen een laagje was van cutine en wassen. Deze waslaag is hydrofoob. Voor opname is een goed contact nodig, in dit geval een goede bevochtiging. Die kan worden bevorderd door toevoegen van uitvloeiers. Hoe groter de retentie op het blad is, hoe langer de periode waarin de verbinding kan worden opgenomen ook is.

De structuur van het blad speelt een belangrijke rol. Bladeren die ruw zijn of harig zijn moeilijker te bevochtigen dan gladde (Hess et al., 1974). De cuticula is negatief geladen, zodat positief geladen deeltjes sneller zullen worden opgenomen dan negatieve.

De opname door de cuticula is een diffusieproces, dat lineair in de tijd verloopt en recht evenredig is met de concentratie op het blad zolang de concentratiegradiënt in stand blijft. Elke factor die de vetoplosbaarheid van de verbinding verhoogt, zal deze diffusie bevorderen. Niet-polaire verbindingen diffunderen sneller dan polaire, ongedissocieerde in water oplosbare moleculen beter dan gedissocieerde. Dit kan bij pesticiden worden beïnvloed met de pH en het type formulering. Temperatuursverhoging (binnen de fysiologische grenzen) bevordert meestal de opname. Er is een seizoensinvloed, omdat bij ouder blad de cuticula dikker wordt, maar tegelijkertijd ook verweerd is waardoor minuscule beschadigingen aanwezig kunnen zijn die de opname kunnen bevorderen. In het algemeen is de opname in jong groeiend blad beter.

Opname van verbindingen in oplossing kan ook via de stomata optreden. Dit is kennelijk het geval als aan de onderkant van het blad toegediende stoffen beter worden opgenomen dan aan de bovenkant. Of ze verder komen dan de stomataire holtes is dan nog de vraag. Licht, hoge luchtvochtigheid en een goede vochtconditie van het blad bevorderen dan ook de opname (Currier en Dybing, 1959; Steward en Sutcliffe, 1959; Sargent, 1965; Bukovac, 1973; Morrison en Cohen, 1980).

Uit onderzoek over opname met tien herbiciden met uiteenlopende chemische eigenschappen door tien gewas-, fruitboom- en onkruidsoorten bleek dat de chemische eigenschappen toch bij bladopname een geringere rol spelen dan bij wortelopname. De bladeigenschappen zijn van doorslaggevend belang. De herbiciden waren geselecteerd op verschil in molecuulgrootte, de oplosbaarheid in water en de lipofiliteit, gemeten als octanol-water verdelingscoëfficiënt. De proefplanten waren in het veld gekweekt omdat er nogal verschil in bladstructuur kan optreden met onder gecontroleerde omstandigheden gekweekte planten. Fruitboombladeren (sinaasappel en appel) namen de middelen slecht op, misschien vanwege een dikke cuticula (1-1,5 micrometer) (Price en Anderson, 1985).

Samengevat: chemische stoffen (atomen, ionen, moleculen) kunnen in het blad worden opgenomen, al of niet via kleine bladbeschadigingen, en beter naarmate de bevochtingsmogelijkheden van het bladoppervlak beter zijn. In mindere mate spelen het hydrofiele karakter en de lading van de verbinding een rol.

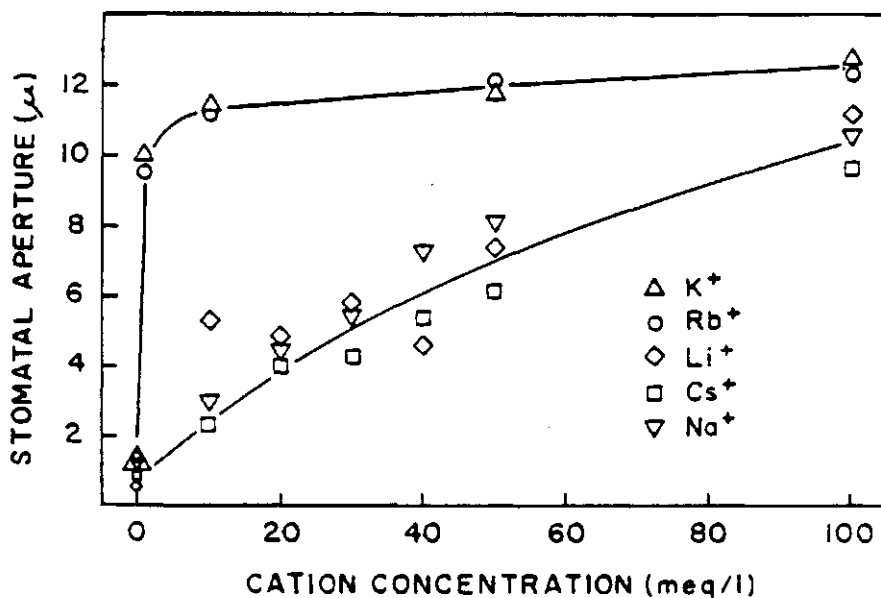
6.3.2 Anorganische ionen

De bladopname van anorganische kat- en anionen en de verspreiding daarna in de plant is in de jaren zestig onderzocht met behulp van radioactieve tracers. Sommige lagere, langzaam groeiende planten voorzien voor een aanzienlijk gedeelte in hun mineralenbehoefte via bladopname. Alle minerale elementen, vooral de sporenelementen, kunnen door het blad worden opgenomen. Zo is het idee ontwikkeld om bemesting op het blad uit te voeren, in plaats van in het wortelmilieu. Speciale aandacht is er geweest voor probleemelementen als ijzer, dat vaak in een voor de plant niet beschikbare vorm in de bodem zit. Ook de macroelementen stikstof, fosfor, kalium en magnesium, zijn via blad toegediend. Voor de praktijk heeft dit minder betekenis vanwege de behoefte, die te groot is om via blad in te voorzien. Er treedt ook al gauw zoutschade op. Daarom is stikstof als ureum toegediend en fosfor als orthofosfaat (Steward en Sutcliffe, 1959).

Een samenvatting van de bladopname en de verdeling over de plant van minerale voedingselementen is gegeven door Wittwer en Teubner (1959). Eenwaardige kationen (K, Na, Rb en Cs) worden sneller opgenomen en zijn mobieler dan tweewaardige (Ca, Mg, Sr en Ba). Het beste resultaat werd verkregen door eenwaardige kationen toe te dienen als fosfaat- of citraatzout bij pH 8. Van de tweewaardige kationen kunnen veel hogere concentraties op het blad worden toegediend zonder dat zoutschade optreedt. Ze worden eerst snel opgenomen tot er een zeker verzadigingseffect optreedt. Ze worden nauwelijks getransporteerd. De eenwaardige kationen zijn zeer mobiel in de plant, evenals Cl, P en S. Kalium wordt via blad zelfs veel beter opgenomen dan via de wortel uit de grond. Enigszins mobiel zijn Zn, Cu, Mn, Fe en Mo. Ook door andere plantedelen dan blad is opname mogelijk. Actieve groei lijkt een noodzakelijke randvoorwaarde. Radioactieve fall-outprodukten worden goed opgenomen door blad en andere bovengrondse plantedelen. ¹⁰³Ru wordt opgenomen maar niet over de plant verspreid. Cs verspreidt zich na opname door de gehele plant.

