

Fütterungsversuch zur Bestimmung der Transferfaktoren und dem Aktivitätsaufbau und -abbau von störfallrelevanten Radionukliden über den Expositionspfad Futtermittel – Huhn – Hühnerei – Eigelb – Eiweiß für vorbeugende Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung

Von G. Haase und T. Vagt

Institut für Chemie und Technologie der Milch der Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel – Standort Kiel, Postfach 6069, D-24121 Kiel

1. Einleitung

Hintergrund dieses Fütterungsexperiments an Legehennen bilden Interventionsmaßnahmen bei Nahrungsmitteln nach kerntechnischen Unfällen. Mit der Nutzung der Kernenergie ist ein gewisses Risiko verbunden, dass es bei kerntechnischen Unfällen zum Austritt von größeren Mengen von radioaktiven Stoffen und deren Freisetzung in die Umgebung kommt. Dieses Risiko ist durch die Auslegung der Anlagen sowie durch auf einen sicheren Betrieb gerichtete technische, organisatorische und personelle Maßnahmen außerordentlich gering. Dennoch sind in den letzten Jahrzehnten einige schwerwiegenden kerntechnischen Notfälle vorgekommen, z.B. in Windscale/England (1958), in Three Mile Island/Pennsylvania, USA (1979) und in Tschernobyl/Ukraine (1986). Unabhängig von der geringen Eintrittswahrscheinlichkeit schwerer kerntechnischer Unfälle sind nach übereinstimmender, internationaler Auffassung Notfallschutzmaßnahmen zur Begrenzung und Minderung der Folgen unfallbedingter Radioaktivitätsfreisetzungen notwendig.

Strahlenschutzvorsorgemaßnahmen dienen nach einer eingetretenen Kontamination der Umwelt der Verminderung der Strahlenexposition der Bevölkerung mit dem Ziel, Spätfolgen wie den Anstieg von Krebs- und Leukämieerkrankungen zu verringern. Zu den wichtigsten Maßnahmen gehören die Verhinderung des Verzehrs zu hoch kontaminierter Lebensmittel und die Entsorgung kontaminierter Materialien.

Die Erfahrungen und Erkenntnisse der in der Bundesrepublik Deutschland mit der Bewältigung der Folgen des Reaktorunfalls in Tschernobyl befassten Institutionen gaben Anlass zu einer Neuregelung der Zuständigkeiten und der Organisation der Überwachung der Umweltradioaktivität. Diese erfolgte durch die Verabschiedung des Strahlenschutzvorsorgegesetzes Ende 1986, mit dem neben der Neufassung der Vorgaben für die Umweltüberwachung erstmals auch gesetzliche Regelungen für die Optimierung der Strahlenschutzvorsorge (1) getroffen wurden. Insbesondere wird in §6 des Gesetzes die Bundesregierung ermächtigt, Dosiswerte, Kontaminationswerte sowie die dazugehörigen Berechnungsverfahren festzulegen, um das Inverkehrbringen zu hoch kontaminierter Lebens- und Futtermittel zu verbieten. Damit sollten die nach Tschernobyl von einzelnen Bundesländern festgelegten unterschiedlichen Kriterien zukünftig verhindert werden. Die deutschen Regelungen wurden später durch eine Reihe von Verordnungen der EU ersetzt. Deren Besonderheit besteht darin, dass die Dosiswerte nicht mehr genannt werden, sondern dass die Radioaktivitätsgehalte (spezifische Aktivität) in verschiedenen Nahrungsmittelgruppen festgelegt werden, oberhalb derer das Inverkehrbringen von

Lebens- und Futtermitteln verboten wird. Diese Werte werden EU-Höchstwerte (2) genannt; sie sind nachfolgend wiedergegeben. Die angegebenen Werte werden von der EU-Kommission nach einem Unfall unverzüglich in Kraft gesetzt. Sie gelten dann längstens drei Monate und sind für alle Mitgliedsländer der EU verbindlich. Während der vorläufigen Geltung findet eine Überprüfung statt, ob die Werte der Situation angemessen sind; sie werden dann ggf. angepasst.

Tab. 1: Im Anschluss an einen nuklearen Unfall mit Freisetzung von Radionukliden treten die Höchstwerte in Kraft, die in der Verordnung (2) Nr. 2218/89 aufgeführt sind. Folgende Tabelle findet sich im Anhang der VO. EU-Höchstwerte der Aktivitätskonzentration in Nahrungsmitteln (Bq/kg)

	Nahrungsmittel (1)				
	Nahrungsmittel für Säuglinge	Milcherzeugnisse	Andere Nahrungsmittel außer Nahrungsmittel von geringer Bedeutung	Flüssige Nahrungsmittel	Nahrungsmittel von geringer Bedeutung
Strontium-Isotope, insbesondere Sr 90	75	125	750	125	7500
Iod-Isotope, insbesondere I 131	150	500	2000	500	20000
Alpha-Teilchen emittierende Plutoniumisotope und Transplutoniumelemente, insbesondere Pu 239, Am 241	1	20	80	20	800
Alle übrigen Nuklide mit Halbwertszeiten von mehr als 10 Tagen, insbesondere Cs 134, Cs 137	400	1000	1250	1000	12500

In Deutschland wurde ein Maßnahmenkatalog (3) erstellt und mehrfach – zuletzt 2006/07 – überarbeitet. Im Maßnahmenkatalog werden die Maßnahmen der Strahlenschutzvorsorge und des Katastrophenschutzes aufgeführt und in einer Weise präsentiert, dass bei bestimmten Informationen über die bevorstehende oder tatsächliche Umweltkontamination die möglicherweise geeigneten Maßnahmen ausgesucht werden können. Unter anderem wird auch die Frage nach der Kontamination tierischer Produkte gestellt und der Möglichkeit, die Radioaktivität in tierischen Produkten niedrig zu halten bzw. zu reduzieren. In Deutschland wurden im Jahr 2005 ca. 32 Millionen Legehennen gehalten die ca. 9,25 Milliarden Eier gelegt haben. Davon werden 50 % von privaten Haushalten verbraucht, 30 % in der lebensmittelverarbeitenden Industrie und 20 % in Großküchen

und Bäckereien. Eier sind Bestandteil von Suppen, Saucen, Cremes Puddings, Kartoffelgerichten und Backwaren. Das Ei übernimmt Funktionen als Lockerungs- und Triebmittel, als Bindemittel, Emulgier- und Klebemittel, als Klärmittel aber auch als Färbemittel.

Da Eier nicht auf die Dauer haltbar sind, sie jedoch z.B. in Bäckereien oder anderen Branchen der Lebensmittelindustrie ständig vorrätig sein müssen, werden sie auch in verarbeiteter Form angeboten. Zu den typischen Eiprodukten zählen Eipulver, Eikonzentrat, Eigelee oder Tiefkühleier. Genutzt werden die Eiprodukte zur Herstellung von Back- und Süßwaren, Teigwaren, Mayonnaisen, Salatsoßen, Trockensuppen, Fleischprodukten, Eiscreme sowie Eierlikör.

2. Durchführung des Versuchs

2.1 Legehennen

Um der Relevanz dieses Nahrungsmittels Rechnung zu tragen setzt nun das Forschungsprojekt mit der Bestimmung der Transferfaktoren und dem Aktivitätsaufbau und -abbau von störfallrelevanten Radionukliden über den Expositionspfad Futtermittel – Huhn – Hühnererei für vorbeugende Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung ein.

Bei dem Tierversuch handelt es sich ausschließlich um einen Fütterungsversuch, bei dem die Hühner ein leicht radioaktiv markiertes Futter (weit unter den Freigrenzen und innerhalb der EU-Höchstwerte für die entsprechenden Nuklide) erhalten.

Für den Versuch wurden Legehennen (Legehybriden), Weißleger und Braunleger, wie sie in kommerziellen landwirtschaftlichen Betrieben gehalten werden, eingesetzt. 20 Legehennen wurden in zwei Gruppen (braun/weiß) zu je 10 Tieren zusammengefasst, die jeweils mit gleicher Aktivitäten versorgt wurden. Die Tiere wurden einzeln in Käfigen mit Sitzstange, die sich sehr bewährt haben, gehalten. Die Käfige waren so angeordnet, dass die Hennen zu mindestens einer Nachbarin direkten Kontakt aufnehmen konnten, so dass ein gewisses soziales Verhalten zwischen den Tieren ermöglicht wurde.

Die Legehennen wurden auf dem Versuchsgut Schädtkb der Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel in entsprechenden Käfigen und Räumlichkeiten untergebracht und sind für die Dauer des Versuchs dort geblieben. Die Tiere wurden unter tierärztlicher Leitung gehalten. Der Versuch begann im November 2005 und dauerte ca. 10 Monate, so dass die Experimente im September 2006 beendet werden konnten.

