

PERLAKUAN ISOTOP URANIUM DI PERAIRAN PANTAI TIMUR SEMENANJUNG MALAYSIA: PENENTUAN NISBAH KEAKTIFAN $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$

Zal U'yun Wan Mahmood, Zaharudin Ahmad, Abd. Kadir Ishak, Yii Mei Wo, Norfaizal Mohamed, Jalal Sharib @ Sarip, Kamarozaman Ishak, Azlina Shafie

*Kumpulan Radiokimia dan Alam Sekitar Bahagian Teknologi Industri
Agensi Nuklear Malaysia, Bangi, 43000 Kajang, Malaysia*

Kata kunci: Uranium; sekitaran marin; perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia; sedimen; air laut

Abstrak

Penentuan keaktifan isotop uranium dan taburannya di dalam sampel air laut dan sedimen permukaan di sepanjang pesisiran perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia telah dilakukan dengan menggunakan sistem pembilang spektrometri alfa. Persampelan kedua-dua air laut dan sedimen bagi kajian ini telah dijalankan pada bulan Ogos, 2003 di beberapa lokasi terpilih dan ia merupakan sebahagian daripada projek Pembangunan Data Asas Keradioaktifan Marin di Malaysia. Keputusan kajian menunjukkan taburan radionuklid uranium (^{234}U dan ^{238}U) dalam sampel air laut dan sedimen permukaan tidak konsisten di mana keaktifannya berubah-ubah mengikut lokasi persampelan. Secara umum, julat keaktifan ^{234}U dan ^{238}U yang diukur di dalam sampel air laut masing-masing adalah 2.94 – 45.80 dan 2.12 – 38.10 Bq.m⁻³, manakala julatnya di dalam sampel sedimen permukaan masing-masing adalah 28.00 – 60.05 dan 25.15 – 55.15 Bq.kg⁻¹ berat kering. Secara umumnya di semua lokasi persampelan, nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ adalah hampir seragam dalam julat 1.08 – 1.39 untuk sampel air laut dan 1.01 – 1.12 untuk sampel sedimen permukaan. Nisbah yang diperolehi ini adalah hampir sama dengan sumber-sumber penerbitan terdahulu.

Abstract

The determination of uranium isotopes activity concentration and their distributions in the seawater and surface sediment along the coastal area of the East Coast of Malaysia Peninsular have been performed using alpha spectrometry counting system. The sampling of both seawater and surface sediment for this study was carried out in August 2003 as part of the Marine Radioactivity Database Development Project for Malaysia. This results show that the distribution of uranium radionuclides (^{234}U and ^{238}U) in seawater and surface sediment is not consistent, their activities are fluctuated depending on the sampling locations. Generally, the ^{234}U and ^{238}U activities measured in the seawater are in the range of 2.94 – 45.80 and 2.12 – 38.10 Bq.m⁻³, respectively, whilst in the surface sediment they are in the range of 28.00 – 60.05 and 25.15 – 55.15 Bq.kg⁻¹ dry weight, respectively. In general, the activity ratios of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ at all sampling locations are nearly uniform in the range of 1.08 – 1.39 for seawater and 1.01 – 1.12 for surface sediment. These ratios are comparable with those found in published literatures.

Pendahuluan

Uranium ialah unsur radioaktif yang terbentuk secara tabii dan merupakan pemancar alfa. Ia mempunyai tiga isotop utama iaitu ^{234}U (anak ^{238}U , $t_{1/2}$: 2.45 x 10⁵ tahun), ^{235}U ($t_{1/2}$: 7.04 x 10⁸ tahun) dan ^{238}U ($t_{1/2}$: 4.47 x 10⁹ tahun) [1]. Kelimpahan isotop bagi ^{234}U , ^{235}U dan ^{238}U adalah masing-masing 0.0058, 0.721 dan 99.28 % [2]. Di persekitaran marin terdapat pelbagai radionuklid yang terhasil daripada siri pereputan isotop uranium dan ia boleh dikelaskan kepada dua kumpulan iaitu: (i) radionuklid yang terlarut secara stabil dalam air laut, (ii) radionuklid partikel reaktif yang disingkirkan daripada air laut melalui proses penjerapan, pemendakan atau biologikal. Dalam hal ini, radioisotop uranium (^{234}U , ^{235}U dan ^{238}U) dikelaskan di bawah kumpulan (ii) [3].

Pengetahuan terhadap perlakuan geokimia uranium di dalam sistem marin masih lagi di peringkat yang rendah. Begitu juga, perlakuan uranium di zon persisiran dan khususnya semasa percampuran muara, tidak begitu difahami. Kepekatan uranium di persisiran adalah berubah-ubah dan berkait rapat dengan kepelbagaian kepekatan semulajadi uranium di dalam sungai yang memasuki zon persisiran. Taburan uranium di dalam larutan adalah sangat penting kerana ia menghasilkan radionuklid partikel reaktif seperti ^{234}Th , ^{231}Pa dan ^{230}Th [3].