Jyung en Wittwer (1965) vermelden onderzoek over opname van mineralen met geïsoleerde cuticulamembranen met en zonder (rijpe tomaten) huidmondjes. Door beide typen treedt ionentransport op volgens een lineair verband, dus door diffusie. De kationen gaan er sneller doorheen dan de anionen.

Anorganische ionen en moleculen kunnen, afhankelijk van de chemische eigenschappen, via het blad in de plant worden opgenomen. Geconcludeerd zou kunnen worden dat bladopname via de cuticula na het kernreactorongeluk van Tsjernobyl vooral voor cesium kan zijn opgetreden uit deeltjesgebonden materiaal op het blad. Ook uit deeltjes die in de stomata terecht zijn gekomen zou cesium in oplossing gegaan kunnen zijn en vervolgens opgenomen.



Figuur 4. Openingstoestand van de huidmondjes onder invloed van de kationen K,Rb,Cs,Li en Na met Cl als tegenion. Uit: Humble en Hsiao, 1969.

7. VERDELING OVER DE PLANT

Hogere planten hebben verschillende mechanismen ontwikkeld voor de opname en interne verdeling van minerale voedingsstoffen. Bij minerale stress kan de plant zijn opnamemechanisme aanpassen. Kalium is zeer beweeglijk en gaat als tegenion voor nitraat door het xyleem omhoog en wordt verdeeld overeenkomstig de "sink"-capaciteit van bepaalde plantedelen. Als tegenion van de organische anionen (vooral malaat en citraat) gaat het door het floëem weer omlaag. Bij paprika is het gehalte in de vrucht hoger dan in het blad (85 vs. 55 mg per gram drogestof). Calcium wordt alleen omhoog getransporteerd met de transpiratiestroom in het xyleem. Natrium wordt in zoutminnende planten opgenomen en regelmatig verdeeld over de plant. In zoutmijdende planten is de opname en het transport beperkt en bestaan efficiënte uitscheidingsmechanismen zodat geen ophoping in het blad optreedt (Marschner, 1974).

Op het ITAL zijn rond 1970 proeven met boneplanten gedaan over opname van radionucliden, waarvan een aantal elementen tot het normale voedingspatroon horen (Levi, 1968). De elementen werden in de meeste gevallen op het blad toegediend als 1 of 10 mM chloride-oplossing. De opname en het transport werden onderzocht in proeven van 14 dagen van fosfor, zwavel, calcium, zink, strontium, natrium, kalium, rubidium en cesium. ^{32}P wordt via het blad opgenomen en in de plant verspreid. ^{35}S wordt opgenomen, evenals ^{45}Ca , ^{65}Zn en ^{85}Sr , maar er vindt geen neerwaarts transport door de plant plaats.

De eenwaardige kationen zijn veel mobieler in een plant. ^{22}Na , ^{43}K , ^{86}Rb en ^{134}Cs worden opgenomen via het blad en naar de wortels getransporteerd. Natrium wordt daar uitgescheiden door de wortels en verspreidt zich niet verder in de plant. Kalium, rubidium en cesium worden weer omhoog getransporteerd en herverdeeld. Kalium wordt nauwelijks via de wortels uitgescheiden (Levi, 1970a). In korter durende proeven (96 uur) werd ^{134}Cs toegediend in verschillende ontwikkelingsstadia van de plant (Levi, 1966). Het ging eerst naar de wortels en daarna weer omhoog naar het mesofylweefsel van het blad waar het uitkwam en naar andere delen van de plant. Er werd Cs aangetroffen in de vrucht (boon), en wel meer naarmate het blad op het tijdstip van toediening ouder was. Een uur na toediening was alles opgenomen en na 12 uur had het Cs zich over de hele plant verspreid. De retentie bij afwassen 3 uur na applicatie was op de gladde primaire bladeren hoger dan op de harige trifoliaire. In primair blad was de opname bij 23 graden beter dan bij 30 (Levi, 1969). Zes uur na toediening was er transport naar de wortels en

nog niet omhoog. De vochttoestand van het blad en de metabolische activiteit zijn meer bepalend voor de opname dan de luchtvochtigheid en de temperatuur van de omgeving.

Bij een vergelijkende proef met K, Na, Rb en Cs was de opnamesnelheid gelijk (passief diffusieproces), maar de retentie op de plaats van opname was groter voor Cs dan voor de andere drie, die onderling gelijk was. Het transport was het snelst voor Na en Rb. K, Rb en Cs legden dezelfde route af in de plant. Het gedrag van K en Cs leek meer op elkaar dan dat van K en Rb. Zeven dagen na de behandeling was van de toegediende dosis aan Cs nog het meest bij de opbrengstplaats aanwezig, gevolgd door Rb en Na (Levi, 1970b).

^{137}Cs kan vanuit andere plantedelen naar de korrels worden getransporteerd in granen (Aarkrog, 1983).

Guljakin en Yudinseva (1960) hebben blad- en wortelopname van ^{90}Sr en ^{137}Cs bestudeerd met diverse planten en vonden accumulatie van Cs in de zaden. Van lichte gronden werd Cs gemakkelijk in de plant opgenomen. Bekalken van zure gronden of toevoegen van organische stof aan deze gronden vermindert de Cs-opname door de plant.

De eenwaardige kationen gedragen zich als kalium, dat wil zeggen dat ze bij opname via het wortelstelsel als tegenion van nitraat met de xyleemstroom omhoog gaan en met de anorganische anionen, die na reductie van nitraat ontstaan, zoals malaat en citraat, weer naar de wortels teruggaan. Een andere mogelijkheid is, dat ze met het floëem naar andere plantedelen die fotosynthese producten nodig hebben en een sinkwerking vertonen, toegaan. Er is niet veel bekend over mineralentransport naar de vrucht toe. Bollard (1970) geeft een overzicht over de fysiologie van vruchten. Er is verschil te verwachten tussen eenjarige planten (die vooral bevoorraad worden uit het blad), meerjarige altijd groene bomen (citrus) en andere bomen. De vrucht zal de minerale elementen vooral betrekken uit de xyleemstroom en de suikerachtige verbindingen via het floëem als saccharose, sorbitol (Rosaceeën) en organische zuren. Bij Rosaceeën bevat het xyleemsap ook asparagine en asparaginezuur, naast een range van andere aminozuren en amiden. De vrucht heeft ook zelf een geringe fotosynthese. In de meeste gevallen zal het dichtstbijzijnde blad als donor-orgaan fungeren.

De kaliumgehalten vertonen ranges tussen 1,20 (appel) en 4,70% (tomaat) van de drogestof in blad en 0,70-3,77% in de vrucht (appel-tomaat). De herverdeling van mineralen en fotosynthaat bij vruchtontwikkeling is een complexe zaak, waar te weinig van bekend is. De rijpe vrucht bestaat uit water met daarin suikers (glucose, fructose en saccharose), organische zuren (malaat, tartraat, oxalaat, citraat, succinaat), ionen (vooral K, chloride, sulfaat, fosfaat, Ca, Mg) en diverse andere verbindingen. Coombe (1976) stelt dat de toevoer van voedingsstoffen naar de vrucht door het floëem plaatsvindt en afkomstig is van recente synthese en niet van voorraden.