Im Zeitraum, in dem der Versuch durchgeführt wurde, wurde natürlich auch die regelmäßige Eiablage kontrolliert und protokolliert. Es zeigte sich, dass jedes Huhn täglich ein Ei gelegt hatte, so dass bei jeweils 10 Hühnern immer genügend Probenmaterial zur Untersuchung zur Verfügung stand.

2.2. Kontaminieren der Futterproben

Für das Fütterungsexperiment wurde nach mehreren Tests mit unterschiedlichen Futtermischungen ein Alleinfutter in Pelletform gewählt, da sich dieses Futter gut kontaminieren lässt und kontrolliert und komplett von den Hühner aufgenommen wird. Futter in Form von Mehl verklumpte beim Spiken mit in wassergelösten Radionukliden. Zusätzlich gelang es den Hühnern nicht, das Futtermehl komplett aus den Futtertrögen herauszubekommen, so dass die Aktivitäten nur unvollständig aufgenommen wurden.

Das Spiken der Pellets wurde in einer Plastikwanne durchgeführt, indem das Futter ausgebreitet und mit Hilfe einer Pipette die wässrige Lösung aufgebracht wurde. Nach dem Trocknen der Pellets wurde das Futter in einen Taumler gebracht und dort mehrere

Stunden gemischt. Hierbei entstand durch Abrieb mit der Zeit eine kleine Menge Futterstaub, der durch Absieben aus der Probe entfernt wurde. Die Mengen an Futterpellets und Aktivität wurden so berechnet, dass in der Regel pro Gramm Futter 1 Bq Aktivität zu finden war. Da jedes Huhn pro Tag 15 Bq erhalten sollte, wurden dementsprechend 15 Gramm Proben abgewogen. Diese Probe wurde morgens in die zuvor gesäuberten Futtertröge gegeben und gewartet, bis alle Hühner das Futter aufgenommen hatten. Erst danach haben die Hühner ihre tägliche Ration unkontaminiertes Futter erhalten.

2.3 Beschreibung der Nuklidstandards

Bei den verwendeten Nuklidstandards handelte es sich bei Cs-137 und Am-241 um Standards der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig und bei Sr-85 und I-131 um Standards der Perkin Elmer, Life and Analytical Sciences. Für den Versuch wurden die Aktivität so gewählt, dass die Hühner täglich 15 Bq in einer 15 g Futterprobe bekommen haben. Die Nuklidlösung wurde in 500 ml Wasser gegeben und mit einer Pipette auf die Futterpellets verteilt, die anschließend getrocknet und gemischt wurden, so dass ein Höchstmaß an Homogenität erreicht wurde. Kontrollmessungen der Aktivität in den 15 g Futterproben haben die gute Verteilung der Aktivität und die Homogenität der Proben bestätigt.

2.4 Ablauf des Versuchs

Die Legehennen wurden zunächst über einen Zeitraum von 8 Wochen mit unkontaminiertem Futter versorgt, um die Verhältnisse im Normalfall zu dokumentieren.

Nach dieser Eingewöhnungszeit wurden die beiden Gruppen mit je 15 Bq pro Tag radioaktiven Cäsiums versorgt, die Eier gammaspektrometrisch untersucht und der Aufbau bzw. Abbau der Aktivität in den Eiern ermittelt. Nachdem die Aktivität des Cäsiums in den Legehennen abgeklungen war, wurde Strontium und danach Jod in gleicher Höhe und gleicher Weise an den selben Hühnern untersucht. Zuletzt wurden vier Tiere mit 15 Bq Americium im Futter pro Tag versorgt. Die Nuklide wurden einzeln, also nicht als Gemisch verfüttert, um so aussagekräftige Ergebnisse zu erzielen. Die Gabe der entsprechenden Aktivität pro Nuklid ist so geplant, dass es zu einem Gleichgewicht zwischen Aktivitätsaufnahme und Aktivitätsabgabe kommt. Nach Einstellung des Gleichgewichtes werden die Messungen bis zum Abklingen der Aktivität fortgesetzt.

In diesem Fütterungsversuch sollen die Transferfaktoren für radioaktives Jod, Strontium, Cäsium und Americium vom Futter über das Huhn in das Hühnerei, getrennt nach Eiweiß und Eigelb für den Einsatz kleiner Aktivitäten bestimmt werden. Die Untersuchungen geben Aufschluss über den Aufbau der Aktivitäten und lassen so eine zeitliche Bestimmung für das Gleichgewicht zu. Hiermit ist man in der Lage bei einem Störfall einer kerntechnischen Anlage über Prognosen, in die die Transferfaktoren einfließen, eine Aussage über die zu erwartende radioaktive Kontamination der Hühnereier zumachen. Mit diesen Prognosen können dann vorbeugende Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung eingeleitet werden.

Es werden hauptsächlich die Eier gesammelt und gammaspektrometrisch analysiert. Zur Bilanzierung wurde unter anderem die Aktivität im Kot der Hühner und in der Schale der Eier bestimmt. Versuchsweise wurde auch ein ganzes Huhn (nur Cs-137) mit Hilfe eines Gammadetektors mit entsprechender Auswerteeinheit auf dem Versuchsgut ausgemessen. Alle anderen Messungen wurden bis auf wenige Kotmessungen direkt im Labor der Leitstelle durchgeführt.

Das kontaminierte Futter wurde so lange den Hühnern gegeben, bis sich ein Gleichgewicht zwischen Aktivitätsaufnahme und -abgabe eingestellt hatte. In diesem Gleichgewichtszustand blieben die Tiere einige Tage durch entsprechende Fütterung, bevor das kontaminierte Futter wieder abgesetzt wurde. So war man in der Lage, die Zeit für den Aufbau und den Abbau der Aktivität festzustellen und im Gleichgewicht einen Transferfaktor für diese Versuchsanordnung zu bestimmen. Hierbei wurden Eigelb und Eiweiß getrennt untersucht, da die Industrie das Ei dementsprechend behandelt. Zusätzlich wurden alle zwei Tage eine Kotprobe der Hühner genommen, um so eine Kontrolle der Aktivitäten durchführen zu können. Anfänglich durchgeführte Messungen am ganzen Huhn erwiesen sich als nicht sehr aussagekräftig, so dass diese Messungen nur bei Cs-137 durchgeführt wurden.

2.5 Beschreibung der Gammamessung

Die eingesammelten Eier wurden täglich gammaspektrometrisch gemessen. Hierzu wurden die Eier mittels eines Eitrenners in Eiweiß und Eigelb separiert und in 150 ml Küvetten gegeben, die dann in einer geeichten Messgeometrie mit bis zu 24 Stunden Messzeit erfasst wurden. Folgende Volumina mit 50, 100 und 150 Millilitern wurden in den Küvetten verwendet, da das Probenmaterial, besonders bei Am-241 mit vier Hühnern, nicht immer für eine Füllung von 150 ml ausreichte. Die Efficiency der Gammadetektoren lag bei ca. 40 %. Die Auswertung der Gammaskpektren wurde mit den Programmen Genie 2000 und Interwinner durchgeführt.

3. Ergebnisse und Auswertung

Die Diagramme wurden auf der Y-Achse mit Bq/l angegeben, da nicht immer gleiche Mengen von Eigelb/Eiweiß zur Verfügung standen und daher eine Normierung auf 1 Liter nötig war. Möchte man nun einen Transferfaktor für das Hühnerei bestimmen, so muss hier eine Gewicht von 60 g pro Ei angenommen werden.

In den jeweiligen Fütterungsperioden wurden zusätzlich einige Kotproben genommen. Es wird in den Hühnergruppen von einer mittleren täglichen Kotmenge von 260g (weiß) und 290g (braun) pro Huhn ausgegangen. Da bei Hühnern sowohl flüssige als auch feste Bestandteile über die Kloake den Körper verlassen, war die Probennahme etwas ungenau, da nur die festen Bestandteile, die mit einem Spatel genommen werden konnten, von uns gemessen wurden. Zudem war die Probennahme relativ willkürlich, so dass eine quantitative Aussage nicht möglich ist. Da etwa 30 % Flüssigkeit in den Kotschalen zu finden war, könnte noch ein Korrekturfaktor in der Größenordnung von 1,3 zum Tragen kommen. Die Messungen der Aktivität im Kot sollten nur eine qualitative bzw. orientierende Größe wiedergeben. Wenige Messungen waren aus technischen Gründen nicht auszuwerten und sind daher nicht in den Diagrammen verwertet worden.

Die Aktivitätsverläufe in Abb. 1 und 2 zeigen ein sehr ähnliches Verhalten. Der Verlauf der Kurven für Eiweiß und Eigelb der beiden Hühnergruppen liegen auf gleichem Niveau.