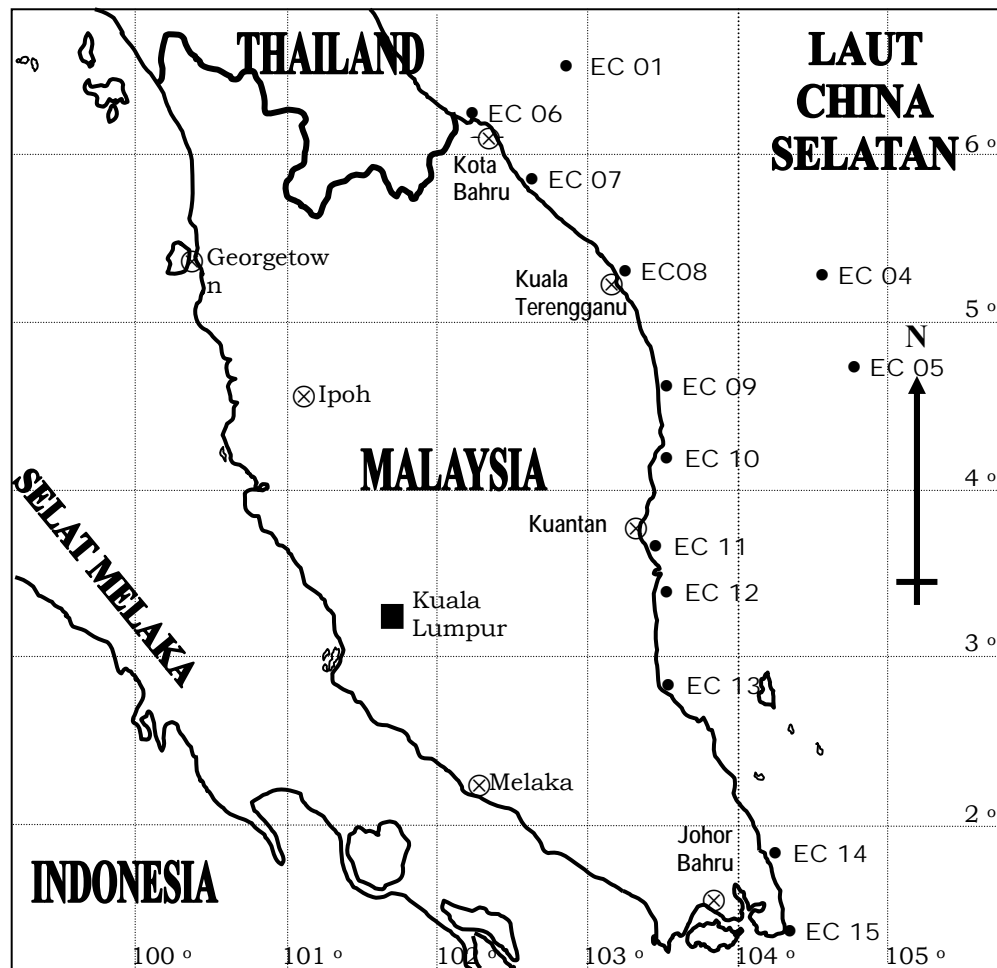
Penentuan keaktifan radionuklid daripada siri pereputan radionuklid uranium di dalam tanah, air dan partikulat terampai di sepanjang sungai – muara – persisiran pantai dan seterusnya ke marin, akibat daripada proses pencucuaan (seperti luluhawa, perubahan suhu) dan mekanisma pengangkutan radionuklid tersebut dari darat ke sistem marin, dapat memberi maklumat mengenai taburan dan perlakuannya [3 - 7]. Sementara itu, pengetahuan tentang nisbah sesuatu radionuklid boleh memberi maklumat yang berkaitan dengan sesuatu sistem tabii tersebut [8]. Kepekatan dan nisbah isotop siri pereputan uranium di dalam air sungai dan sedimen merupakan parameter yang sangat penting dan ia diperlukan untuk membentuk keseimbangan geokimia bagi unsur tersebut [4]. Menurut Fujikawa et al. [1], ^{234}U dan ^{238}U yang berda di dalam suatu sistem tertutup akan mencapai keseimbangan sekular apabila nisbah ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) adalah bersamaan 1.0. Sebaliknya ia didapati berubah-ubah disebabkan oleh keadaan asal geografi tabii yang berbeza seperti kebanyakan air, tanah, dan sedimen. Perubahan ini adalah disebabkan oleh beberapa mekanisma seperti berlakunya proses larutlesap yang berlebihan terhadap ^{234}U daripada fasa pepejal berbanding dengan ^{238}U , kesan kerosakan sinaran ke atas kekisi kristal semasa penyepaian alfa ^{238}U , pengoksidaan ^{234}U tetravalen tak larut kepada ^{234}U heksavalen yang larut semasa penyepaian dan sentakan alfa bagi ^{234}Th (dan juga anaknya ^{234}U) ke dalam fasa larutan dan pergerakan ^{234}U itu sendiri.

Nisbah keaktifan isotop uranium ^{234}U dan ^{238}U di dalam air laut didapati tidak berada di dalam keseimbangan sekular sebagaimana organisma marin. Seperti yang dilaporkan oleh Sugimura dan Mayeda [2], kebanyakan penulis mengatakan lebih kurang 25% kepekatan uranium di dalam air laut tersebar mengikut lokasi dan kedalaman dan ia berperanan di dalam beberapa aktiviti biologi di dalam lautan.