Gewascontaminatie met ^{89}Sr en ^{137}Cs is onderzocht door Middleton (1959) en Middleton en Squire (1963) in aardappel, tarwe, kool en suikerbiet na toediening als spray in diverse groeistadia. In het oogststadium was Cs in alle plantedelen aanwezig, en concentreerde zich vooral in de aardappelknol. Als de behandeling na de aarvorming was uitgevoerd bevatte het graan Sr, maar het meel veel minder. Van kalium is bekend dat het accumuleert in de sluitcellen van de stomata (Martin et al., 1983). Er is ook onderzocht of Li, Na, Rb of Cs dat effect vertoonden. Deze ionen gingen ook de sluitcellen in, maar in veel mindere mate dan kalium (zie figuur 4).

De verdeling van jodium over een plant na bladopname is onderzocht door Selders en Hungate (1956) en Hungate et al. (1963). Ongeveer 5% van de op blad van geranium toegediende geabsorbeerde hoeveelheid jodium werd in andere plantedelen aangetroffen. Jodium is een natuurlijk, zij het waarschijnlijk niet noodzakelijk, bestanddeel van een plant, wat betekent dat het via de wortels kan worden opgenomen en mobiel is. Het begeeft zich in elk geval naar het blad. Een uitgesproken bladgewas als spinazie is relatief rijk aan jodium, wat vermoedelijk samenhangt met de teeltwijze (kalirijke gronden langs de kust, waar het natuurlijk jodiumgehalte in de atmosfeer het hoogst is).

Samenvattend kan worden gesteld dat vooral cesium zich in kruidachtige planten over een korte termijn (ongeveer een week) naar andere plantedelen kan verspreiden en wel sneller naarmate de plant harder groeit. In struiken en bomen zal het zich ook verspreiden in de richting van de fotosynthatensink. Jodium blijft na opname waarschijnlijk vooral in het blad aanwezig.

8. DISCUSSIE

De mate van contaminatie van een gewas met radionucliden na een acute emissie is een gevolg van de chemische en fysische samenstelling van de fall-out, de aërosol-samenstelling, de meteorologische omstandigheden, de bodembedekking en het groeistadium van het gewas en de eigenschappen van vooral het bladoppervlak. De meteorologische omstandigheden bepalen voornamelijk de depositiesnelheid. De fysische eigenschappen en de planteigenschappen zijn meer bepalend voor de retentie, evenals de chemische eigenschappen die vooral de opname en de translocatie bepalen.

Voor de gewasbesmetting met kortlevende isotopen zoals ^{131}I is de opname via de wortel traag t.o.v. de andere routes en daarom te verwaarlozen (Nielsen, 1981). Voor cesiumbesmetting zou onder natte omstandigheden de opname via het wortelstelsel wel belangrijk kunnen zijn.

De directe besmetting van een gewas is het gecombineerde resultaat van de interceptie door depositie, eventueel resuspensie vanaf de grond naar het gewas en van de retentie, het achterblijven van activiteit op de plant ondanks verwerking. Omdat zoveel factoren meespelen is het eindresultaat, de mate van besmetting van het oogstprodukt, moeilijk voorspelbaar.

De beschouwingen kunnen in het geval Tsjernobyl worden beperkt tot cesium, dat aan deeltjes was gebonden en jodium, dat in verschillende vormen aanwezig was. De fall-out bevatte veel deeltjes met een diameter kleiner dan 1 micrometer. Om gewascontaminatie met deeltjes ten gevolge van droge depositie te kunnen voorspellen is het nodig onderscheid te maken naar diameter. Deeltjes groter dan 5 micrometer worden beter dan kleinere onderschept door bladeren met een ruw oppervlak, maar de retentie van kleine deeltjes is groter op gladde bladeren. Dat is enerzijds een gevolg van de herverdeling, die op het blad plaats kan vinden door regen (Brabec et al., 1981). Een andere niet met name genoemde oorzaak moet de invangst in stomata zijn (Flückiger et al., 1979; Gmur et al., 1983). Deeltjes die in stomata ingevangen zijn, kunnen niet met water of detergentia worden afgewassen, maar wel met verdund zuur of na koken (Little, 1963; Salkl en Maeda, 1982). Deze zienswijze verklaart ook, waarom bij koken van gecontamineerde tomaten geen extra activiteit meer vrijkwam en bij spinazie en kool wel (Thompson en Howe, 1973). Rijpe tomaten hebben namelijk geen stomata.

Door vegetatie ingevangen deeltjes komen vooral op het blad terecht. Dat is niet alleen zo bij gras en spinazie, maar ook bij bomen (Smith en Staskawicz, 1977), wat niet wil zeggen dat geen invangst op andere plantedelen, die ook stomata kunnen hebben, optreedt. Gewasbesmetting is een totaalresultaat van depositie en retentie. In depositie- en retentieproeven moet de deeltjesgrootte als variabele worden beschouwd. Omstreeks 1970 is er aandacht geweest voor aan deeltjes gebonden radioactiviteit, met diameters van 1 tot 200 micrometer (Chamberlain, 1970; Witherspoon en Taylor, 1970 en 1971; Ekman et al., 1974). Onderzoek met kleinere deeltjes is nauwelijks bekend. Het aërosolonderzoek is vooral vanwege de problematiek van de luchtverontreiniging pas in de zeventiger jaren goed op gang gekomen.

Weinig aandacht is besteed aan vluchtige vormen van jodium, anders dan elementair jodiumgas. Dat lijkt voor gewasbesmetting minder relevant omdat de activiteit immers snel vanzelf verdwijnt door verval. Voor de volksgezondheid is het echter wel van belang te weten wat de stralingsbelasting door inademing van vluchtige radionucliden, in de praktijk jodium, zal zijn. De metingen (KEMA bv.) maken inderdaad onderscheid tussen deeltjesgebonden jodium, elementair I_2 en overige vluchtige jodiumverbindingen. Voor besmetting van gewas op grotere afstand van de nuclidebron is I_2 -gas echter van minder belang, omdat het in de atmosfeer overgaat in organische gasvormige verbindingen zoals methyljodide of aan deeltjes wordt gebonden.

De hoge retentie van de radioactiviteit op het gewas is fysiologisch te verklaren uit de deeltjesgrootte en de samenstelling van de fall-out.

De retentie op het gewas wordt groter naarmate het nuclide beter wordt opgenomen door het blad. Hiervoor moet het eerst in oplossing gaan. Het deeltjesgebonden cesium zal gemakkelijk oplossen en kan zich na opname in het blad gemakkelijk door de plant verspreiden (Levi, 1966, 1969 en 1970).