Aus den Verläufen lässt sich recht gut die Zeit für den Aktivitätsanstieg bis zur Sättigung und von der Sättigung bis zum Aktivitätsabbau ablesen. Ebenfalls lässt sich ein Transferfaktor im Sättigungsbereich für Cs-137 vom Futter über das Huhn in das Ei bzw. in das Eigelb/Eiweiß errechnen. Für die beiden Gruppen und das Cs-137 wäre nun die Aktivität aus den Diagrammen 1a und 2a zu nehmen: Eigelb 4,1-4,2 Bq/l mit dem Mittelwert 4,15 Bq/l und Eiweiß 7,1-8,2 Bq/l mit einem Mittelwert von 7,65 Bq/l. Daraus errechnet sich, bei einer täglichen Gabe von 15 Bq, ein Transferfaktor für Eigelb von 4,15 Bq/l / 15Bq/d gleich

0,28 d/l. Für Eiweiß erhält man einen Faktor $7,65\text{Bq/l} / 15\text{Bq/l}$ gleich 0,51 d/l. Somit erhält man für das gesamte Ei, unter der mengenmäßigen Berücksichtigung, dass Eigelb mit 33% und Eiweiß mit 67% im Ei vorhanden ist, eine Aktivität von 6,45 Bq/l. Bei einer täglichen Aktivitätszufuhr von 15 Bq Cs-137 ergibt sich aus diesen Werten eine Transferfaktor von 0,43 d/l. Auf das einzelne Hühnerei mit 60 g bezogen erhält man eine Aktivität von 0,39 Bq/Ei. Daraus wird ein Transferfaktor von 0,026 d/Ei für Cs-137 für diese Versuchsanordnung bestimmt.

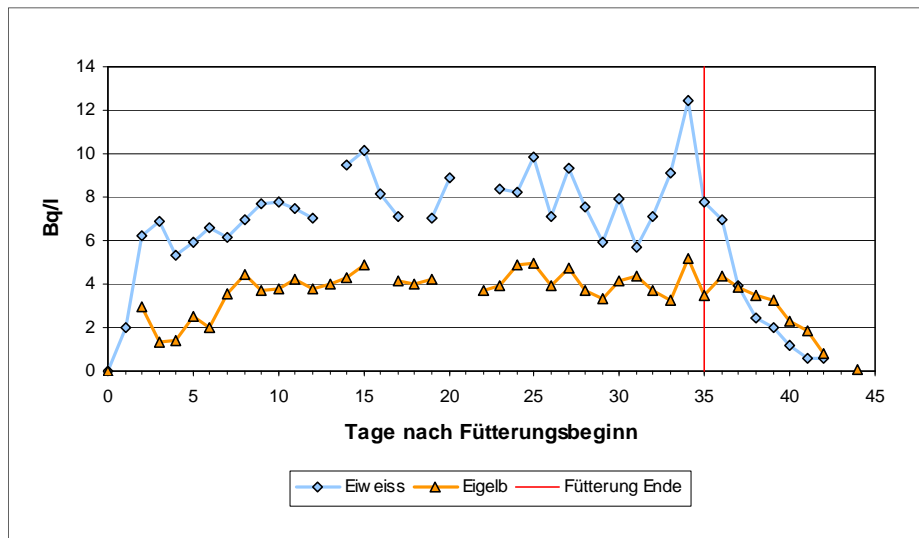


Abb. 1: Aktivitätsverlauf von Cs-137 im weißen Hühnerei

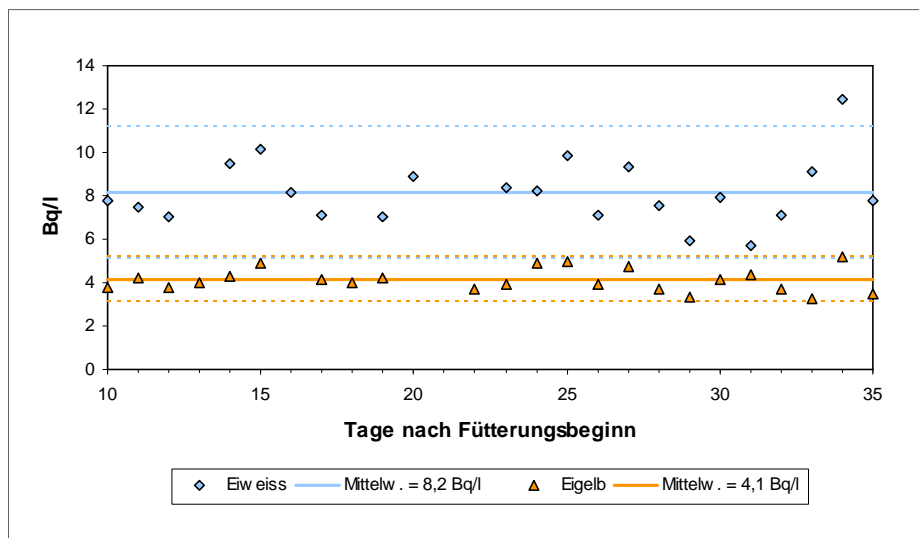


Abb.1a: Gleichgewicht von Cs-137 im weißen Hühnerei

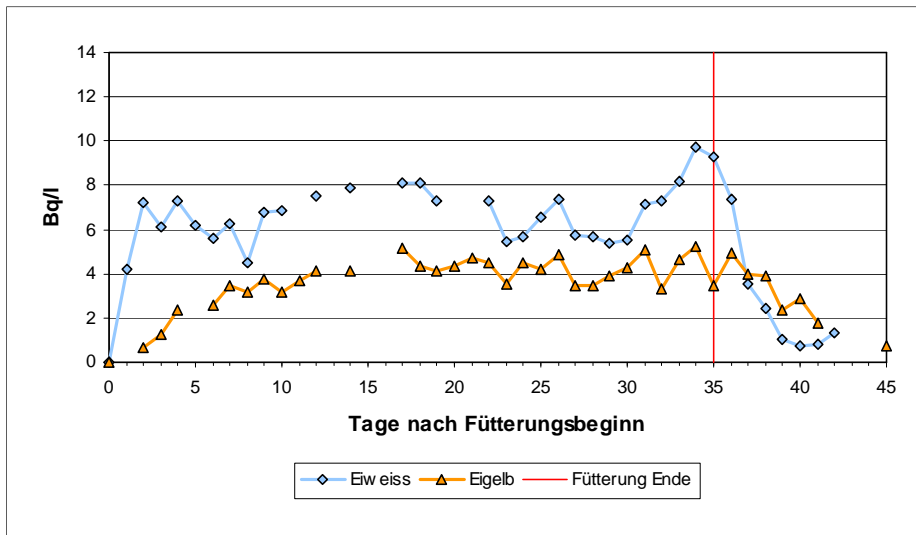


Abb. 2: Aktivitätsverlauf von Cs-137 im braunen Hühnerei

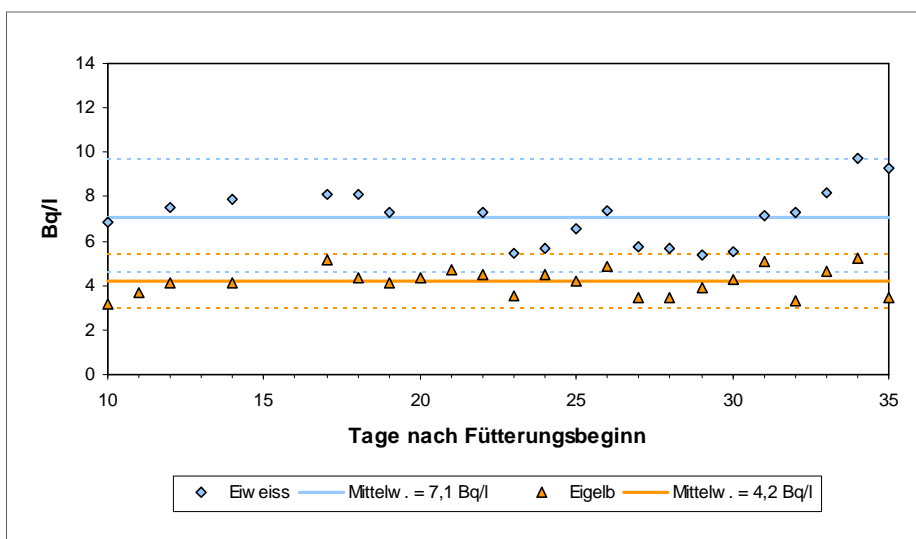


Abb. 2a: Gleichgewicht von Cs-137 im braunen Hühnerei

Aus den Diagrammen lässt sich auch recht gut die Zeitspanne für den Aktivitätsaufbau und Aktivitätsabbau ablesen. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität eine Zeitspanne von 7-8 Tagen. Der Abbau liegt mit 7-8 Tagen in der gleichen Größenordnung.

Während der Cs-137 Fütterungsperiode bestanden die Kotproben aus Teilproben der weißen und braunen Hühner. Hier zeigt sich, dass die Aktivität tatsächlich zum überwiegenden Teil über den Kot ausgeschieden wird. Trotz der bereits genannten Probleme

bei der Kotprobennahme zeigt aber das Diagramm eine recht gute zeitliche Korrelation zum Verlauf der Messungen an den Eiern. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität im Kot eine Zeitspanne von 7-8 Tagen. Der Abbau liegt mit 7-8 Tagen in der gleichen Größenordnung.