Kajian ke atas radionuklid hasil daripada siri pereputan uranium di dalam sekitaran marin telah banyak dijalankan di seluruh dunia terutamanya di negara maju sejak beberapa dekad yang lalu. Umumnya kajian itu bertujuan untuk mendapatkan kefahaman mengenai proses dan fenomena oseanografik untuk pengurusan marin yang lebih baik. Di negara-negara yang sedang membangun seperti Malaysia, penyelidikan di dalam bidang ini menjadi semakin penting untuk melindungi sekitaran marin dan muara-muara sungai daripada pencemaran daratan serta kesan-kesan antropogenik lain terhadap ekosistem marin dan akuatik khususnya daripada perlepasan bahan buangan radioaktif [9]. Sehubungan itu, penentuan keaktifan isotop uranium dan taburannya di dalam sampel air laut dan sedimen permukaan di sepanjang pesisiran perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia telah dilakukan dengan menggunakan sistem pembilang spektrometri alfa. Persampelan air laut dan sedimen bagi kajian ini telah dijalankan pada bulan Ogos, 2003 di beberapa lokasi terpilih dan ia merupakan sebahagian daripada projek Pembangunan Data Asas Keradioaktifan Marin di Malaysia. Kajian ini adalah bertujuan untuk melihat perlakuan, taburan dan mengenalpasti punca kehadiran uranium dalam sistem perairan marin.

Eksperimen

Kawasan kajian adalah meliputi laut dalam dan persisiran pantai di sepanjang perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia. Sebanyak tiga stesen persampelan laut dalam dan sepuluh stesen persampelan persisiran pantai telah dipilih bermula dari Kota Bharu di Kelantan hingga ke Tanjung Datok di Johor. Stesen-stesen laut dalam yang dipilih terletak kira-kira 50-60 batu nautika dari daratan pada kedalaman air 35-65m manakala stesen-stesen persisiran pantai pula terletak di antara 2-3 batu nautika dari daratan pada kedalaman air 8-15m. Kebanyakan stesen persisiran pantai mengadap ke kuala sungai-sungai utama bagi mendapatkan input maksimum radionuklid tabii yang berpunca dari daratan. Sampel air laut telah diambil di setiap stesen persampelan laut dalam dan persisiran pantai manakala sampel sedimen permukaan hanya diambil di stesen persisiran pantai sahaja. Lokasi stesen persampelan di kawasan kajian ditunjukkan dalam Rajah 1. EC01 – EC05 adalah stesen laut dalam manakala EC06 – EC15 adalah stesen persisiran pantai.



Rajah 1: Peta menunjukkan lokasi stesen persampelan di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia.

Di dalam kajian ini, sampel air laut telah diambil pada kedalaman 2.5 - 5m dari permukaan laut dengan menggunakan 'Grunfos submersible pump'. Sebanyak 230 L air laut di pam ke dalam bekas plastik 250 L. Seterusnya proses pengasidan dan penambahan penyurih (^{232}U) yang diketahui keaktifannya dan proses pemendakan dilakukan ke atas air laut tersebut di lapangan. Setelah sampel dibawa ke makmal, proses pemelarutan mendakan dan pemendakan semula dilakukan dengan menggunakan HCl dan NH_4OH .

Sampel sedimen persisiran pantai pula telah diambil dari tiga lokasi (sub-stesen) yang jaraknya satu batu nautika antara satu sama lain di setiap stesen dengan menggunakan 'Ponar grab sampler'. Sampel tersebut kemudian dimasukkan ke dalam bekas polietilena yang telah dibersihkan, sebelum ianya dikeringkan di makmal. Sampel sedimen dikeringkan di dalam ketuhar pada suhu 60°C untuk tempoh 72 jam. Sampel yang telah kering ditimbang, dan dihancurkan untuk mendapatkan sampel yang halus dan homogen. Kaedah pencernaan menggunakan asid HNO_3 , HClO_4 dan HCl pekat dilakukan ke atas sampel-sampel sedimen yang telah ditambahkan dengan penyurih ^{232}U yang diketahui keaktifannya.

Kaedah pemisahan radiokimia seperti yang disyorkan oleh beberapa penyelidik terdahulu [10 - 13] dengan beberapa modifikasi yang melibatkan proses pengekstrakan dengan pelarut organik, turus penukar ion dan penulenan dilakukan ke atas kedua-dua mendakan sampel air laut dan sedimen. Ia melibatkan proses pengekstrakan dengan pelarut organik, turus resin penukar ion dan proses penulenan. Akhirnya, proses pemendapan elektro uranium dilakukan ke atas keluli tanpa karat selama sejam.

Penentuan keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel telah dilakukan dengan menggunakan sistem spektrometri alfa EG&G ORTEC dan CANBERRA. Proses pembilangan ke atas keluli tanpa karat dilakukan selama 3 hari. Keputusan untuk sampel sedimen dilaporkan berdasarkan nilai purata data yang bersesuaian bagi ketiga-tiga lokasi di setiap stesen berkenaan.