Naar analogie met kalium valt te verwachten dat het als begeleidend ion van fotosynthaten naar groeiende delen van de plant gaat, bv. een afrijpende vrucht (Bollard, 1970; Coombe, 1976). Het Cs zou ook in de sluitcellen van de stomata kunnen gaan zitten (Humble en Hsiao, 1969). Het is moeilijk om voor jodium kwantitatieve beschouwingen te houden. De deeltjesgebonden fractie kan elementair jodium, jodide (HI) of jodaat bevatten (Perkins, 1963). Jodide- en jodaatzouten van de alkalimetalen lossen goed in water op; elementair jodium lost goed op zodra er ook jodide aanwezig is omdat het complexen vormt.

Er is altijd jodide aanwezig, omdat jodium van nature in de atmosfeer voorkomt waarvan een fractie als I^- of HI. Jodide en elementair jodiumgas kunnen in het blad worden opgenomen (Wittwer en Teubner, 1959; Garland en Cox, 1984; Whitehead, 1984). Van jodaat is minder bekend wat betreft bladopname. Via de wortel wordt het goed in de plant opgenomen (Merzweiler, 1983).

Van de 70% gasvormige organische jodiumverbindingen die in de Tsjernobyl fall-out aanwezig waren is de samenstelling niet bekend. Er zal wel CH_3I aanwezig zijn geweest. Dit regent moeilijk uit, dus de depositie zal in droge vorm plaatsvinden. De adsorptie aan planten is veel lager dan voor elementair jodium en HI (Komarov, 1983), maar de bijdrage aan besmetting zal afhangen van de blootstellingsduur. Voor I_2 -gas is de interceptiefactor op vochtig blad tweemaal zo hoog als op droog blad (Heinemann en Vogt, 1980).

In een periode zonder echte neerslag kan toch bladopname van de door droge depositie neergedaalde nucliden plaatsvinden, omdat ze in dauw of condens op de plant op zullen lossen. In Wageningen was er op 28 en 30 april en op 1 mei dauw en op 4 en 5 mei nevel (Maandoverzichten weergegevens "De Haarweg"). Op 2 en 3 mei was het kennelijk droger. Plaatselijk kan de toestand verschillen.

De radionucliden vertegenwoordigen heel weinig massa. In Nederland (Petten) bedroeg de totale depositie van 2-9 mei 37.000 Bq per m^2 aan gammastraling, waarvan 16.900 van 131 -jodium afkomstig was, 1100 Bq van 134 -cesium en 2400 Bq van 137 -cesium, en 10.200 Bq van 132 -tellurium (CCRX-rapport).

Met de fysische halveringstijd (in s) kunnen we uit de formule $AxT_{1/2}/\ln 2$ het aantal atoomkernen berekenen dat de gemeten straling A oplevert. Met het getal van Avogadro (6×10^{23}) en het de atoommassa is dan daaruit per isotoop het gewicht te berekenen. Om een activiteit van 3500 desintegraties per s te krijgen zijn nodig $136 \times 3500 \times 10^9 / (0,693 \times 6 \times 10^{23}) = 11,5 \times 10^{-10}$ gram Cs/ m^2 . Voor een activiteit van 16.900 desintegraties per s zijn nodig $AxT_{1/2}/\ln 2 \times 6 \times 10^{23}$ mol of $131 \times 16.900 \times 7 \times 10^5 / 0,693 \times 6 \times 10^{23} = 3,7 \times 10^{-12}$ gram of $2,8 \times 10^{-14}$ mol I/ m^2 .

Voor jodium in de lucht is de massa bij de in Petten maximaal gemeten ^{131}I activiteit van 50 Bq/ m^3 dus $84,2 \times 10^{-18}$ mol I/ m^3 of een honderd-duizendste nanogram I/ m^3 . Van nature is er in de lucht 10-20 nanogram I/ m^3 aanwezig.

In het gewas is van nature ook jodium aanwezig. De hoeveelheid in gras is per m^2 bijvoorbeeld, bij 4500 kg totaal DS/ha en een I-gehalte van 0,07 mg/kg DS: $2,4 \times 10^{-7}$ mol I/ m^2 .

Omdat Cs zich gedraagt als K zou er competitie kunnen zijn tussen deze elementen in de plant.

Bij 4% K op DS is de normale hoeveelheid kalium in gras $0,46 \text{ mol/m}^2$. Voor spinazie zijn de getallen bij 2000 kg DS/ha bij oogst en 100 g K/kg DS en 1,6 mg I/kg DS: $0,5 \text{ mol K/m}^2$ en $25 \times 10^{-6} \text{ mol I/m}^2$.

Er is dus een grote overmaat aan kalium t.o.v. cesium en aan niet-actief t.o.v. actief jodium, zodat toevoeging van K of I de opname van Cs of ^{131}I door de plant niet merkbaar zou beïnvloeden. Alleen in situaties van een bestaand zeer groot jodium- of kaliumgebrek zou dat zinvol kunnen zijn. De preventieve werking van jodiumtabletten bij de mens berust eigenlijk ook op een gebrekssituatie.

De gewasbesmetting die op zal treden is afhankelijk van het groeistadium van het gewas op het moment van expositie en van de tijd die nog verloopt tot aan de oogst. Een plant die goed groeit zal ook het meest opnemen, hetzij via stomata, hetzij via blad- of wortelopname. De besmetting zal dan via de directe en de indirecte route via de grond optreden. Omdat cesium goed oplosbaar is en mobiel in de plant is de kans dat het door de oppervakkige wortels wordt opgenomen voordat het in de grond wordt vastgelegd, aanzienlijk. Voor jodium geldt dit in mindere mate omdat de halveringstijd kort is. De besmetting van spinazie bestond voor een groot deel uit ^{131}I (CCRX-rapport). Door bewaren verdwijnt deze activiteit geleidelijk. Het heeft zin om onderscheid te maken in ^{137}Cs en ^{131}I -besmetting voor produkten waarvoor conserveringsmethoden bekend zijn.

Op langere termijn hebben we bij de teelt alleen nog te maken met indirecte besmetting van vooral cesium. Deze zal op arme gronden zoals natuurterreinen groter zijn dan op cultuurgronden vanwege de vastlegging aan kleimineralen en organische stof, de pH en de afvoer met het oogstprodukt.

Het Tsjernobylongeluk heeft de mogelijkheid geboden tot het verzamelen van gegevens die in een proef nooit zouden kunnen worden verkregen. De meteorologische verspreidingsmodellen voor fall-out konden op deze manier getoetst worden. In gewas, groente en fruit is het gebleven bij steekproefgewijze activiteitsmetingen op grond waarvan het produkt eventueel uit de handel werd genomen.

9. SUGGESTIES

Uit de literatuur over gedrag van deeltjes ten opzichte van vegetatie en opname van gasvormige en opgeloste verbindingen via blad is te verklaren wat heeft plaatsgevonden na het reactorongeluk van Tsjernobyl. Er blijven echter toch ook deelgebieden die onvoldoende onderzocht zijn.