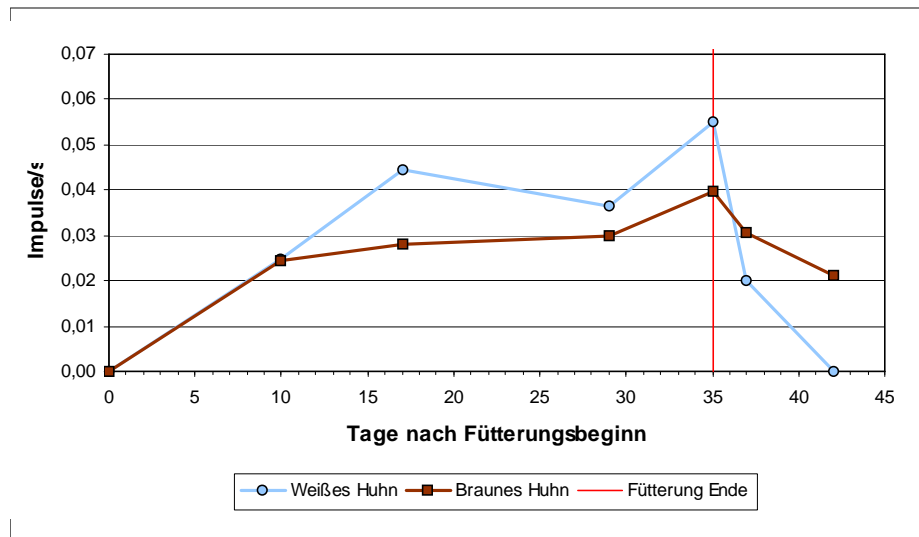


Abb.4: Aktivitätsverlauf von Cs-137 im Huhn

Nur im Rahmen der Cs-137 Verfütterung wurde versucht, eine Ganzkörpermessung der Hühner durchzuführen. Die Aktivität im Huhn wird mit Hilfe eines Gammadetektors mit entsprechender Auswerteeinheit am lebenden Huhn vor Ort ermittelt. Eine Eichung der Messanordnung war nicht möglich, so dass wir nur Relativwerte gemessen haben. In Abb. 4 sieht man recht gut den Aktivitätsanstieg im Huhn, der nach ca. 12 Tagen in ein Gleichgewicht kommt und Innerhalb von 7-10 Tagen wieder abgebaut wird. Dieses Verhalten wird auch von Abb.3 recht gut wiedergegeben.

In den Eierschalen wurden nur Nachweisgrenzen des Cs-137 gemessen, die nicht weiter ausgewertet wurden.

Die Aktivitätsverläufe in Abb. 5 und 6. zeigen zwischen den Hühnergruppen ein sehr ähnliches Verhalten. Sowohl die Kurven für Eiweiß und Eigelb der beiden Hühnergruppen liegen auf gleichem Niveau. Allerdings sind hier die Verhältnisse im Vergleich zu Cs-137 von Eigelb zu Eiweiß umgedreht. Es wird hier im Eigelb der höhere Wert für Sr-85 ermittelt. Aus den Verläufen lässt sich recht gut die Zeit für den Aktivitätsanstieg bis zur Sättigung und von der Sättigung bis zum Aktivitätsabbau ablesen. Ebenfall lässt sich ein Transferfaktor im Sättigungsbereich für Sr-85 vom Futter über das Huhn in das Ei bzw. in das Eigelb/Eiweiß errechnen. Für die beiden Gruppen und das Sr-85 wäre nun die Aktivität aus den Diagrammen zu nehmen: Eigelb im Mittel 7,2 Bq/l und Eiweiß im Mittel 1,9 Bq/l. Daraus errechnet sich, bei einer täglichen Gabe von 15 Bq, ein Transferfaktor für Eigelb von $7,2 \text{ Bq/l} / 15 \text{ Bq/d}$ gleich 0,48 d/l. Für Eiweiß erhält man einen Faktor $1,9 \text{ Bq/l} / 15 \text{ Bq/l}$ gleich 0,13 d/l. Somit erhält man für das gesamte Ei, unter der mengenmäßigen Berücksichtigung, dass Eigelb mit 33% und Eiweiß mit 67% im Ei vorhanden ist, eine Aktivität von 3,7 Bq/l. Bei einer täglichen Aktivitätszufuhr von 15 Bq Sr-85 ergibt sich

aus diesen Werten eine Transferfaktor von 0,25 d/l. Auf das einzelne Hühnerei mit 60 g bezogen erhält man eine Aktivität von 0,22 Bq/Ei und somit einen Transferfaktor von 0,015 d/Ei für Sr-85 bei dieser Versuchsanordnung.

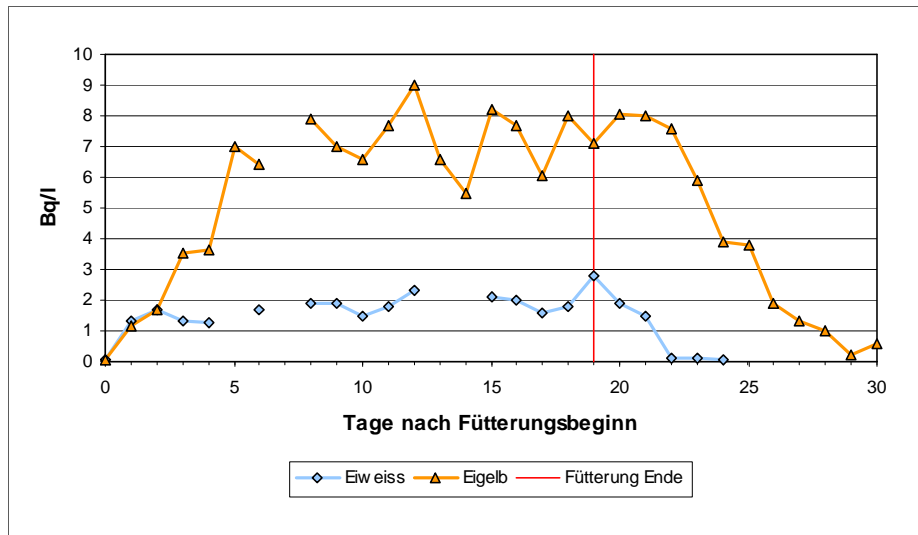


Abb. 5: Aktivitätsverlauf von Sr-85 im weißen Hühnerei

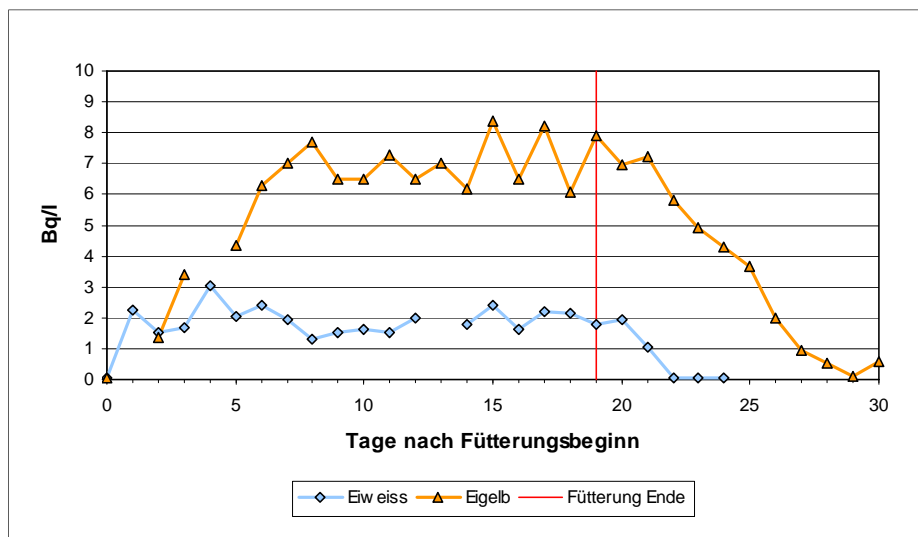


Abb. 6: Aktivitätsverlauf von Sr-85 im braunen Hühnerei

Aus den Diagrammen lässt sich auch recht gut die Zeitspanne für den Aktivitätsaufbau und Aktivitätsabbau ablesen. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität im Eiweiß ein Zeitspanne von 3-4 Tagen und im Eigelb von 8 Tagen. Der Abbau liegt für das Eiweiß bei 3 Tagen und für das Eigelb bei 9 Tagen.