Keputusan dan Perbincangan

Perlakuan radionuklid ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel air laut

Secara keseluruhannya, keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di semua stesen persampelan bertabur secara tidak seragam (Jadual 1) dengan julat keaktifan yang diukur di dalam sampel air laut adalah masing-masing 2.94 – 45.80 dan 2.12 – 38.10 Bq.m^{-3} . Ketidakteraturan bukan saja bergantung kepada kedudukan sesuatu stesen itu, malahan juga bergantung kepada perbezaan kawasan samada di laut dalam atau di persisiran pantai. Julat keaktifan radionuklid tersebut yang ditunjukkan di kawasan laut dalam adalah 2.94 – 8.69 dan 2.12 – 8.08 Bq.m^{-3} dan di kawasan persisiran pantai pula adalah 4.03 – 45.80 dan 3.76 – 38.10 Bq.m^{-3} . Merujuk kepada julat tersebut, catatan aras keaktifannya yang tertinggi dikesan bagi laut dalam ialah Stesen Desaru dan persisiran pantai pula ialah di sekitaran muara Sungai Pahang/Pekan. Sebaliknya nilai terendah dikesan di sekitaran Pulau Tioman (kawasan laut dalam) dan muara Sungai Kelantan/Kuala Besar (kawasan persisiran pantai).

Jadual 1: Keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel air laut di kawasan laut dalam dan persisiran pantai di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia

Stesen Persampelan	Keaktifan Spesifik (Bq.m^{-3})		$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
	^{234}U	^{238}U	
Kota Bharu (EC 01)	4.34 ± 0.32	3.68 ± 0.27	1.18 ± 0.25
Pulau Tioman (EC 04)	2.94 ± 0.22	2.12 ± 0.17	1.39 ± 0.24
Desaru (EC 05)	8.69 ± 0.64	8.08 ± 0.59	1.08 ± 0.32
Muara Sungai Kelantan/K. Besar (EC 06)	4.03 ± 0.29	3.76 ± 0.29	1.07 ± 0.22
Muara Sungai Besut (EC 07)	6.22 ± 0.46	4.73 ± 0.34	1.32 ± 0.32
Kuala Terengganu (EC 08)	22.70 ± 1.66	17.62 ± 0.15	1.29 ± 0.45
Muara Sungai Dungun (EC 09)	9.00 ± 0.66	8.22 ± 0.60	1.10 ± 0.33
Muara Sungai Kemaman (EC 10)	8.50 ± 0.62	6.97 ± 0.51	1.22 ± 0.35
Muara Sungai Kuantan (EC 11)	7.22 ± 0.53	6.33 ± 0.46	1.14 ± 0.31
Muara Sungai Pahang/Pekan (EC 12)	45.80 ± 3.35	38.10 ± 2.79	1.20 ± 0.80
Muara Sungai Rompin (EC 13)	32.80 ± 2.40	29.30 ± 2.14	1.12 ± 0.64
Muara Sungai Sedili Besar (EC 14)	17.40 ± 1.24	15.30 ± 1.11	1.14 ± 0.47
Tanjung Datok (EC 15)	7.02 ± 0.51	6.24 ± 0.46	1.13 ± 0.30

Fenomena perubahan taburan radionuklid ini dipercayai dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti sifat kimia dan fizikal radionuklid berkenaan, pengdepositan, pemindahan dan pengangkutan. Bagi stesen yang mencatatkan aras keaktifan U yang tertinggi ($> 20 \text{Bq.m}^{-3}$) pula mungkin disebabkan oleh kesan arus pasang surut. Persampelan di sesetengah stesen berkenaan dilakukan semasa air sedang surut di mana sampel air permukaan mengandungi kandungan sedimen terampai yang tinggi dari luahan sungai berdekatan. Fenomena perubahan taburan radionuklid ini dipercayai dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti sifat kimia dan fizikal radionuklid berkenaan, pengdepositan, pemindahan dan pengangkutan. Bagi stesen yang mencatatkan aras keaktifan U yang tertinggi ($> 20 \text{Bq.m}^{-3}$) pula mungkin disebabkan oleh kesan arus pasang surut. Persampelan di sesetengah stesen berkenaan dilakukan semasa air sedang surut di mana sampel air permukaan mengandungi kandungan sedimen terampai yang tinggi dari luahan sungai berdekatan.

Secara umumnya, didapati aras keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam air laut yang diambil di kawasan persisiran atau muara adalah tinggi jika dibandingkan dengan kawasan laut dalam. Keadaan ini disokong oleh kenyataan Cochran [3] yang melaporkan bahawa keaktifan U di zon persisiran utara-barat pasifik adalah tersangat tinggi jika dibandingkan dengan laut terbuka. Menurut beliau, perlakuan U di dalam zon persisiran semasa percampuran muara kurang difahami. Keaktifan U di dalam air laut di persisiran dan di luar persisiran pantai adalah berbeza dan keadaan ini boleh dikaitkan dengan perubahan semulajadi terhadap keaktifan U di dalam sungai yang memasuki zon persisiran.

