

# Neptunium 237

## et environnement

### FICHE RADIONUCLÉIDE

**Cette fiche résume le comportement de l'élément chimique dans les principaux compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques, sous les deux hypothèses suivantes.**

- La discrimination isotopique est négligeable, ce qui est vérifié pour la plupart des éléments traités.
- Lorsque l'élément possède des isotopes stables, l'analogie de comportement entre ses isotopes stables et radioactifs est admise implicitement, sachant toutefois que pour les éléments existant à l'état naturel, la forme chimique et le milieu d'émission des rejets anthropiques sont susceptibles d'impliquer des voies et processus de transfert autres que ceux identifiés pour l'élément stable naturel.

Le ou les isotopes radioactifs désignés dans l'intitulé de la fiche correspondent aux radionucléides d'importance radioécologique majeure, au sens des quantités et de la rémanence dans l'environnement, d'autres isotopes, radioactifs ou stables, pouvant être cités à titre complémentaire. Les informations, volontairement simplifiées, sont destinées à refléter l'état des connaissances sur le sujet à la date de mise à jour et à proposer des valeurs pour les principaux paramètres radioécologiques usuels permettant une estimation des transferts dans l'environnement et plus particulièrement au sein de la chaîne alimentaire.



**RÉDACTION :**

**S. Roussel-Debet,  
J. Garnier-Laplace,  
C. Colle**

**VÉRIFICATION :**

**K. Beaugelin-Seiller**

**DATE DE RÉDACTION :**

**01/08/01**

## CARACTÉRISTIQUES

### CHIMIQUES

Le neptunium est un actinide transuranien de chimie extrêmement riche. Il possède 5 degrés d'oxydation stables en solution, de + 3 à + 7 ; dans l'environnement, sa forme dominante est  $\text{Np(V)O}_2^+$ , Il est susceptible de former de nombreux complexes.

### NUCLÉAIRES

Tous les isotopes du neptunium sont radioactifs et émetteurs alpha. Le  $^{237}\text{Np}$  est celui qui présente la plus longue période.

#### $^{237}\text{Np}$

Période radioactive	2,14 x 10 <sup>6</sup> ans		
Activité massique	2,61 x 10 <sup>7</sup> Bq.g <sup>-1</sup>		
Émission(s) principale(s) par désintégration (rendement d'émission %)	$\alpha$	4,79 MeV (48 %)	4,77 MeV (25 %)
	$\gamma$	29,37 keV (15 %)	86,48 keV (12 %)

(Nuclides 2000, 1999)

## ORIGINES

### NATURELLE

Sans objet.

### ARTIFICIELLE

Le  $^{237}\text{Np}$  peut être produit dans un réacteur nucléaire naturel par la capture de neutrons par l'uranium.

#### Explosions nucléaires atmosphériques

L'activité du  $^{237}\text{Np}$  déposée par suite des retombées des essais militaires atmosphériques est évaluée à  $4 \times 10^{13}$  Bq sur l'hémisphère nord. Le dépôt de  $^{237}\text{Np}$  entre 1954 et 1983 est estimé pour l'Europe à  $0,2 \text{ Bq.m}^{-2}$ .

#### Émissions par les installations nucléaires

Le  $^{237}\text{Np}$  est produit dans les réacteurs nucléaires à la suite de captures de neutrons par les isotopes de l'uranium.

Les principaux rejets de  $^{237}\text{Np}$  dans l'environnement apparaissent lors du retraitement de combustibles irradiés. En 1999, les rejets de  $^{237}\text{Np}$  dans les effluents liquides se sont élevés à  $2 \times 10^8$  Bq pour l'usine de La Hague. Ceux de l'usine de Sellafield étaient  $3 \times 10^{10}$  Bq en 1997 (BNFL, 1997).

## CONCENTRATIONS DANS L'ENVIRONNEMENT ET MÉTROLOGIE

En raison des rejets faibles dans l'environnement et des difficultés de mesures du  $^{237}\text{Np}$ , il y a peu de données *in situ* et aucune en France. Les données anciennes sont incertaines du fait de méthodes de mesure peu performantes.

Les techniques utilisées actuellement permettent de détecter de l'ordre de  $0,1 \text{ mBq.kg}^{-1}$  dans un échantillon de l'environnement. Elles reposent sur l'extraction préalable des isotopes du neptunium par séparation et purification radiochimique (nécessitant l'ajout d'un traceur tel  $^{236}\text{Np}$  ou  $^{235}\text{Np}$  pour connaître le rendement). Diverses méthodes sont ensuite utilisées : spectrométrie de masse (TI – MS ou ICP - MS), scintillation alpha liquide ou spectrométrie alpha (Colle *et al.*, 1987 ; Chiappini *et al.*, 1996).