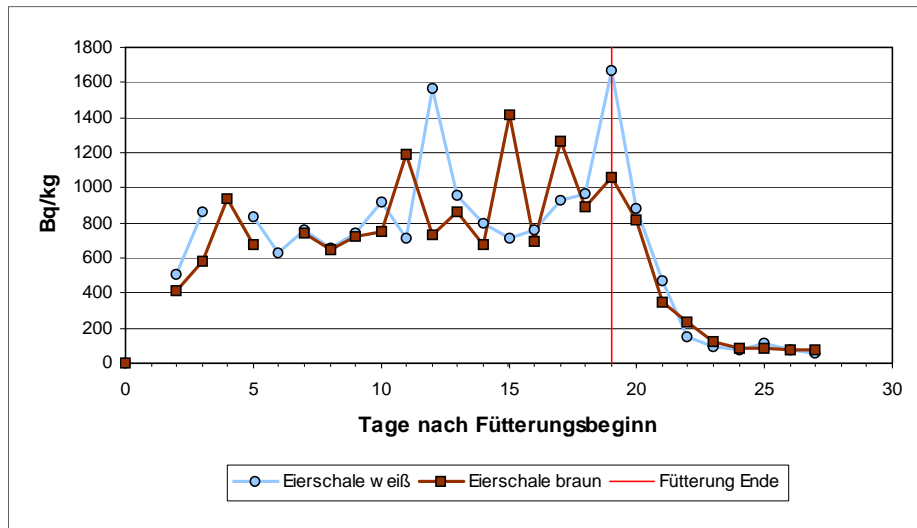


Abb. 7: Aktivitätsverlauf von Sr-85 in der Eierschale

Da Strontium sich sehr ähnlich wie Kalzium verhält, wurden natürlich auch die Eierschalen gammaspektrometrisch vermessen. Im Mittel werden im Gleichgewicht für die braunen Eierschalen ein Wert von 940 Bq/kg und für die Weißen Eierschalen ein Wert von 908 Bq/kg gemessen. Bei einer Annahme von 2 g Eierschale pro Ei gehen also ca. 2 Bq Sr-85 in die Eierschale.

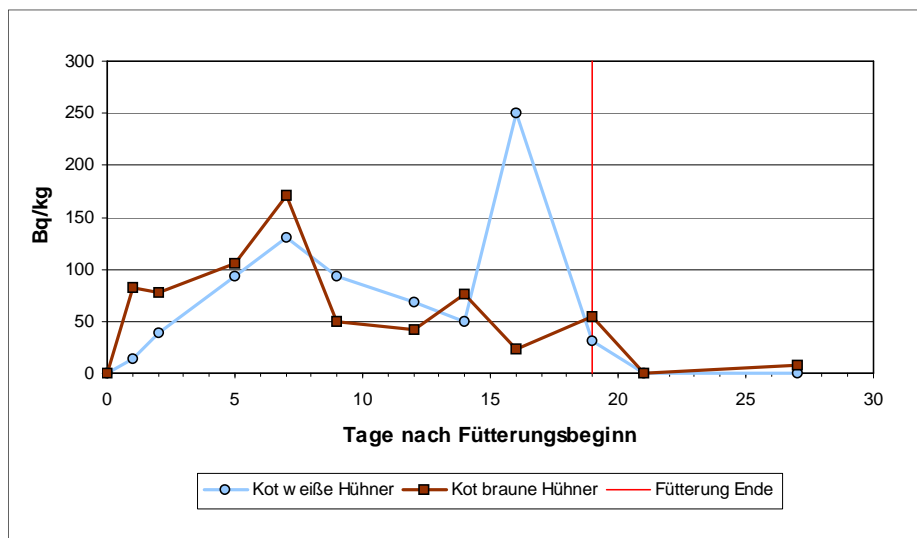


Abb. 8: Aktivitätsverlauf von Sr-85 im Hühnerkot

Auch während der Sr-85 Fütterungsperiode wurden zusätzlich einige Kotproben genommen, die ausschließlich von einem weißen und einem braunen Huhn stammen.

Hier zeigt sich, dass die Aktivität tatsächlich zum überwiegenden Teil über den Kot ausgeschieden wird. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität im Kot eine Zeitspanne von 7-8 Tagen. Der Abbau ist mit 2 Tagen recht kurz.

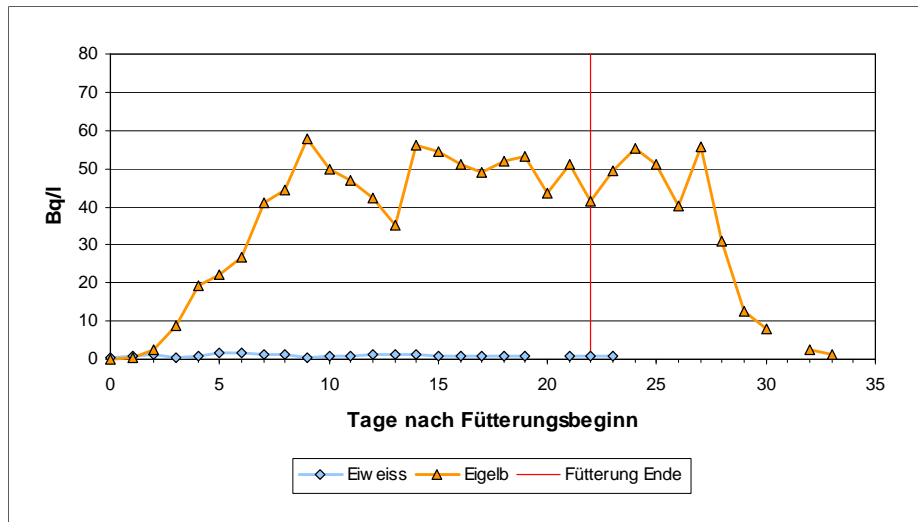


Abb. 9: Aktivitätsverlauf von I-131 im weißen Hühnerei

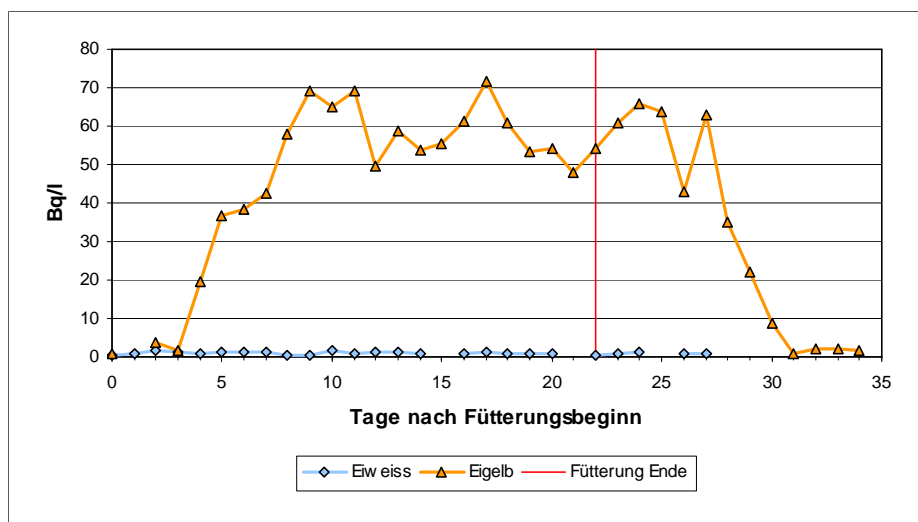


Abb. 10: Aktivitätsverläufe von I-131 im braunen Hühnerei

Die Aktivitätsverläufe in Abb. 9 und 10. zeigen zwischen den Hühnergruppen ein sehr ähnliches Verhalten. Sowohl die Kurven für Eiweiß und Eigelb der beiden Hühnergruppen liegen nahezu auf gleichem Niveau. Allerdings sind hier die Verhältnisse im Vergleich zu den vorher genannten Nukliden von Eigelb zu Eiweiß drastisch verschoben. Die Aktivität

des I-131 wird fast ausschließlich im Eigelb ermittelt. Im Eiweiß wurden für I-131 nur geringe Mengen ermittelt, die darauf schließen lassen, dass der Transfer in das Eiweiß sehr gering ist.

Aus den Verläufen lässt sich recht gut die Zeit für den Aktivitätsanstieg bis zur Sättigung und von der Sättigung bis zum Aktivitätsabbau ablesen. Ebenfalls lässt sich ein Transferfaktor im Sättigungsbereich für den Weg vom Futter über das Huhn in das Ei bzw. in das Eigelb/Eiweiß errechnen. Für die beiden Gruppen und das I-131 wäre nun eine mittlere Aktivität aus den Diagrammen zu nehmen: Eigelb im Mittel 54 Bq/l und Eiweiß im Mittel 0,95 Bq/l.

Daraus errechnet sich, bei einer täglichen Gabe von 15 Bq, ein Transferfaktor für Eigelb von $54 \text{ Bq/l} / 15 \text{ Bq/d}$ gleich 3,6 d/l. Für Eiweiß erhält man einen Faktor $0,95 \text{ Bq/l} / 15 \text{ Bq/d}$ gleich 0,06 d/l. Somit erhält man für das gesamte Ei, unter der mengenmäßigen Berücksichtigung, dass Eigelb mit 33% und Eiweiß mit 67% im Ei vorhanden ist, eine Aktivität von 19 Bq/l. Bei einer täglichen Aktivitätszufuhr von 15 Bq I-131 ergibt sich aus diesen Werten ein Transferfaktor von 1,27 d/l. Auf das einzelne Hühnerei mit 60 g bezogen erhält man eine Aktivität von 1,14 Bq/Ei, wodurch ein Transferfaktor von 0,076 d/Ei I-131 für diese Versuchsanordnung bestimmt werden kann. Das bedeutet, dass das Eiweiß für dieses Nuklid nahezu aktivitätsfrei ist.