Onderzoek met jodiumverbindingen is op beperkte schaal uitgevoerd, met vooral elementair jodium en methyljodide en soms HOI. Van voorkomen en gedrag van vluchtige organische jodiumverbindingen is niet veel bekend. Bladopname van jodaat en van aan deeltjes gebonden jodiumvormen zijn nauwelijks onderzocht. Dit terwijl in de praktijk het jodium alleen als elementair gas aanwezig zal zijn in de onmiddellijke omgeving van de bron. Het zal zich binnen enkele dagen/weken omzetten tot organische en deeltjesgebonden vormen.

Ook in de kasteelt is besmetting opgetreden, via gebruik van gecontamineerd sproeiwater (CCRX-rapport). Door de ramen dicht te houden kan men de fall-out nog gedurende korte tijd buiten de kas houden. Het verdient aanbeveling om voorbereid te zijn op hogere doses jodiumgas en de mogelijkheden van uitfilteren of uitwassen van de in de kas gebruikte lucht te onderzoeken, met speciale aandacht voor jodium.

Proeftechnisch leveren experimenten met radionucliden en zeker de gasvormige, problemen op. Bij langdurige proeven moet je een voldoende lange halveringstijd van het in de proef gebruikte radionuclide hebben. Als we te maken hebben met milieuvreemde elementen zoals cesium, hoeven de proeven niet met actieve isotopen te worden uitgevoerd. De meting radioactiviteit op zichzelf biedt natuurlijk wel een gevoelige analysemethode. Met jodium is dat wel wenselijk, omdat de toegediende hoeveelheid onderscheiden moet kunnen worden van de van nature reeds aanwezige atomen. Heinemann en Vogt (1980) werkten met niet-radioactief jodium en moesten daarom een concentratie toedienen die een zesvoudig gehalte in het gewas veroorzaakte t.o.v. het van nature aanwezige. Fall-out concentraties zullen meestal veel lager zijn. Het concentratieniveau van vluchtige jodiumvormen zou een proefvariabele moeten zijn.

Kennis ontbreekt op het gebied van de gewasbesmetting over een periode van enkele dagen tot weken (combinatie van depositie en retentie, waarbij juist voor cesium en jodium de bladopname een grote rol speelt), ten gevolge van een gemengde fall-out van zeer kleine deeltjes (diameter kleiner dan 1 micrometer) en een hoog gehalte aan gasvormige jodiumverbindingen.

Onderzoek zou plaats kunnen vinden naar de invloed van bladstructuur op de interceptie en retentie van deeltjes van diverse grootte onder droge en vochtige (inclusief dauw) omstandigheden. Dergelijk onderzoek zou niet met radioactieve stoffen behoeven te worden uitgevoerd als er maar een voldoende gevoelige detectiemogelijkheid is. Juist onder Nederlandse omstandigheden treedt dauwvorming op, die de retentie verhoogt van goed in waterig milieu oplosbare verbindingen, zoals cesium en jodium, door zowel de interceptie als de bladopname te bevorderen. Dat moet dus zeker in dit type onderzoek betrokken worden. De afwasbaarheid van aan kleine (kleiner dan 1 micrometer diameter) deeltjes gebonden radioactiviteit in water, detergentia, zuur milieu en door koken zou bestudeerd kunnen worden. Misschien zijn nu afgekeurde partijen levensmiddelen na de juiste behandeling toch eetbaar. Dit kan belangrijk zijn naarmate de nuclidenbron dichterbij is en er in totaal weinig voedsel nog geschikt is voor consumptie. Dit zou kunnen worden bekeken voor een zo breed mogelijk assortiment groente en fruit. Dit type onderzoek zou uitgevoerd kunnen worden met snel vervallende radionucliden, na een test dat die ook representatief zijn voor cesium en jodium.

10. LITERATUUR

Aarkrog, A., 1983

Translocation of radionuclides in cereal crops.

In: Ecological aspects of radionuclide release, P.J.Coughtrey, 81-90.

Adepipe, N.O., H.Khatamian, D.P.Ormrod, 1972

Stomatal regulation of ozone phytotoxicity in tomato.

Zeitschrift für Pflanzenphysiologie 68, 323-328.

Albrecht, H., H.Wild, 1981

Wasserdampf und Luft als Trägergas beim Betrieb eines Kaskaden impaktors zur Untersuchung nuklearer Aerosole.

Journal of Aerosol Science 12, 235.

Alexandropoulos, N.G., T.Alexandropoulou, D.Anagnostopoulos, E.Evangelou, K.T.Kotsis, I.Theodorou, 1986

Chernobyl fallout on Ioannina, Greece.

Nature 322, 779.

Anonymous, 1973

Behavior and effects of radionuclides in soils and plants.

Three Year Summary, 1971-1973. Ed. California University, Berkeley, USA,

Contract AT(11-1)-34, 12 pp.

Aoyama, M., K.Hirose, Y.Suzuki, H.Inoue, Y.Sugimura, 1986

High level radioactive nuclides in Japan in May.

Nature 321, 819-820.

Atkins, D.H.F., R.C.Chadwick, A.C.Chamberlain, 1967

Deposition of radioactive methyl iodide to vegetation.

Health Physics 13, 91-92.

Barber, D.A., 1964

Influence of soil organic matter on the entry of caesium-137 into plants.

Nature 4965, 1326-1327.

Becker, K.H., 1985

In: Air pollution and plants. Proceedings of the 2nd Europ.

Conference on Chemistry and the Environment, May 21-24, 1984,

Lindau (Ed. C. Troyanowsky), VCH, Weinheim, Germany, 108-111.

Bollard, E.G., 1970.

The physiology and nutrition of developing fruits.

In: The Biochemistry of Fruits and their Products (Ed.A.C.Hulme),

Academic Press, London, Vol.1, pp. 387-425.

Bonte, J., 1982

Effects of air pollutants on flowering and fruiting.

In: Effects of gaseous air pollution in agriculture and horticulture.

M.H.Unsworth, D.P.Ormod, Butterworth Scientific, London, 207-223.

Brabec, E., P.Kovar, A.Drabkova, 1981

Particle deposition in three vegetation stands: a seasonal change.

Atmospheric Environment 15, 583-587.

Brauer, F.P., H.G.Rieck jr., R.L.Hooper, 1974

Particulate and gaseous atmospheric iodine concentrations.

In: Physical behaviour of radioactive contaminants in the atmosphere.

Proceedings of a symposium jointly organized by the International Atomic Energy Agency and the World Meteorological Organization and held in Vienna, 12-16 november 1973.

Proceedings Series, Ed. International Atomic Energy Agency, Vienna, 351-366.

Bukovac, M.J., 1973

Foliar penetration of plant growth substances.

In: Transactions of the 3rd symposium on accumulation and translocation of nutrients and regulators in plant organisms, Proceedings of the Research Institute of Pomology, Skierniewice, Poland, Series E, Conferences and Symposia, Nr.3, 255-257.

Cadle, R.D., 1972

Formation and chemical reactions of atmospheric particles.

In: Aerosols and atmospheric chemistry: The Kendall award symposium honoring prof. Milton Kerker (Ed.G.M.Hidy) Academic Press, New York, 141-147.

CCRX, 1986

De radioactieve besmetting in Nederland ten gevolge van het kernreactor ongeval in Tsjernobyl.