Didapati muara Sungai Pahang/Pekan dan muara Sungai Rompin mempamirkan keaktifan ^{234}U dan ^{238}U yang tinggi berbanding dengan muara-muara lain. Peningkatan keaktifan uranium di sesetengah muara adalah disebabkan oleh penurunan aras pH yang berpunca daripada percampuran air laut yang melimpah masuk ke kawasan tersebut. Menurut Cochran [3], ^{234}U dan ^{238}U akan terlarut semasa proses luluhawa kimia dan membentuk spesies karbonat uranil yang stabil dalam persekitaran muara yang mempunyai pH 6 atau lebih. Manakala, Scott [4] pula menyatakan bahawa fenomena ini berlaku adalah disebabkan oleh U di kaut dari larutan oleh pemendapan sebatian humik di dalam kawasan saliniti yang berjulat rendah seperti muara sungai. Juga, perpindahan partikel dari sungai ke laut mungkin membantu nyahjerapan U kerana pertambahan pH. Kenyataan ini disokong oleh laporan yang telah dibuat oleh Rodriguez-Alvarez dan Sanchez [12] yang menyatakan aras keaktifan ^{234}U bertambah bila nilai pH air menyusut atau dibalikinya. Menurut beliau lagi, pertambahan keaktifan ^{234}U juga akibat dari kesan peningkatan paras saliniti di kawasan muara yang berpunca dari percampuran air sungai dengan air laut yang menyebabkan berlakunya proses nyahjerapan radionuklid tersebut dari sedimen di kawasan tersebut. Perlakuan yang sama juga berlaku di muara Sungai Jucar-Cabriel dan Sungai Guadalquivir di Spain dan sungai-sungai lain seperti Sungai Forth di United Kingdom [12]. Walau bagaimanapun hubungan di antara keaktifan dan pH hanya dijumpai untuk ^{234}U sahaja dan bukan untuk ^{238}U .

Pada umumnya, nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam air laut di kawasan laut dalam dan persisiran pantai didapati masing-masing dalam julat 1.08 – 1.39 dan 1.07 – 1.32. Nisbah keaktifan yang diperolehi di kebanyakan lokasi dengan nilai purata masing-masing 1.22 dan 1.17 adalah setanding dengan sumber-sumber penerbitan yang lain yang mendapati nisbahnya lebih besar dari uniti iaitu 1.15 [3,11&13]. Merujuk kepada julat-julat tersebut, jelaslah ia menyimpang dari keseimbangan sekular ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}=1$). Keadaan ini menunjukkan kandungan ^{234}U melebihi kandungan ^{238}U di dalam air akibat kesan pertambahan kemasukan ^{234}U semasa air pasang. Menurut Rodriguez-Alvarez & Sanchez [12], fenomena ini terjadi kerana di kawasan tersebut terdapat proses-proses kompleks yang terlibat di dalam perlakuan tersebut. Pengurangan ^{238}U juga berlaku akibat daripada pencairan dan penyebaran ke atas pengkayaan radionuklid antropogenik oleh aliran pasang surut [14]. Begitu juga di muara, nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ adalah lebih dari nilai uniti, yang menunjukkan terdapat hubungan di antara pH dan keaktifan ^{234}U yang mana ia boleh diterangkan dengan menganggapkan nilai pH yang rendah akan menggalakkan proses larutlesap ^{234}U dari kedudukan kristal yang tidak teratur dan mengurangkan serapan ^{234}Th dan ^{234}U oleh partikel sedimen [12].

Perlakuan radionuklid ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel sedimen permukaan di persisiran pantai

Keputusan kajian ini mendapati profil taburan radionuklid ^{234}U dan ^{238}U yang dicerap di dalam sampel sedimen permukaan persisiran pantai yang diambil dari 10 stesen persampelan adalah tidak seragam, di mana keaktifannya berubah-ubah mengikut lokasi stesen seperti yang ditunjukkan dalam Jadual 2. Secara keseluruhannya, keaktifan radionuklid ^{234}U dan ^{238}U masing-masing adalah dalam julat 28.00 – 60.05 dan 25.15 – 55.15 Bq.kg⁻¹ berat kering. Merujuk kepada julat tersebut, catatan aras keaktifan tertinggi dikesan ialah di sekitaran muara Sungai Kelantan dan sebaliknya terendah di sekitaran muara Sungai Kuantan. Di beberapa muara seperti muara Sungai Kelantan, Sungai Pahang dan Sungai Rompin didapati aras keaktifannya agak tinggi iaitu melebihi 45 Bq.kg⁻¹ berat kering hingga 60 Bq.kg⁻¹ berat kering. Keadaan ini berlaku kerana muara-muara tersebut sentiasa menerima input sedimen dari daratan dan ianya adalah sungai-sungai besar di mana aliran air dan sedimen terampai sampai lebih jauh ke tengah laut [15].

Keaktifan ^{234}U adalah lebih tinggi berbanding dengan ^{238}U , disebabkan oleh sifat siri pereputan masing-masing, di mana ^{234}U mempunyai separa hayat ($t_{1/2}$) yang lebih pendek, dengan itu ia cepat dijana semula berbanding dengan ^{238}U . Kenyataan ini disokong oleh laporan yang telah dibuat oleh Keating et al. [14] yang menyatakan tiada pertambahan keaktifan hasil daripada pereputan ^{238}U secara *in-situ* kerana mempunyai $t_{1/2}$ yang amat panjang.