Aus den Diagrammen lässt sich auch recht gut die Zeitspanne für den Aktivitätsaufbau und Aktivitätsabbau im Eigelb ablesen. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität ein Zeitspanne von 9 Tagen. Der Abbau liegt mit 9 Tagen in der gleichen Größenordnung.

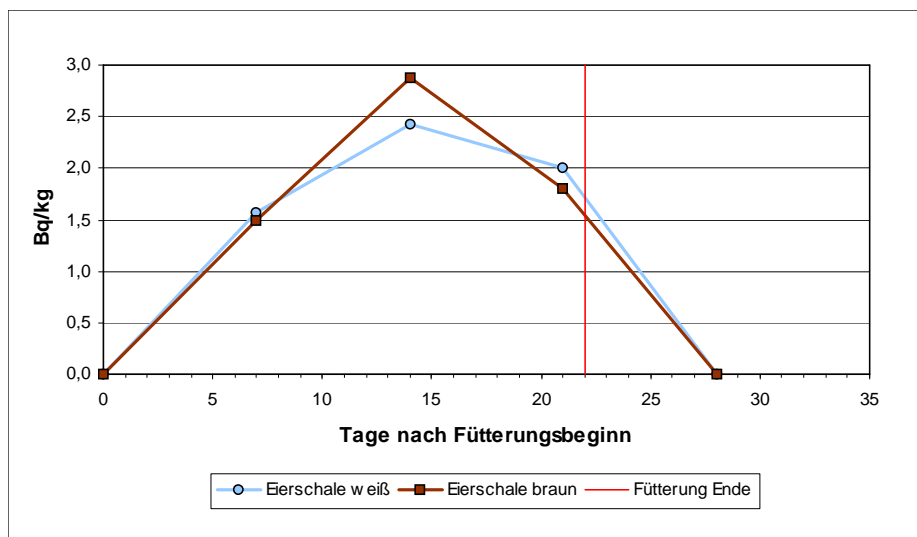


Abb. 11: Aktivitätsverlauf von I-131 in der Eierschale

Für das I-131 wurden auch die Eierschalen gammaspektrometrisch vermessen. Der Höchstwert im Gleichgewicht für die braunen Eierschalen liefert einen Wert von 2,9 Bq/kg und für die weißen Eierschalen ein Wert von 2,4 Bq/kg. Bei einer Annahme von 2 g Eierschale pro Ei gehen also ca. 0,0048 - 0,0059 Bq I-131 in die Eierschale, so dass hier der Transfer vernachlässigbar klein ist.

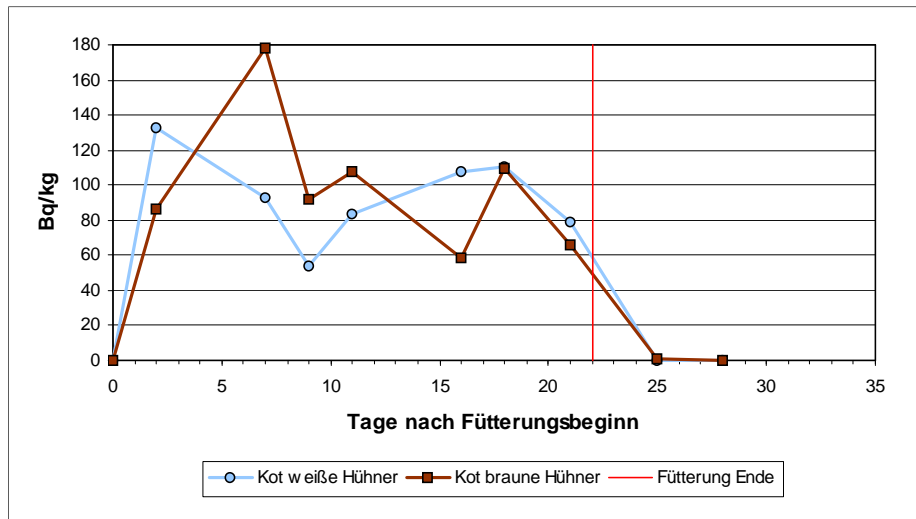


Abb. 12: Aktivitätsverlauf von I-131 im Hühnerkot

Auch während der I-131 Fütterungsperiode wurden analog zu den anderen Versuchsreihen Kotproben genommen. Auch hier zeigt sich, dass die Aktivität tatsächlich zum überwiegenden Teil über den Kot ausgeschieden wird. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität im Kot eine Zeitspanne von 3 Tagen. Der Abbau ist mit 3 Tagen recht kurz.

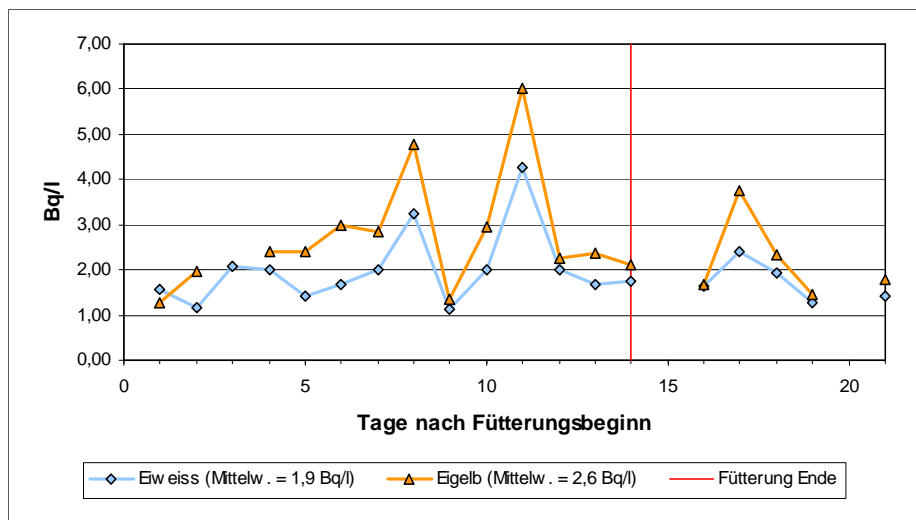


Abb. 13: Am-241 im weißen Hühnerei (Nachweisgrenzen)

Die Aktivitätsverläufe für Am-241 wurde nur für vier weiße Hühner aufgezeichnet, die dieses Nuklid erhalten haben. Leider konnten nicht mehr Hühner mit Am-241 versorgt werden, da das Experiment mit den Aktivitäten unterhalb der Freigrenzen verlaufen sollte.

Im Ei wurden für Am-241 nur Nachweisgrenzen ermittelt, die darauf schließen lassen, dass das Am-241 keinen bzw. nur einen sehr kleinen Transfer in das Ei erfährt. Aus den Verläufen lässt sich keine Zeit für den Aktivitätsanstieg bis zur Sättigung und von der Sättigung bis zum Aktivitätsabbau ablesen. Ebenfalls lässt sich kein Transferfaktor im Sättigungsbereich für den Weg vom Futter über das Huhn in das Ei bzw. in das Eigelb/Eiweiß errechnen. Die Diagramme wurden auf der Y-Achse mit Bq/50ml angegeben, da keine größeren Mengen von Eigelb/Eiweiß zur Verfügung standen.

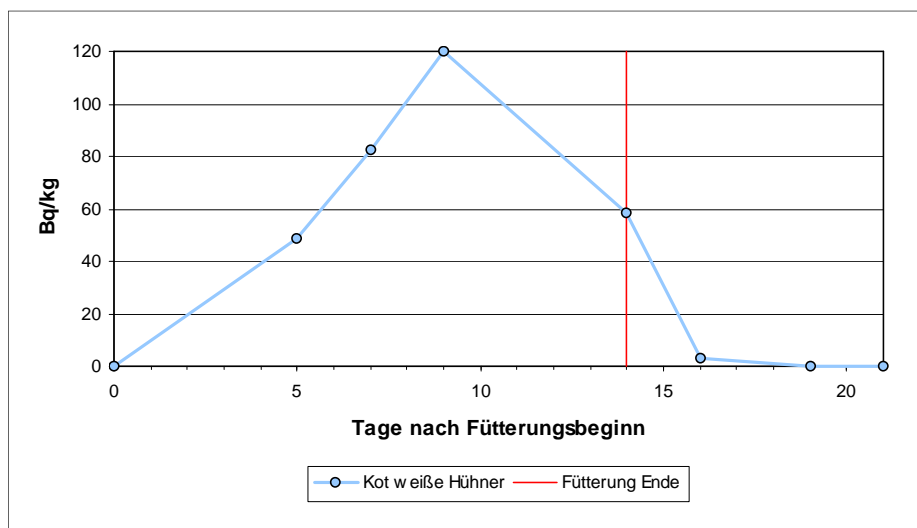


Abb. 14: Aktivitätsverlauf von Am-241 im Hühnerkot

In der Am-241 Fütterungsperiode wurden analog zu den vorhergehenden Versuchen Kotproben genommen. Auch hier zeigt sich, dass die Aktivität tatsächlich zum überwiegenden Teil über den Kot ausgeschieden wird. Somit ergibt sich für den Aufbau der Aktivität im Kot eine Zeitspanne von 6 Tagen. Der Abbau ist mit 3 Tagen recht kurz.

