

## PERTANGGALAN ARTEFAK LOGAM DENGAN METODE RADIOKARBON

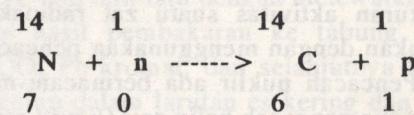
*Fonali Lahagu, Wisnu Susetyo, Wisyachudin Faisal, Paul Pujiiono*

### Pendahuluan

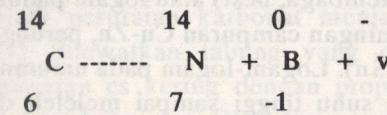
Keinginan menggali dan mengetahui nilai-nilai budaya dimasa lampau telah mendorong usaha mengetahui secara tepat umur berbagai benda peninggalan, benda/bahan-bahan yang dapat memberi informasi. Maka berkembanglah berbagai metode pertanggalan yang mampu menentukan umur sampai jutaan tahun, antara lain: pertanggalan metode potasium-argon (jutaan tahun), metode radiokarbon (puluhan ribu tahun), analisis cincin pohon (ribuan tahun), "fission track dating" (jutaan tahun), analisis fluor dan nitrogen (jutaan tahun), pertanggalan thermoluminescent (ribuan tahun), arkeomagnetik (ribuan tahun), analisis polen (ratusan ribu tahun), analisis stratigrafi dan petrologi (jutaan tahun).

Teknik Pertanggalan Radiokarbon dikembangkan pertama kali oleh Willard F. LIBBY (1961) dan untuk itu ia mendapat hadiah Nobel. Metode ini didasarkan pada pengukuran aktivitas karbon-14 yang bersifat radioaktif, yang meluruh sambil memancarkan sinar beta negatif. Karbon-14 memiliki karakteristik tenaga beta maksimum (Emax.) 156 ke-V, dan waktu paro (T) 5668 tahun. Karbon-14 terbentuk sebagai hasil reaksi nuklir antara nitrogen di lapisan atmosfer dengan sinar kosmis yang tidak lain adalah berkas

neutron tenaga sangat tinggi, menurut reaksi nuklir berikut:



Kemudian karbon-14 meluruh menjadi nitrogen-14 yang stabil sambil memancarkan sinar beta negatif dan anti neutrino ( $\bar{\nu}$ ), menurut:



Karbon-14 di atmosfer ditemukan dalam bentuk senyawa  $CO_2$  (gas karbon dioksida atau gas asam arang). Karbon-14 terikat pada tumbuhan-tumbuhan melalui foto sintesa. Tumbuhan-tumbuhan dimakan makhluk hidup sehingga karbon-14 juga terdapat pada makhluk hidup. Karbon-14 dalam bentuk senyawa  $CO_2$  juga larut dalam air dan mengendap sebagai karbonat pada batuan atau tanah. Karena karbon-14 terjadi secara terus menerus di lapisan atmosfer dan juga dalam waktu yang sama terjadi proses peluruhan maka kandungan karbon-14 di atmosfer, pada tumbuhan, di air, batuan dan tanah

mencapai kesetimbangan. Artinya aktivitas karbon-14 nya sama. Pada saat tumbuh-tumbuhan/mahluk hidup mati maka terputus penyediaan karbon-14 dari atmosfer pada tumbuh-tumbuhan/mahluk mati. Karena karbon-14 terus meluruh maka aktivitas karbon-14 pada tumbuh-tumbuhan/mahluk mati semakin rendah. Kalau diukur aktivitas karbon-14 pada tumbuhan/mahluk yang telah sekian lama mati maka dapat dihitung jarak waktu tersebut. Dengan demikian telah dilakukan pertanggalan dengan metode radiokarbon.

$$A(t) = A(0) \cdot e^{-0.693 \cdot t/T}$$

$A(t)$  = aktivitas (dpm atau dps) padat  
 $A(0)$  = aktivitas awal (dpm atau dps) pada  $t = 0$   
 $t$  = waktu peluruhan atau umur sejak mati  
 $T$  = waktu paro (T karbon-14 = 5568 tahun)  
 atau  
 $t = 8033 \ln A(0)/A(t)$  tahun

Pengukuran aktivitas suatu zat radioaktif dapat dilakukan dengan menggunakan pencacah (*detector*). Pencacah nuklir ada bermacam-macam diantaranya pencacah kelip cair (*liquid scintillation counter*). Pada prinsipnya semua bahan yang mengandung karbon dapat ditanggal dengan metode PRK.

Artefak logam dapat berupa logam murni (emas, perak, tembaga, besi) atau logam paduan/campuran (kuningan campuran Cu-Zn, perunggu campuran Cu-Sn). Logam-logam pada umumnya diproses pada suhu tinggi sampai meleleh dan selanjutnya didinginkan. Kualitas dan sifat fisinya tergantung pada proses pendinginan. Selama penurunan suhu, akan diperoleh fase-fase tertentu dengan sifat dan struktur yang berbeda-beda (fasealfa, gamma, dan delta). Penambahan bahan-bahan tertentu sebagai campuran sering diperlukan untuk memperoleh mutu logam yang lebih baik. Misalnya besi dicampur dengan karbon (persentase karbon berkisar dari 0,06% sampai 5% lebih). Dikenal 3 macam jenis besi tergantung dari kadar karbon di dalamnya: besi lunak (sekitar 0,06% C), besi baja (0,1% - 2,0% C), dan besi tuang (1,5% - 5% C). Dilihat dari

sini maka artefak logam dari bahan besi dapat ditanggal dengan menggunakan teknik PRK. Logam murni lainnya dan logam-logam paduan hampir tidak mengandung karbon. Karenanya pertanggalan secara langsung dengan metode PRK hampir tidak mungkin. Tetapi sering dijumpai artefak logam seperti kuningan, tembaga, perunggu, terikat pada tali, pada kayu, atau terbungkus kain. Bahan-bahan yang ikut serta tersebut, semua mengandung karbon sehingga dapat ditanggal. Dengan asumsi bahwa bahan-bahan ikutan tersebut seumur dengan logamnya.