Seterusnya tiada hubungan korelasi secara statistik di antara aras keaktifan ^{234}U (R=0.08) dan ^{238}U (R=0.12) di dalam sedimen dengan kedalaman air. Ini menunjukkan bahawa, kedalaman air tidak mempengaruhi atau menghalang pergerakan radionuklid tersebut dari permukaan air ke dalam sedimen. Dengan kata lain, kewujudan ^{234}U di stesen kajian adalah hasil daripada pereputan induknya, ^{238}U . Bagi sesetengah stesen pula, didapati aras keaktifan ^{234}U adalah tinggi dan keadaan ini berkemungkinan berpunca dari perbezaan input daratan dan sungai.

Jadual 2: Keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel sedimen persisiran pantai di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia

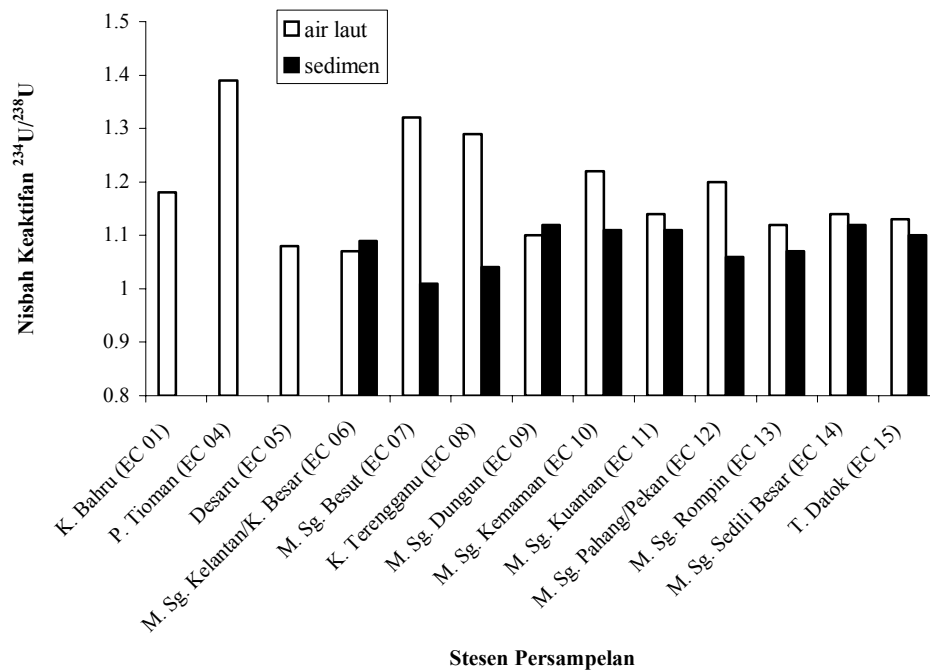
Stesen Persampelan	Keaktifan Spesifik (Bq/kg berat kering)		$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
	^{234}U	^{238}U	
Muara Sungai Kelantan/K. Besar (EC 06)	60.05 ± 4.38	55.15 ± 4.04	1.09 ± 0.85
Muara Sungai Besut (EC 07)	39.25 ± 2.87	39.05 ± 2.86	1.01 ± 0.65
Kuala Terengganu (EC 08)	29.27 ± 2.14	28.17 ± 2.36	1.04 ± 0.62
Muara Sungai Dungun (EC 09)	34.33 ± 2.51	30.78 ± 2.25	1.12 ± 0.66
Muara Sungai Kemaman (EC 10)	32.90 ± 2.40	29.57 ± 2.16	1.11 ± 0.64
Muara Sungai Kuantan (EC 11)	28.00 ± 2.05	25.15 ± 1.84	1.11 ± 0.60
Muara Sungai Pahang/Pekan (EC 12)	54.97 ± 4.01	52.00 ± 3.79	1.06 ± 0.80
Muara Sungai Rompin (EC 13)	50.70 ± 3.70	47.53 ± 3.48	1.07 ± 0.78
Muara Sungai Sedili Besar (EC 14)	28.73 ± 2.10	25.57 ± 1.87	1.12 ± 0.60
Tanjung Datok (EC 15)	35.80 ± 2.55	32.63 ± 2.38	1.10 ± 0.66

Nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam sedimen adalah dalam julat 1.01 – 1.12 (Jadual 2). Nilai purata nisbah keaktifan 1.08 adalah setanding dengan laporan yang ditulis oleh Balakrishna et al. [13]. Merujuk kepada julat-julat tersebut, jelaslah ia menyimpang daripada keseimbangan sekular. Di dapati hanya stesen muara sungai Besut dan Kuala Terengganu sahaja yang boleh dikatakan telah mencapai keseimbangan sekular di antara ^{234}U dan ^{238}U ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 1.01$ & 1.04), manakala stesen-stesen lain pula menunjukkan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 1$. Nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ adalah tinggi dari uniti di semua muara dan persisiran pantai telah disokong oleh laporan Keating et al [14] yang menyatakan pengkayaan ^{234}U berlaku semasa proses luluhawa dan pengangkutan. Ia juga disebabkan oleh pertambahan secara relatif kadar larutlesap ^{234}U berbanding dengan kadar ^{238}U yang mengakibatkan lebih banyak ^{234}U terdapat di situ [16]. Selain itu, ketinggian nisbah yang diukur juga disebabkan oleh gangguan daripada ^{237}Np yang mempunyai tenaga penyepaian yang hampir sama dengan ^{234}U [17].