## MOBILITÉ ET BIODISPONIBILITÉ EN MILIEU TERRESTRE

### SOLS

La complexité de la chimie du neptunium est liée au caractère multivalent du radioélément. La forme  $\text{Np(V)O}_2^+$  est la plus stable. Le neptunium peut être réduit, en milieu anaérobie, ou en présence de fer ou de matière organique, à l'état IV en  $\text{Np(OH)}_4$  ou  $\text{Np(OH)}_3^+$ , formes plus adsorbées que le neptunium (V).

Lors d'extractions séquentielles, les fractions facilement mobilisables (hydrosoluble et échangeable) contiennent environ 5 % du neptunium pour des sols calcaires contre 20 % pour des sols acides. La fraction dite « complexée » domine (60 %) dans les sols organiques (Nishita *et al.*, 1979 ; Kung *et al.*, 1995).

La mobilité du neptunium est moyenne dans les sols. Son aptitude à la migration est supérieure à celle du plutonium, de l'américium ou du curium. La sorption sur les argiles, contrôlée par le pH et par la surface spécifique, n'est pas irréversible. Les hydroxydes de fer, d'aluminium et de manganèse ainsi que les acides organiques et les chélatants, produits de l'activité biologique, jouent un rôle dans la désorption. La mobilité du neptunium résulte de la formation de pseudo-colloïdes et de complexes avec les carbonates et les composés organiques. Pour des pH de 6,5 à 8, la mobilité du neptunium diminue avec l'augmentation du pH du sol. Le temps de résidence (demi-vie) dans l'horizon superficiel d'un sol cultivé de prairies est d'environ 4 à 8 ans.

### VÉGÉTAUX

L'absorption racinaire augmente avec la diminution du pH. Les facteurs affectant la mobilité du neptunium dans les sols influencent également le transfert racinaire ; toutefois, à l'exception du rôle du pH du sol, les résultats expérimentaux sont contradictoires.

Les facteurs de transfert racinaire varient entre  $5 \times 10^{-1}$  et  $1 \times 10^{-4}$  avec une incertitude associée de plusieurs ordres de grandeur. Une revue bibliographique permet de relever une centaine de valeurs relatives aux céréales, herbe ou fourrage et pommes de terre, ce qui est très peu comparativement au césium, par exemple, pour lequel des milliers de valeurs ont été mesurées (Romney *et al.*, 1981 ; Roussel-Debet, 1999).

La remise en suspension de particules de sol peut majorer les résultats des mesures *in situ* du neptunium dans les végétaux, en particulier sous climat aride (sites d'essais désertiques). L'adhésion de particules de sol au

végétal peut expliquer la distribution du neptunium, décroissante dans le sens *racines > feuilles > tiges > graines* (Roussel-Debet, 1999).

L'absence de données sur le transfert par voie foliaire conduit à utiliser par défaut, les données relatives au plutonium, elles-mêmes basées sur les valeurs d'interception relatives au césium et les facteurs de translocation relatifs au strontium (catégorie des éléments dits « immobiles » dans le végétal) (Roussel-Debet, 1999).

### ANIMAUX

Les rares données concernant les produits d'origine animale proviennent majoritairement d'extrapolations (expérimentations sur des rats) ; ainsi, les transferts au lait seraient associés à l'augmentation de l'absorption gastro-intestinale du neptunium chez les femelles allaitantes ; le transfert à la viande de bœuf serait 100 fois plus important que pour les autres transuraniens.

### PRODUITS TRANSFORMÉS

L'absence de donnée concernant les transformations agro-alimentaires conduit à utiliser, par défaut, les (rares) données relatives au plutonium, ce qui compte tenu de la mobilité supérieure du neptunium par rapport au plutonium, pourrait induire une sous-estimation des transferts.

## MOBILITÉ ET BIODISPONIBILITÉ DANS LES ÉCOSYSTÈMES DULÇAQUICOLES

### EAUX

Dans les eaux de surface, les espèces chimiques dominantes sont à l'état d'oxydation V, sous la forme  $\text{NpO}_2^+$  et, probablement, sous la forme hydratée  $[\text{NpO}_2(\text{H}_2\text{O})_6]^+$ . De rares études de terrain relatives à un cours d'eau soumis à des rejets d'installations nucléaires (USA) ont mis en évidence la présence de composés solubles de neptunium, dont des colloïdes, chargés négativement. L'existence de complexes carbonates solubles est également rapportée. Le neptunium présente une affinité importante pour le carbonate de calcium et pour les matières organiques. D'après une étude réalisée en milieu marin (mer d'Irlande), l'adsorption sur les matières en suspension est moins importante que pour les autres transuraniens (plus faible de deux à trois ordres de grandeur que pour le plutonium) (Coughtrey et Jackson, 1984).