3.1 Tabellarische Zusammenstellung der Endergebnisse

Tab. 3: Zusammenfassungen der Aktivitätsauf- und Abbaueiten und der Transferfaktoren für das Ei

Nuklid	Aktivitätsaufbau Eiweiß in Tagen	Aktivitätsaufbau Eigelb in Tagen	Aktivitätsabbau Eiweiß in Tagen	Aktivitätsabbau Eigelb in Tagen
Cs-137	7,5	7,5	7,5	7,5
Sr-85	3,5	8	3,5	8
I-131	-	9	-	9
Am-241	—	—	—	—

- Nicht auswertbar

— Es wurden nur Nachweisgrenzen gemessen, die nicht ausgewertet wurden

3.2 Zusammenstellung der Transferfaktoren

Anzahl der Tage zum Erreichen des Gleichgewichts zwischen Aktivitätsaufnahme und -abgabe in der Literatur und aus diesem Versuch

Tab. 4: Braune Eier und deren Aktivitätsmittelwerte im Gleichgewicht

Nuklid	Eigelb Bq/l	Eiweiß Bq/l	Ei Bq/l
Cs-137	4,2	7,1	6,1
Sr-85	7,1	1,8	3,6
I-131	58,8	0,9	20,4
Am-241	—	—	—

Tab. 5: Weiße Eier und deren Aktivitätsmittelwerte im Gleichgewicht

Nuklid	Eigelb Bq/l	Eiweiß Bq/l	Ei Bq/l
Cs-137	4,1	8,2	6,8
Sr-85	2,0	7,3	5,5
I-131	48,9	1,0	17,0
Am-241	—	—	—

Tab. 6: Transferfaktor pro gegebener Aktivität pro Tag zur Wiederfindungsrate in 1 kg Ei im Gleichgewicht für braune und weiße Eier

Nuklid	Eigelb Bq/l	Eiweiß Bq/l	Ei Bq/l
Cs-137	0,28	0,51	0,39
Sr-85	0,48	0,13	0,22
I-131	3,60	0,07	1,27
Am-241	—	—	—

— Nur Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Im Vergleich mit den in der Literatur angegebenen Transferfaktor wird für Cäsium ein um 50 % größerer Wert ermittelt. Für Strontium liegen der ermittelte Transferfaktor ca. 25 % und für Jod ca. 50 % niedriger. Aus der Tabelle 5 erkennt man recht schnell, dass die Aktivitäten für die entsprechenden Nuklide im Eiweiß und Eigelb ungleich verteilt sind. Für Cäsium wird im Eiweiß doppelt soviel Aktivität wie im Eigelb gefunden. Für Strontium dagegen werden im Eigelb viermal höhere Werte ermittelt und für Jod geht die gesamte Aktivität in das Eigelb.

Daraus lässt sich recht gut eine Möglichkeit der industriellen Wertschöpfung des Eiweißes erkennen, da in einem Intensivfall Jod nur im Eigelb zu finden ist.

4. Legeleistung und Transferfaktor

Die Legeleistung der Hühner hat sich in den letzten Jahrzehnten doch sehr gesteigert. Waren in den 80-ziger Jahren Legeleistungen zwischen 220-250 Eiern möglich, so legen heute Hühner 320-350 Eier. In unserem Versuch wurde von jedem Huhn täglich ein Ei gelegt, wobei wir an der oberen Grenze der Legeleistung von Hühner liegen. Das bedeutet aber auch für das heutige Huhn einen viel höheren Stoffwechsel als in den 80-ziger Jahren, in denen auch Versuche zur Bestimmung von Transferfaktoren durchgeführt wurden. Der höhere Stoffwechsel ist somit auch mit einer höheren Umsetzung der Nahrung und den darin enthaltenen Mineralien verbunden, so dass zu vermuten ist, dass die Transferfaktoren ebenfalls ansteigen müssen. Von Müller et al. wurde in [46] ein Transferfaktor für Cs-137 von 0,2 d/kg für das Ei bestimmt. Dieser Transfer gibt an, wie hoch die Aktivität in 1 kg Ei pro gegebener täglicher Aktivitätsmenge im Futter ist.

$$\text{Transferfaktor} = \frac{\text{Aktivität in Bq pro kg Ei}}{\text{tägliche Aktivität in Bq im Futter}}$$

In 1982 bestimmte Ng., Y. C., et al. (5) in für Hühnereier einen Transferfaktor für Sr-90 von 0,3, für I-131 von 2,8 und für Am-241 von 0,003.

Tab. 7: Anzahl der Tage zum Erreichen des Gleichgewichts zwischen Aktivitätsaufnahme und -abgabe in der Literatur und aus diesem Versuch

Autor	Nuklid	Gleichgewicht 90% in d (Literatur)	Gleichgewicht in d	
			Eiweiß	Eigelb
H. Müller	Cäsium	30	7,5	7,5
Y.C. Colsher	Strontium	20	3,5	8,0
Y.C. Colsher	Jod	20	-	9,0

Die Aktivitäten für die untersuchten Nuklide werden im Vergleich zur Literatur schneller aufgebaut bzw. abgebaut. Die Zeiten haben sich um 50-75 % verkürzt, was auf den hohen Stoffwechsel der heutigen Hochleistungshybridhühner zurückzuführen ist. Daraus folgt auch, dass Maßnahmen zur Reduzierung der Aktivität im Ei schnell durchgeführt werden müssen, insbesondere bei Strontium, da hier nur ca. 3,5 Tage benötigt werden, um die Aktivität in das Eiweiß zu bekommen. Allerdings führt der schnelle Abbau der Aktivität auch zu einer früheren Nutzung der Legehennen, so dass ein wirtschaftliche Schaden deutlich geringer ausfallen sollte.

5. Fehlerbetrachtung

Der Fehler der Messungen lag zwischen 10-15% und betraf ausschließlich den messstatistischen Fehler, der sich aus der Peakfläche der Radionuklide ergibt. Eine weitere Unsicherheit könnte die Zugabe von inaktiven Träger zu den Standardradionukliden darstellen, da sich dadurch eventuell der Übergang aktiver Radionuklide vermindern

könnte. Allerdings ist davon auszugehen, dass dieser Effekt zu vernachlässigen ist, da es sich hier lediglich um Nanomengen pro Huhn handelt, die ihrerseits große Mengen an Kalium ähnlich Cäsium, Calcium ähnlich Strontium und große Mengen Jod aufnehmen. Im Fall von Americium wurden von uns nur Nachweisgrenzen gemessen, was darauf hindeutet, dass Americium nahezu keinen Transfer in das Ei erfährt. Weiter wurde von den Hühnern das kontaminierte Futter in einer Zeitspanne von bis zu 2 Stunden aufgenommen, so dass hier geringfügige Transferverzögerungen zu schwankenden Ergebnissen führen können.

Allerdings kam es häufig vor, dass die Hühner ihre Eier von der Sitzstange aus gelegt haben, die somit auf dem Käfigboden zerbrachen und nicht mehr in die Messung einfließen konnten. Es wurden auch ab und zu Eier von den Hühnern zerstört, so dass das Eiweiß und Eigelb in die Kotschalen lief und für die Messung unbrauchbar war. Da die Eier in der Regel morgens gegen 9:00 Uhr eingesammelt wurden, kam es vor, dass Hühner ihre Eier erst zu einem späteren Zeitpunkt gelegt hatten, so dass am nächsten Tag zwei Eier von einem Huhn eingesammelt wurden. Dies führt zu geringfügigen Variationen der Messergebnisse, die aber für die Auswertung eines Gesamtversuchsverlaufs pro Nuklidzyklus keinen Einfluss haben.