Rapport van de Coördinatie-commissie voor de metingen van radioactiviteit en xenobiotische stoffen (CCRX), VROM 60898/10-86, Den Haag, 133 pp.

Chamberlain, A.C., 1970

Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation.

Atmospheric Environment 4, 57-78.

Chamberlain, A.C., P.Little, 1981

Transport and capture of particles by vegetation.

In: Plants and their atmospheric environment, The 21st Symposium of the British Ecological Society, Edinburgh 1979 (Ed. J.Grace, E.D.Ford, P.G.Jarvis), Blackwell Scientific Publications, Oxford, 147-173.

Chameides, W.L., D.D.Davies, 1980

Iodine: Its possible role in tropospheric photochemistry.

Journal of Geophysical Research 85, 7383-7398.

Cicerone, R.J., 1981

Halogens in atmosphere.

Reviews of Geophysics and Space Physics 19, 123-139.

Coombe, B.G., 1976

The development of fleshy fruits.

Annual Review of Plant Physiology 27, 507-528.

Cowling, D.W., M.J.Koziol, 1982

Mineral nutrition and plant response to air pollutants.

In: Effects of gaseous air pollution in agriculture and horticulture.

M.H.Unsworth, D.P.Ormod, Butterworth Scientific, London, 349-375.

Currier, H.B., C.D.Dybing, 1959

Foliar penetration of herbicides-Review and present status.

Weeds 7, 195-213.

Davids, J.A.G., A.W.van Weers, 1986

Radioactiviteitsmetingen bij ECN na het Tsjernobyl-reactorongeval.

Energiespectrum 10, 140-150.

Davison, A., 1982

The effects of fluorides on plant growth and forage quality.

In: Effects of gaseous air pollution in agriculture and horticulture.

M.H.Unsworth, D.P.Ormod, Butterworth Scientific, London, 267-291.

Devell, L., H.Tovedal, U.Bergstroem, A.Appelgren, J.Chyssler, L.Andersson, 1986

Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl.

Nature 321, 192-193.

Ekman, L., A.Eriksson, U.Greitz, 1974

Transfer of simulated fallout particles from pasture to grazing dairy cattle. IV. Further experiments with wet and dry deposited 100 to 200 um particles and wet deposited 1 um particles. Ed. Foersvarets Forskningsanstalt, Stockholm, Sweden, FOA-4-4573-A3, 20 pp.

- Eggleton, A.E.J., D.H. Atkins, L.B. Cousins, 1963
Chemical and physical nature of fallout I131 and carrier-free I131 released in air-An abstract.
Health Physics 9, 1111.
- Flückiger, W., J.J. Oertli, H. Flückiger, 1979
Relationship between stomatal diffusive resistance and various applied particle sizes on leaf surfaces.
Zeitschrift für Pflanzenphysiologie 91, 173-175.
- Fortmann, R.C., D.L. Johnson, 1984
Characterisation of individual ambient aerosol particles retained on Taxus needles washed with water.
Environmental Pollution (Series B) 8, 1-16.
- Franke, W., 1964a
Ueber die Beziehungen der Ektodesmen zur Stoffaufnahme durch Blätter. III. Mitteilung. Nachweis der Beteiligung der Ektodesmen an der Stoffaufnahme durch Blätter mittels radioaktiver Isotope.
Planta 61, 1-16.
- Franke, W., 1964b
Role of guard cells in foliar absorption.
Nature 202, 1236-1237.
- Franke, W., 1967
Mechanisms of foliar penetration of solutions.
Annual Review of Plant Physiology 18, 281-300.
- Frissel, M.J., 1982
Gedrag van radionucliden in bodem en gewassen.
Chemisch Magazine juli/aug, 424-429.
- Fry, F.A., R.H. Clarke, M.C. O'Riordan, 1986
Early estimates of UK radiation doses from the Chernobyl reactor.
Nature 321, 193-195.
- Garland, J.A., L.C. Cox, 1984
The uptake of elemental iodine vapour by bean leaves.
Atmospheric Environment 18, 199-204.
- Garsed, S.G., D.J. Read, 1977
Sulphur dioxide metabolism in soy-bean, *Glycine Max.* var. Biloxi.
I. The effects of light and dark on the uptake and translocation of $^{35}\text{SO}_2$.
New Phytologist 78, 111-119.

- Gmur, N.F., L.S.Evans, E.A.Cunningham, 1983
Effects of ammonium sulphate aerosols on vegetation-II.
Mode of entry and responses of vegetation.
Atmospheric Environment, 17, 715-721.
- Greitz, U., L.Ekman, A.Eriksson, 1974
Transfer of simulated fallout particles from pasture to grazing dairy
cattle. Ed. Foersvarets Forskningsanstalt, Stockholm, Sweden,
FOA-C-40005-A3, 31 pp.
- Guljakin, I.V., E.V. Yudinseva, 1960
The entrance into plants and accumulation in the yield of some radio-
active products of division.
Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Seriya Biolicheskaya 6, 874-885.
- Heath, R.L., 1980
Initial events in injury to plants by air pollutants.
Annual Review of Plant Physiology 31, 395-431.
- Heck, W.W., 1982
Future directions in air pollution research.
In: Effects of gaseous air pollution in agriculture and horticulture.
M.H.Unsworth, D.P.Ormod, Butterworth Scientific, London, 411-435.
- Heinemann, K., M.Stoeppler, K.J.Vogt, L.Angeletti, 1976
Untersuchungen zur Ablagerung end Desorption von Jod auf Vegetation.
Ed. Kernforschungsanlage Jülich, Report Jül-1287, 66 pp.
- Heinemann, K., K.J.Vogt, 1980
Measurements of the deposition of iodine onto vegetation and of the
biological half-life of iodine on vegetation.
Health Physics 39, 463-474.
- Hess, F.D., D.E.Bayer, R.H.Falk, 1974
Herbicide dispersal patterns: I.As a function of leaf surface.
Weed Science 22, 394-401.
- Hoefken, K.D., G.Gravenhorst, 1981
Concentration and size distribution of trace substances in
aerosols above and beneath a forest canopy.
Journal of Aerosol Science 12, 163.
- Hoffman, F.O., 1977
A reassessment of the deposition velocity in the prediction of the
environmental transport of radioiodine from air to milk.
Health Physics 32, 437-441.

Hull, H.M., 1970

Leaf structure as related to absorption of pesticides and other compounds.

Residue Reviews 31, 155 pp.

Humble, G.D., Th.C.Hsiao, 1969

Specific requirement of potassium for light-activated opening of stomata in epidermal strips.

Plant Physiology 44, 230-234.

Hungate, F.P., J.F.Cline, R.L.Uhler, A.A.Selders, 1963

Foliar sorption of ^{131}I by plants.

Health Physics 9, 1159-1166.

International Commission on Radiological Protection, 1979

Metabolic data for iodine.

In: Limits for intakes of radionuclides by workers.

ICRP Publication 30, Part 1, Annals of the ICRP 2 (3/4), 88-90.

Jyung, W.H., S.H.Wittwer, 1965

Pathways and mechanisms of mineral nutrients.

Agricultural Science Reviews 3, 26-36.