### SÉDIMENTS

Il existe très peu de données sur le comportement du neptunium dans les sédiments. L'étendue des valeurs de  $K_d$  porte sur plusieurs ordres de grandeur. Ce coefficient de distribution est sensible à la concentration en carbonates. Les processus de sorption/désorption sont réversibles. La sorption du neptunium est gouvernée notamment par la présence de carbonate de calcium, mais aussi par des phénomènes d'hydrolyse (la forme  $\text{NpO}_2^+$  est rapidement hydrolysée à pH 8,2). La rétention des transuraniens par les sédiments résulte fréquemment de précipitations accompagnant les réactions d'oxydo-réduction auxquelles participent en particulier les oxydes de fer et, de façon moins importante, les oxydes de manganèse. Très peu de complexes se forment avec les acides fulviques. La réduction de Np(V) en Np(IV) peut se produire dans des sédiments de potentiel rédox inférieur à 100 mV. Le neptunium à la valence IV est beaucoup moins mobile que le neptunium à la valence V (Coughtrey et Jackson, 1984 ; Bidoglio *et al.*, 1988).

### VÉGÉTAUX

Une seule valeur de facteur de concentration pour des végétaux est rapportée dans la littérature. Cette valeur de  $277 \text{ l.kg}^{-1}$  de végétal frais, concerne des algues vertes et l'isotope 239 détecté en aval du site de Hanford (Columbia river) (Coughtrey et Jackson, 1984).

### ANIMAUX

Il n'existe aucune donnée concernant le zooplancton, les macro-invertébrés benthiques ou les poissons d'eau douce. Pour ce qui concerne le milieu marin, la biodisponibilité du neptunium est inférieure à celle des autres actinides transuraniens, d'un ordre de grandeur inférieure à celle du plutonium. Quelques auteurs soulignent la similarité avec le comportement du plutonium dans les tissus biologiques d'animaux marins (distribution dans l'organisme et les tissus externes, taux d'élimination).

## EN RÉSUMÉ...

**Le comportement du neptunium est assez mal connu. Il a été peu étudié en milieu terrestre, et quasiment « oublié » en milieu aquatique continental. C'est un élément relativement mobile dans l'environnement terrestre.**

**Dans les sédiments et les sols, le neptunium à l'état d'oxydation V apparaît plus mobile que les autres transuraniens. La réduction vers l'état IV est un mécanisme à élucider, puisqu'il tend, dans certaines conditions environnementales, à augmenter d'au moins un ordre de grandeur le coefficient de distribution. Les paramètres de migration dans les sols et ceux relatifs au transfert racinaire permettent une évaluation opérationnelle avec des incertitudes non quantifiables. Pour les végétaux, la voie foliaire est totalement méconnue. En l'absence de valeurs de facteurs de transfert, l'analogie habituelle avec le plutonium conduit probablement à une sous-estimation des transferts, la mobilité du neptunium étant très supérieure à celle du plutonium.**

**Très peu d'informations existent pour décrire et quantifier le comportement du neptunium dans les eaux et sédiments des systèmes aquatiques continentaux. Pour ce qui concerne l'accumulation du neptunium dans les organismes aquatiques animaux ou végétaux, l'absence de données est générale. En milieu marin, l'analogie avec le comportement du plutonium conduit à une surestimation d'un ou plusieurs ordres de grandeurs des coefficients de transfert. En l'absence de connaissances, la même analogie peut être réalisée pour les systèmes aquatiques continentaux.**

## PARAMÈTRES RADIOÉCOLOGIQUES USUELS : MILIEU TERRESTRE

*Coefficient de distribution eau-sol Kd (Bq.kg<sup>-1</sup> de sol sec par Bq.l<sup>-1</sup> d'eau)*

Sol sableux et/ou acide	4
Sol argileux	55
Sol limoneux ou texture moyenne	25
Sol organique (> 30 % de M.O.)	1 200

(IAEA, 1994)

*Facteur de transfert foliaire (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal sec par Bq.m<sup>-2</sup>)*

<b>Aucune valeur</b>
----------------------

*Facteur de transfert global **incluant le transfert racinaire et la remise en suspension** (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal sec par Bq.m<sup>-2</sup>)*

Céréales (grain)	0,0005
Légumes feuilles	0,003
Légumineuses graines	0,002
Légumes racines	0,02
Végétation naturelle	0,03
Fourrages-pâturages	0,04

(Coughtrey et Jackson, 1984)

*Facteur de transfert racinaire (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal sec par Bq.kg<sup>-1</sup> de sol sec)*