6. Zusammenfassende Überlegungen

Die in diesem Fütterungsversuch ermittelten Transferfaktoren für Cäsium, Strontium und Jod zeigen recht deutlich im Vergleich zu früher bestimmten Transferfaktoren, dass diese zum Teil abweichen. Dies war aber auch zu erwarten, da der Stoffwechsel der heutigen Hochleistungshybridlegehennen doch deutlich angestiegen ist. Die Legeleistung ist um ca. 35 % höher im Vergleich zu den Legehennen in den achtziger Jahren, in denen ebenfalls solche Experimente durchgeführt wurden. Daraus resultiert eine schnellere und effizientere Aufnahme der Futterinhaltsstoffe. Diese Erwartungen wurden durch das Experiment bestätigt mit zum Teil höheren Transferfaktoren und deutlich kürzeren Zeiten für den Aufbau der Aktivitäten bis zum Gleichgewicht zwischen Aktivitätsaufnahme und -abgabe. Americium ist in diesem Versuch leider nicht auswertbar, da wegen des geringen Transfers die Aktivitäten im Ei nicht ausreichten, um sie in 24-Stundenmessungen zu bestimmen. Allerdings konnte Americium im Kot der Hühner gemessen werden und bereits nach 8 Tagen wurden nur noch Nachweisgrenzen ermittelt, was ebenfalls das schnelle Ausscheiden der Aktivität widerspiegelt. Die Messungen wurden ebenfalls mit einem Gammaskpektrometer bei der 48 keV Linie durchgeführt, die ihrerseits eine sehr geringe Emissionswahrscheinlichkeit aufweist. Allerdings bestätigt sich rein qualitativ der sehr niedrige Literaturwert für den Transferfaktor von Americium.

Danksagung

An dieser Stelle möchten wir uns sehr für die gute Zusammenarbeit und die unermüdliche Unterstützung bei den Kollegen vom Versuchsgut Schädtebek, insbesondere bei Frau Dr. Knappstein, Herrn Westphal und den beteiligten Mitarbeitern bedanken. Weiter gilt unser Dank Frau Graf, Frau Kock und Frau Gross, die die Futterproben vorbereitet, die zahlreichen Messungen durchgeführt und die Hühner versorgt haben.

7. Literatur

- (1) Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz - StrVG) vom 19. Dezember 1986 (BGBl. I S. 261), zul. geändert durch Gesetz vom 14.12.01 (BGBl. I S. 2610)
- (2) Verordnung (EURATOM) Nr. 2218/89 des Rates vom 18. Juli 1989 zur Änderung der Verordnung (Euratom) Nr. 3954/87 zur Festlegung von Höchstwerten an Radioaktivität in Nahrungsmitteln und Futtermitteln im Falle eines nuklearen Unfalls oder einer anderen radiologischen Notstandssituation (ABl. L 211 vom 22.7.1989, S.-1
- (3) Maßnahmenkatalog: Übersicht über Maßnahmen zur Verringerung der Strahlenexposition nach Ereignissen mit nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
- (4) Müller, H., Pröhl, G., Voigt, G., Lindner, P.: Cäsium- und Jodgehalt wichtiger Lebensmittel nach dem Tschernobylunfall. 7. Fachgespräch „Überwachung der Umweltradioaktivität“, München, 16.-17., Nov. 1987, S. 388.
- (5) Ng., Y. C., Colsher, C.S., Thompson, S.E.: Transfer Coefficients for Assessing the Dose from Radionuclides in Meat and Eggs. Lawrence Livermore Nat. Lab., NUREG CR-2976, UCID-9464, 1982.

8. Zusammenfassung

Haase, G., Vagt, T.: **Fütterungsversuch zur Bestimmung der Transferfaktoren und dem Aktivitätsaufbau und -abbau von störfallrelevanten Radionukliden über den Expositionspfad Futtermittel - Huhn - Hühnerlei - Eigelb - Eiweiß für vorbeugende Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung.** Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte **59** (2) 75-94 (2007)

22 Radiochemie von Milch und Milchprodukten (Carry-over, Radionuklide, Futtermittel, Hühnerlei)

In dem Versuch werden Transferfaktoren für Cäsium, Strontium und Jod im Eigelb, Eiweiß und gesamten Ei bestimmt, da die verarbeitende Industrie das Ei getrennt verarbeitet. Weiter werden die Zeiten für den Aktivitätsaufbau- und Abbau der genannten Nuklide bestimmt. Es handelt sich um ein Fütterungsexperiment mit in Deutschland handelsüblichen Futtermitteln, die für die Legehennen eingesetzt werden. Das Futtermittel in Pelletform wurde mit den entsprechenden Nukliden und kleinen Aktivitäten (15 Bq pro Tag) kontaminiert und den Legehennen täglich gegeben. Es wurde der Aktivitätsanstieg bis zum mehrere Tage andauernden Gleichgewicht verfolgt. Nach der Gabe von aktivitätsfreien Futtermittel wurde der Aktivitätsabbau für die entsprechenden Nuklide verfolgt. Zusätzlich wurden auch Kotmessungen durchgeführt, um eine Kontrolle für das Verhalten der Nuklide zu haben. Bei den Hühnern handelte es sich um Hochleistungs-hybride, wie sie in Deutschland in der kommerziellen Erzeugung eingesetzt werden. Tatsächlich wurde von den Hühnern täglich ein Ei gelegt, so dass eine Legeleistung von 340-360 Eier angesetzt werden kann. Im Vergleich zu früher durchgeführten Experimenten konnte dort lediglich mit einer Legeleistung von 200-250 Eiern gerechnet werden. Der erhöhte Stoffwechsel der Tiere führt zu abweichenden Ergebnissen, die in dem folgenden Artikel beschrieben und nach Eigelb, Eiweiß und gesamt Ei aufgeführt werden. Weiter wird noch Americium aufgeführt, für das allerdings nur Nachweisgrenzen bestimmt werden konnten.

Summary

Haase, G., Vagt, T.: **Feeding trial for the determination of transfer factors and the activity built-up and dismantling of incident-relevant radionuclides via the exposure pathway feedingstuff - chicken - hen egg - egg white - yolk for preventive protection measures of the population.** Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte **59** (2) 75-94 (2007)

22 Radio chemistry of milk and milk products (carry over, radionuclides, feed, hen's egg)

In this study transfer factors are determined for cesium, strontium and iodine in egg yolk, egg white and entire egg, since the manufacturing industry processes the egg separately. Furthermore, the times for the activity built-up and dismantling of the nuclides mentioned are determined. In this feeding experiment a commercial complete feed for laying hens customary in Germany was used. The feedingstuff in pellet form was contaminated with the appropriate nuclides and small activities (15 Bq per day) and was daily given to the laying hens. The increase of activity up to the equilibrium persisting for several days was observed. After the administration of activity-free feeds the activity dismantling for the appropriate nuclides was pursued. Additionally, also excrement measurements were accomplished, in order to monitor the behaviour of the nuclides. In the case of the chickens it concerned high speed hybrids, as they are used in Germany in the commercial production. In deed the chickens laid daily one egg, so that a laying output of 340-360 eggs can be set. Compared with experiments carried out earlier only a laying output of 200-250 eggs was expected. The increased metabolism of the animals leads to deviating results, which are described in the following article and specified according to egg yolk, egg white and entire egg. Americium is specified further, for which, however, only detection limits could be set.

Résumé

Haase, G., Vagt, T.: **Essai d'alimentation visant la détermination des facteurs de transfert et de la croissance, voire la décroissance de l'activité des radionucléides en cas d'accidents nucléaires sur la voie d'exposition aliments pour animaux - poule - œuf de poule - jaune d'œuf - protéine pour des mesures préventives concernant la protection de la population** Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte **59** (2) 75-94 (2007)

22 Chimie radioactive du lait et des produits laitiers (carry over, radionucléides, fourrages, oeuf de poule)

Cet essai sert à déterminer les facteurs de transfert pour le césium, strontium et iode dans le jaune d'œuf, le blanc d'œuf et l'œuf complet, puisque l'industrie manufacturière traite l'œuf séparément. De plus, les temps requis pour la croissance/décroissance de l'activité des nucléides mentionnés sont déterminés. Il s'agit d'un essai d'alimentation avec des fourrages commerciaux utilisés dans l'alimentation de poules pondeuses en Allemagne. L'aliment pour animaux sous forme de bouchon de fourrage a été contaminé avec les nucléides et petites activités correspondants (15 Bq par jour) et

administré quotidiennement aux poules pondeuses. La hausse d'activité a été observée jusqu'à l'atteinte d'un équilibre durant plusieurs jours. Après l'administration d'aliments pour animaux sans activité la décroissance d'activité pour les nucléides correspondants a été poursuivie. En plus, des mesurages d'excréments ont également été réalisés pour surveiller le comportement des nucléides. En ce qui concerne les poules, il s'est agi d'hybrides à haute performance, tels qu'ils sont utilisés en Allemagne dans la production commerciale. En réalité, les poules ont pondu un œuf par jour, de sorte qu'une performance pondeuse de 340-360 œufs est présumée. Dans des essais réalisés jadis, on pouvait seulement s'attendre à une performance pondeuse de 200-250 œufs. Le métabolisme accru des animaux conduit aux résultats divergents dans l'article suivant d'après la spécification jaune d'œuf, protéine et œuf complet. De plus, l'américium est spécifié, pour lequel on ne pouvait toutefois déterminer que des limites de détection.