Kluczewski, S.M., J.N.B.Bell, K.A.Brown, M.J.Minski, 1983

The uptake of (^{35}S)-carbonyl sulphide by plants and soils.

Translocation of radionuclides in cereal crops.

In: Ecological aspects of radionuclide release, P.J.Coughtrey, 91-104.

Komarov, E., 1983a

Iodine.

In: Selected radionuclides: tritium, carbon-14, krypton-85, strontium-90, iodine, caesium-137, radon, plutonium, (Ed.

World Health Organization), Geneva, Environmental Health Criteria 25, 90-115.

Komarov, E., 1983b

Caesium-137.

In: Selected radionuclides: tritium, carbon-14, krypton-85,

strontium-90, iodine, caesium-137, radon, plutonium, (Ed. World Health Organization), Geneva, Environmental Health Criteria 25, 116-142.

Koster, L.M., 1974

Radionucliden (jodium, cesium en strontium) in de stofwisseling van grote landbouwhuisdieren.

Literatuuroverzicht, samengesteld in opdracht van het Ministerie van Landbouw en Visserij. (Ed.Pudoc), Wageningen, 35pp.

Leininger, H.V., E.P.Laug, R.D.Chapman, H.J.McConnell, A.T.Spiher, S.E.Koelz, 1958

Effect of fallout contamination on raw agricultural products.

Ed. Food and Drug Administration, Washington D.C. and Federal Civil Defense Administration, Washington D.C., WT-1497, 16 pp.

Lenzian, K.J., M.H.Unsworth, 1983

Ecophysiological effects of atmospheric pollutants.

In: Encyclopedia of Plant Physiology, New Series, Vol. 12D

(Ed. A.Pirson, M.H.Zimmermann), Physiological Plant Ecology 4,

(Ed. O.L.Lange, P.S.Nobel, C.B.Osmond, H.Ziegler), Springer-Verlag, Berlin, 465-502.

Less, L.N., A.McGregor, L.H.P.Jones, D.W.Cowling, E.L.Leafe, 1975

Fluorine uptake by grass from aluminium smelter fume.

International Journal of Environmental Studies 7, 153-160.

Levi, E., 1966

Uptake and distribution of ^{134}Cs applied to leaves of bean plants.

Radiation Botany 6, 567-574.

Levi, E., 1968

The distribution of mineral elements following leaf and root uptake.

Physiologia Plantarum 21, 213-226.

Levi, E., 1969

The penetration and adsorption of cesium in bean leaves.

Acta Botanica Neerlandica 18, 455-461.

Levi, E., 1970a

The influence of accompanying cations on the foliar uptake of

Na, K, Rb and Cs.

Physiologia Plantarum 23, 871-877.

Levi, E., 1970b

Penetration, retention and transport of foliar applied single

salts of Na, K, Rb and Cs.

Physiologia Plantarum 23, 811-819.

Little, P., 1973

A study of heavy metal contamination of leaf surfaces.

Environmental pollution 5, 159-172.

Mansfield, T.A.O.Majernik, 1970

Can stomata play a part in protecting plant against air pollutants?

Environmental Pollution 1, 149-154.

Makhon'ko, K.P., A.N.Andrievskii, 1984

Role of aerosol contamination in the overall contamination of vegetation near atomic power plants.

The Soviet Journal of Ecology 14, 267-271.

Marschner, H., 1974

Mechanisms of regulation of mineral nutrition in higher plants.

In: Mechanisms of regulation of plant growth (Ed. R.L.Bieleski, A.R.Ferguson, M.M.Cresswell) The Royal Society of New Zealand, Wellington, Bulletin 12, 99-109.

Martin, W.E., 1964

Losses of Sr90, Sr89, and I131 from fallout-contaminated plants.

Radiation Botany 4, 275-284.

Martin, E.S., M.E.Donkin, R.A.Stevens, 1983

Stomata.

Ed. E.Arnold, London, The Institute of Biology's Studies in Biology no. 155, 60 pp.

Mejstrik, V., 1985

Direct effects on plants - fluorides.

In: Air pollution and plants. Proceedings of the 2nd Europ. Conference on Chemistry and the Environment, May 21-24, 1984, Lindau (Ed. C. Troyanowsky), VCH, Weinheim, Germany, 133-141.

Merzweiler, A., 1983

Vorkommen und Bedeutung von Jod im Boden (Uebersichtbeitrag).

Archiv für Acker- und Pflanzenbau und Bodenkunde, Berlin, 27, 663-669.

Middleton, L.J., 1959

Radioactive strontium and caesium in the edible parts of crop plants after foliar contamination.

International Journal of Radiation Biology 4, 387-402.

Middleton, L.J., H.M.Squire, 1963

Further studies of radioactive strontium and caesium in agricultural crops after direct contamination.

International Journal of Radiation Biology 6, 549-558.

Miller, C.W., F.O.Hoffman, 1982

An analysis of reported values of the environmental half-time for radionuclides deposited on the surfaces of vegetation.

In: Environmental migration of long-lived radionuclides, (Ed. International Atomic Energy Agency), Wenen, IAEA-SM-257/63, pp. 313-328.

Moorby, J., H.M.Squire, 1963

The loss of radioactive isotopes from the leaves of plants in dry conditions.

Radiation Botany 3, 163-167.

Morrison, I.N, A.C.Cohen, 1980

Plant uptake, transport and metabolism.

In: The handbook of environmental chemistry, (Ed. O.Hutzinger), Springer Verlag, New York, Vol.2, part 2A, Reactions and processes, 193-219.

Mukkammal, E.I., 1976

Review of present knowledge of plant injury by air pollution.

Ed. World Meteorological Organization, Geneva, Technical Note no.147, 27 pp.

Nair, S., H.A.Grogan, M.J.Minski, J.N.B.Bell, 1983

Models for the prediction of doses from the ingestion of terrestrial foods.

Translocation of radionuclides in cereal crops.

In: Ecological aspects of radionuclide release, P.J.Coughtrey, 141-159.

Nielsen, O.J., 1981

A literature review on radioactivity transfer to plants and soil.

Report Risoe R-450, Risoe National Laboratory, Roskilde, Denmark, 100 pp.

Ormrod, D.P., 1978

Pollution in horticulture.

Ed. Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam, Fundamental Aspects of Pollution Control and Environmental Science no.4, 260 pp.

Ormrod, D.P., 1982

Air pollutant interactions in mixtures.

In: Effects of gaseous air pollution in agriculture and horticulture.

M.H.Unsworth, D.P.Ormrod, Butterworth Scientific, London, 307-331.

Ormrod, D.J., A.J.Renney, 1968

A survey of weed leaf stomata and trichomes.

Canadian Journal of Plant Science 48, 197-209.

Pelletier, C.A., J.E.Cline, E.D.Barefoot, R.T.Hemphill, P.G.Voillequé,
W.A.Emel, 1978a

Sources of radioiodine at pressured water reactors.

EPRI Report NP-939, (Ed. Science Applications, Inc.), Rockville, Md.,
USA, Nuclear Environmental Services Div., 330 pp.