Céréales (grain)	0,003
Légumes feuilles (épinard)	0,6
Légumes fruits (pois, haricots)	0,02
Légumes racines (betterave, radis)	0,03
Tubercules (pomme de terre)	0,007
Fourrages (légumineuse)	0,008
Herbe	0,07

(IAEA, 1994)

*Facteur de transfert aux produits d'origine animale ( $j.kg^{-1}$  ou  $j.l^{-1}$ )*

Lait de vache	0,000 005
Lait de chèvre	0,000 01
Viande de bœuf	0,001

(IAEA, 1994)

*Facteur de transfert par transformation alimentaire*

Aucune valeur

## PARAMÈTRES RADIOÉCOLOGIQUES USUELS : EAUX DOUCES

*Coefficient de distribution eau-MES,  $K_d$  ( $Bq.kg^{-1}$  de solide sec par  $Bq.l^{-1}$  d'eau)*

Aucune valeur

*Facteur de concentration dans les végétaux ( $Bq.kg^{-1}$  de végétal frais par  $Bq.l^{-1}$  d'eau)*

Algue verte	227 (une seule valeur)
-------------	------------------------

*Facteur de concentration dans les animaux ( $Bq.kg^{-1}$  d'animal frais par  $Bq.l^{-1}$  d'eau)*

Aucune valeur

## BIBLIOGRAPHIE

- Adamov EO, Ganev IK, Lopatkin AV, Muratov VG et Orlov VV (1999). Actinide Production in Open and Closed Nuclear Fuel Cycles. *Atomic energy -New York- c/c of atomnaia energija*, 85(1): 447-454.
- Al Mahamid I, Novak CF, Becraft KA, Carpenter SA et Hakem N (1998). Solubility of Np(V) in K-Cl-CO<sub>3</sub> and Na-K-Cl-CO<sub>3</sub> solutions to high concentrations. Measurements and thermodynamic model predictions. *Radiochim Acta*, 81(2): 93-101.
- Aupiais J. (1997). Optimization of cation detection by capillary zone electrophoresis with indirect UV absorbance. *Chromatographia*, 44(5/6): 303-312.
- Beasley TM, Kelley JM, Maiti TC et Bond LA (1998). <sup>237</sup>Np/<sup>239</sup>Pu atom ratios in integrated global fallout: a reassessment of the production of <sup>237</sup>Np. *J Environ Radioactiv*, 38(2): 133-146.
- Bidoglio G, Avogadro A, De Plano A et Lazzari GP (1988). Reaction pathways of plutonium and neptunium in selected natural water environments. *Radiochim Acta*, 44-45(1): 29-32.
- Cataldo DA, Garland TR, Wildung RE (1988). Absorption, distribution, and fate of neptunium in plants. *J Agric Food Chem*, 36(3): 657-62.
- Chiappini R., Taillade J.-M. Brebion, S. (1996). Development of a High-sensitivity Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer for Actinide Measurement in the Femtogram Range. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 11(7): 497-504.
- Colle C et Morello M (1987). Behaviour of neptunium in the terrestrial environment, *Seminar on the cycling of long-lived radionuclides in the biosphere: observations and models*, Sept. 15-19, 1986, Madrid, pp. 542-554.
- Coughtrey PJ et Jackson D (1984). *Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems*. Vol. 4 - 5. Balkema AA (eds), Rotterdam/Boston.
- IAEA (1994). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclides transfer in temperate environments*. Technical report series N° 364.
- Kung KS et Triay IR (1995). Effect of natural organic materials on cadmium and neptunium sorption. Proc. NEA Workshop 1994 *Binding Models Concerning Natural Organic Substances Performance Assessment*, 21-32.
- Nishita H, Wallace A, Romney EM et Schulz RK (1979). *Effect of soil type on the extractability of <sup>237</sup>Np, <sup>239,240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am and <sup>244</sup>Cm as a function of pH*. NUREG /CR-0997, UCLA 12-1192-UCLA.
- Romney EM, Wallace A, Schulz RK, Kinnear J et Wood RA (1981). Plant uptake of <sup>237</sup> Np, <sup>239,240</sup> Pu, <sup>241</sup> Am and <sup>244</sup> Cm from soils representing major food production areas of the United States. *Soil Sci*, 132(1): 40-59.
- Roussel-Debet S (1999). *Bilan bibliographique - Comportement des actinides transuraniens en milieu terrestre - Conséquences en matière de modélisation des transferts aux végétaux*. Rapport IPSN/DPRE-SERLAB-99-019.
- Thompson RC (1982). Neptunium: the neglected radionuclide: a review of the biological and environmental literature. *Radiat Res*, 32: 1-32.