Perlakuan ^{234}U , ^{238}U dan nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam air laut dan sedimen

Secara umumnya keaktifan kedua-dua radionuklid tersebut adalah tinggi secara relatif di dalam sedimen permukaan di persisiran pantai jika dibandingkan dengan keaktifannya di dalam air laut di kawasan laut dalam dan persisiran pantai. Keadaan ini disokong oleh kenyataan Yu et al. [10] yang menyatakan bahawa pecahan yang besar bagi uranium autigenik (secara *in-situ*) akan disalurkan kepada sedimen melalui dua proses: i) pengukuhan biogenik U di dalam turus air dan U dikaut oleh mikroorganisma dan ii) pemendakan U di antara permukaan air-sedimen, di mana kadar bahan organik reaktif yang tinggi akan meningkatkan aktiviti bakteria seterusnya menyebabkan U terperangkap di dalam sedimen samada secara langsung atau tidak langsung.

Purata bagi nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam air laut di kawasan laut dalam, persisiran pantai dan sedimen permukaan persisiran pantai adalah masing-masing 1.22, 1.17 dan 1.08 (Rajah 2). Menurut kajian lepas, nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam air laut adalah dalam julat 1.02 – 1.20 dengan purata 1.14 [2] dan 1.19 di dalam sedimen dari kawasan tropika [18]. Di dalam sedimen, kebanyakan uranium berasal daripada air laut, oleh itu nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ sepatutnya menghampiri nilai nisbah bagi air. Kadar pengumpulan uranium autigenik mempunyai kaitan dengan nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ daripada jumlah uranium di dalam sedimen. Di antara proses yang menyebabkan pengumpulan uranium di kebanyakan sedimen yang telah dinyatakan oleh Andersson et al. [19] ialah pengambilan aktif uranium secara biologi oleh plankton, serapan uranium terlarut secara kimia oleh partikel organik, dan proses penurunan dan pemendakan di dasar. Nisbah yang dipamerkan oleh air laut di persisiran pantai menunjukkan sumber ^{234}U adalah mungkin berpunca daripada input sungai atau daratan. Di samping itu, sedimen juga memberi sumbangan radionuklid tersebut kepada air atau sebaliknya. Walaupun hubungan korelasi yang ditunjukkan antara keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam air dan sedimen permukaan di persisiran pantai adalah sederhana iaitu ^{234}U ($R = 0.40$) dan ^{238}U ($R = 0.34$), tetapi sekurang-kurangnya ia menyokong kenyataan di atas.



Rajah 4: Taburan nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di dalam sampel air laut (laut dalam dan persisiran pantai) dan sedimen permukaan di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia

Kesimpulan

Kajian ke atas perlakuan isotop U (radionuklid ^{234}U dan ^{238}U) di dalam air laut (laut dalam dan persisiran pantai) dan sedimen persisiran di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia, mendapati profil perlakuan dan taburan isotop ini adalah berbeza-beza mengikut jenis isotop dan lokasi persampelan. Dalam kajian ini, secara umumnya julat keaktifan masing-masing ^{234}U dan ^{238}U yang diukur dalam sampel air laut permukaan masing-masing adalah 2.94 – 45.80 dan 2.12 – 38.10 Bq/m³, manakala di dalam sampel sedimen permukaan masing-masing adalah 28.00 – 60.05 dan 25.15 – 55.15 Bq/kg berat kering.

Di semua lokasi persampelan, nisbah keaktifan $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ adalah hampir seragam dalam julat 1.07 – 1.39 untuk sampel air laut dan 1.01 – 1.12 untuk sampel sedimen permukaan. Nisbah yang diperolehi ini adalah setanding dengan sumber-sumber penerbitan terdahulu.

Keputusan kajian, mendapati aras keaktifan ^{234}U dan ^{238}U di dalam sampel sedimen persisiran pantai dan air laut permukaan yang ditunjukkan di sesetengah stesen persampelan yang dikaji boleh dikatakan tinggi yang disebabkan oleh beberapa faktor sekitaran yang mempengaruhinya seperti yang telah dibincangkan. Dalam hal yang demikian, ia boleh mengukuhkan lagi bukti-bukti yang membolehkan kita membuat andaian bahawa stesen persampelan tersebut adalah sangat aktif secara fizik, kimia dan biologi.

Penghargaan

Kajian penyelidikan ini adalah merupakan sebahagian daripada projek Pembangunan Data Asas Keradioaktifan Marin di Malaysia di bawah kerjasama MINT-AELB [kod projek AELB-MINT (ENV-4/2003)]. Kami mengucapkan setinggi-tinggi terima kasih kepada AELB kerana menyediakan peruntukan bagi melaksanakan projek ini, dan Jabatan Perikanan Malaysia kerana menyediakan kapal untuk ekspedisi persampelan. Jutaan terima kasih juga diucapkan kepada kru kapal KL PAUS dan semua warga ekspedisi persampelan yang banyak membantu memperolehi sampel yang diperlukan.