Pelletier, C.A., E.D.Barefoot, J.E.Cline, R.T.Hemphill, W.A.Emel,
P.G.Voillequé, 1978b

Sources of radioiodine at boiling water reactors.

EPRI Report NP-495, (Ed. Science Applications, Inc.), Rockville, Md.,
USA, Nuclear Environmental Services Div., 414 pp.

Perkins, R.W., 1963

Physical and chemical form of I131 in fallout.

Health Physics 9, 1113-1122.

Price, C.E., N.H.Anderson, 1985

Uptake of chemicals from foliar deposits: effects of plant species
and molecular structure.

Pesticide Science 16, 369-377.

Rich, V., 1986

Fallout pattern puzzles Poles.

Nature 322, 765.

Ryaboshapko, A.G., 1986

De zwavelkringloop. Bronnen van zure regen.

Natuur en Techniek 5, 616-629

Salkl, H., Maeda O., 1982

Cleaning procedures for removal of external deposits from plant
surfaces.

Environmental Science and Technology 16, 536-539.

Sargent, J.A., 1965

The penetration of growth regulators into leaves.

Annual Review of Plant Physiology 16, 1-12.

Schuffelen, A.C., 1961

Radioactieve besmetting van bodem en gewas.

In: Mens, plant en dier en radioactieve besmetting, PUDOC, Wageningen,
97-110.

Sehmel, C.A., 1980

Particle and gas dry deposition: A review.

Atmospheric Environment 14, 983-1011.

Selders, A.A., F.P.Hungate, 1956

The foliar sorption of iodine by plants.

Ed. U.S. Atomic Energy Commission, Washington D.C., Health and
Biology, HW-44890, 11 pp.

Simmonds, J.R., G.S.Linsley, 1982

Parameters for modeling the interception and retention of deposits
from atmosphere by grain and leafy vegetables.

Health Physics 43, 679-691.

Simmonds, J.R., 1983

Estimation of contamination on plant surfaces due to deposition
of radionuclides from the atmosphere.

Translocation of radionuclides in cereal crops.

In: Ecological aspects of radionuclide release, P.J.Coughtrey, 73-79.

Singh, J.J., 1978

Trace elemental characteristics of aerosols emitted from municipal
incinerators.

NASA Technical memorandum 78630, NASA, Washington, 1-28.

Slatyer, R.O., I.C.McIlroy, 1961

Dew and water absorption by leaves.

In: Practical microclimatology (Ed. UNESCO), Commonwealth Scientific
and Industrial Research Organization Australia, Chapter 6, pp.1-24.

Smith, W.H., B.J.Staskawicz, 1977

Removal of atmospheric particles by leaves and twigs of urban trees:
Some preliminary observations and assessment of research needs.

Environmental Management 1, 317-330.

Smith, F.B., M.J.Clark, 1986

Radionuclide deposition from the Chernobyl cloud.

Nature 322, 690-691.

Steward, F.C., J.F.Sutcliffe, 1959

Plants in relation to inorganic salts.

In: Plant Physiology, a treatise (Ed. F.C.Steward) vol. 2, 429-434.

Thomas, A.J., J.M.Martin, 1986

First assessment of Chernobyl radioactive plume over Paris.

Nature 321, 817-819.

- Thompson, J.C., M.Howe, 1973
Retention and removal of ^{131}I from contaminated vegetables.
Health Physics 24, 345-351.
- Thrush, B.A., 1985
Reactions of air pollutants in the environment.
In: Air pollution and plants. Proceedings of the 2nd Europ.
Conference on Chemistry and the Environment, May 21-24, 1984,
Lindau (Ed. C. Troyanowsky), VCH, Weinheim, Germany, 87-96.
- Tukey, H.B., S.H.Wittwer, M.J.Bukovac, 1961
Absorption of radionuclides by aboveground plant parts and movement
within the plant.
Agricultural and Food Chemistry 9, 106-112.
- Vié le Sage, R., J.L.Colin, S.Roulette-Cadene, 1985
Meteorological effects on acid precipitation.
In: Air pollution and plants. Proceedings of the 2nd Europ.
Conference on Chemistry and the Environment, May 21-24, 1984,
Lindau (Ed. C. Troyanowsky), VCH, Weinheim, Germany, 21-38.
- Voillequé, P.G., 1979
Iodine species in reactor effluents and in the environment.
EPRI Report NP-1269, (Ed. Science Applications, Inc.),
Rockville, Md., USA, 204 pp.
- Voillequé, P.G., J.H.Keller, 1981
Air-to-vegetation transport of ^{131}I as Hypo-iodous acid (HOI).
Health Physics 40, 91-94.
- Wedding, J.B., R.W.Carlson, J.J.Stukel, F.A.Bazzaz, 1975
Aerosol deposition on plant leaves.
Environmental Science and Technology 9, 151-153.
- Weise, E., 1985
Opening lecture.
In: Air pollution and plants. Proceedings of the 2nd Europ.
Conference on Chemistry and the Environment, May 21-24, 1984,
Lindau (Ed. C. Troyanowsky), VCH, Weinheim, Germany, 10-17.
- Whitehead, D.C., 1984
The distribution and transformations of iodine in the environment.
Environmental International 10, 321-339.

Willard, D.H., W.J.Bair, 1961

Behaviour of I131 following its inhalation as a vapor and as a particle.

Acta Radiologica 55, 486-496.

Witherspoon, J.P., F.G.Taylor, 1970

Interception and retention of a simulated fallout by agricultural plants.

Health Physics 19, 493-499.

Witherspoon, J.P., F.G.Taylor, 1971

Retention of 1 to 44 μ simulated fallout particles by soybean and sorghum plants.

Health Physics 21, 673-677.

Wittwer, S.H., F.G.Teubner, 1959

Foliar absorption of mineral nutrients.

Annual Review of Plant Physiology 10, 13-32.

BIJLAGE 1

Halveringstijden van voor het kernreactorongeval in Tsjernobyl
van belang zijnde radionucliden

Radionucliden	Halveringstijd		Radionucliden	Halveringstijd	
Kr-85	10,7	a	I-133	20,9	h
Kr-85m	4,48	h	Xe-133*	5,25	d
Sr-89	50,5	d	Cs-134	753	d
Sr-90	28,8	a	Cs-136	13,1	d
Zr-95	64,0	d	Cs-137	30,17	a
Nb-95	35,0	d	Ba-140	12,8	d
Mo-99	2,75	d	La-140*	1,7	d
Tc-99m*	6,0	h	Ce-141	32,5	d
Ru-103	39,4	d	Ce-144	284	d
Ru-106	367	d	Np-237	2,1.10 ⁶	a
Rh-106*	29,8	s	Np-239	2,35	d
Ag-110m	252	d	Pu-239*	24100	a
Sb-125	2,7	a	Pu-238	87,74	a
I-131	8,04	d	Pu-240	6570	a
Te-129m	33,5	d	Pu-241	14,4	a
Te-132	3,25	d	Pu-242	376000	a
I-132*	2,28	h	Cm-242	162,8	d

* Dochter van het erboven vermelde radionuclide

a = jaar
d = dagen
h = uur