Rujukan

1. Fujikawa, Y., Fukui, M., Sugahara, M., Ikeda, E. & Shimada, M. 2005. Variation in uranium isotopic ratios $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{238}\text{U}/\text{total-U}$ in Japanese soil and water samples-application to environmental monitoring. Sumber dari laman web <http://www.irpa.net/irpa10/cdrom/00809.pdf>. Tarikh akses: 14/06/2005.
2. Sugimura, Y. & Mayeda, M. 1980. The uranium content and the activity ratio $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ in sea water in the Pacific Ocean. In D.G. Edward, Y. Horibe & K. Saruhashi (Eds.), *Isotope Marine Chemistry* (pp. 211–246). Uchida Rokakuho Publishing Co., Ltd., Japan.
3. Cochran, J. K. 1982. The oceanic chemistry of U- and Th-series nuclides. In M. Ivanovich & R. S. Harmon (Eds.), *Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems* (pp. 384 – 430). Clarendon Press, Oxford.
4. Scott, M.R. 1982. The chemistry of U and Th-series nuclides in rivers. In M. Ivanovich & R. S. Harmon (Eds.), *Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems* (pp. 181– 202). Clarendon Press, Oxford.
5. Borole, D. V., Krishnaswami, S. & Somayajulu, B. L. K. 1982. Uranium isotopes in rivers, estuaries and adjacent coastal sediments of Western India: Their weathering, transport and oceanic budget. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **46**:125 – 137.
6. Sarin, M. M., Krishnaswami, S., Somayajulu, B. L. K. & Moore, W. S. 1990. Chemistry of uranium, thorium and radium isotopes in the Ganga-Brahmaputra river system: Weathering processes and fluxes to the Bay of Bengal. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **54**:1387 – 1396.
7. Palmer, M. R., & Edmond, J. M. 1993. Uranium in river water. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **57**:4947 – 4955.
8. Uchida, S., Garcia-Tenorio, R., Tagami, K. & Garcia-Leon, M. 2000. Determination of U isotopic ratios in environmental samples by ICP-MS. *J. Anal. At. Spectrom.*, **15**: 889 – 892.
9. Sam, A.K., Ahamed, M.M.O., El Khangi, F.A., El Nigumi, Y.O. & Holm, E. 1998. Radioactivity levels in the Red Sea Coastal Environment of Sudan. *Mar. Poll. Bull.* **36**(1): 19 – 26.
10. Yu, E. F., Liang, C. H. & Chen, M. T. 1999. Authigenic uranium in marine sediments of the Benguela current upwelling region during the last glacial period. *TAO*, **10**: 201 – 214.
11. Moore, W. S. 1967. Amazon and Mississippi river concentrations of uranium, thorium and radium isotopes. *Earth and Planetary Science Letters* **2**: 231–234.
12. Rodriguez-Alvarez, M. J. & Sanchez, F. 1995. Behavior of uranium along Jucar River (Eastern Spain): Determination of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios. *J. Radioanal. Nucl. Chem, Articles*, **190**: 113 –120.
13. Balakrishna, K., Shankar, R., Sarin, M. M. & Manjunatha, B. R. 2001. Distribution of U-Th nuclides in the riverine and coastal environments of the tropical southwest coast of India. *J. Environ. Radioact.*, **57**: 21 – 33.
14. Keating, G. E., McCartney, M. & Davidson, C. M. 1996. Investigation of the technological enhancement of natural decay series radionuclides by the manufacture of phosphates on the Cumbrian coast. *J. Environ. Radioact.*, **32**(1-2): 53 – 66.
15. Zal U'yun Wan Mahmood, Zaharudin Ahmad, Abd Kadir Ishak, Yii Mei Wo, Norfaizal Mohamed, Jalal Sharib, Kamarozaman Ishak, Khairul Nizam Razali & Maziah Mahmud. 2004. Kajian awal ke atas taburan radionuklid tabii di perairan Pantai Timur Semenanjung Malaysia. Pembentangan Lisan di SKAM 17, 2004, Kuantan, Pahang.
16. Osmond, J. K. & Cowart, J. B. 1982. Ground water. In M. Ivanovich & R. S. Harmon (Eds.), *Uranium series disequilibrium: Applications to environmental problems* (pp. 202 – 245). Clarendon Press, Oxford.
17. Assinder, D. J., Mudge, S. M. & Bourne, G. S. 1997. Radiological assessment of the Ribble Estuary-1. Distribution of radionuclides in surface sediments. *J. Environ. Radioactivity*, **36**(1), p: 1-19.
18. Khairul Nizam Mohd Ramli. 2005. Perubahan aktiviti ^{234}U , ^{238}U dan nisbah $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ di kawasan persisiran pantai Kuala Selangor, Selangor. Tesis Ijazah Sarjana Sains, Universiti Kebangsaan Malaysia.
19. Andersson, R.F., Fleisher, M. Q. & Leherary, A. P. 1989. Concentration, oxidation state and particulate flux of uranium in the Black Sea. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **53**: 2215-2224.