Beberapa logam sering dicampur seperti kuningan, perunggu dan juga logam-logam yang dikatakan murni, sebenarnya masih mengandung beberapa logam ikutan sebagai pengotor. Komposisi dari berbagai logam-logam tersebut tidak selalu tetap. Hal itu tergantung pada tempat, pada waktu, pada teknologi pengolahan. Komposisi kimia artefak logam dapat menunjukkan era, asal usul benda-benda tersebut.

Dapat diterima tidaknya suatu hasil analisis dari suatu laboratorium harus dapat diuji melalui analisis hasil antar laboratorium di dalam negeri atau di luar negeri. Karenanya perlu dikembangkan kerjasama antar laboratorium, terhadap standar dan ataupun sampel-sampel biasa.

Makalah ini akan melaporkan teknik PRK, hasil uji standar IAEA, beberapa pertanggalan sampel arkeologi dari dalam negeri maupun luar negeri, uraian singkat beberapa metode teknik nuklir untuk analisis komposisi kimia dengan metode pengaktifan neutron dan metode pendar sinar-X, serta beberapa gagasan pemikiran tentang pemanfaatan dan pengembangan fasilitas Laboratorium Pertanggalan Radiokarbon di PPNY-BATAN.

### Teknik Pertanggalan Radiokarbon

Karbon di alam mempunyai tiga isotop yaitu 99% karbon-12, 1% karbon-13 yang tidak radioaktif, dan karbon-14 radioaktif sebesar  $1 \times 10^{-12}$  dari total karbon.

Di atas telah diuraikan hubungan aktivitas karbon-14 dengan umur suatu sampel. Selanjutnya umur dikatakan dengan aktivitas jenis yaitu aktivitas karbon-14 dalam dpm/g karbon. Aktivitas awal atau aktivitas jenis awal secara konsensus diambil aktivitas jenis karbon-14 dari asam oksalat standar IAEA. Sehingga rumusnya dapat dituliskan menjadi:

$$t = 8033 \ln \text{Sox/Ss. } 0,7459 \text{ (tahun)}$$

$t$  = umur (tahun) BP  
 Sox = aktivitas jenis oksalat setelah dikurangi latar  
 Ss = aktivitas jenis sampel setelah dikurangi latar  
 0,7459 = faktor koreksi terhadap asam oksalat  
 BP = "before present" artinya tahun sebelum saat ini (1950)

Beberapa koreksi yang perlu diperhitungkan untuk mendapatkan harga pertanggalan yang baik antara lain koreksi fraksinasi isotopik delta-13. Koreksi ini penting karena setiap tanaman mempunyai nisbah isotop berbeda-beda dari spesies satu dengan lainnya. Koreksi lingkaran pohon juga perlu diperhitungkan karena dari lingkaran pohon dapat ditunjukkan variasi CO<sub>2</sub> dari waktu ke waktu di masa lampau.

### Perlakuan Awal Terhadap Sampel

Kualitas hasil analisis sangat tergantung pada perlakuan awal terhadap sampel. Perlakukan awal dimaksudkan untuk menghilangkan kontaminan-kontaminan yang ikut bersama sampel. Kontaminan-kontaminan tersebut dapat menuangkan sampel atau memudakan sampel. Kontaminan dapat berupa akar-akaran, asam humik, pertukaran isotopik pada bahan yang mengandung karbonat. Sampel arang, kayu, dan sejenisnya dicuci dengan air, dibersihkan dari akar-akaran, direndam dalam larutan HCl 0,2 N, kemudian dicuci bersih, selanjutnya direndam dalam larutan NaOH 0,2 N, dicuci bersih sampai netral. Kalau perlu diulangi beberapa kali dan kadang-kadang perlu dengan pemanasan. Kalau itu kayu maka perlu dipotong-potong kecil untuk memperluas kontak dengan larutan pembersih. Larutan NaOH diperlukan untuk menangkap asam humic. Sampel tulang, kerang, direndam di dalam larutan HCl 0,2 N, kemudian dibersihkan dengan air. Kalau perlu beberapa kali. Setelah itu sampel dikeringkan dalam oven suhu sekitar 100 C.

### Penimbangan Berat Sampel Yang dibutuhkan

Kadar karbon dalam sampel berbeda satu sama lain. Dasarnya adalah bahwa 1 g karbon dapat menghasilkan 1 ml benzena. Banyaknya

benzene yang dibutuhkan untuk pencacahan dengan Pencacah Kelip Cair sekitar 3 ml (=2,6 g benzena). Arang 8-12 g, kayu 10-30 g, kerang (karbonat) 30-100 g, kerang (conchiolin) 500-255 g, tulang (karbonat) 100-500 g, tulang (collagen) 200-1000 g, besi lunak 1000-2500 g, besi baja 300-500 g, besi tuang 100-150 g, dan gambut 10-15 g.

### Pembuatan benzena (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>)

Bentuk atau wujud dari senyawa karbon yang diinginkan pada pencacahan tergantung pada jenis pencacahnya. Pencacah proporsional membutuhkan karbon dalam wujud gas CO<sub>2</sub> atau C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>. Pencacah jenis Pencacah Kelip Cair (PKC) membutuhkan sampel benzone (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>). Karbon dalam sampel mula-mula diubah menjadi gas CO<sub>2</sub>. Dikenal dua macam proses untuk membuat CO<sub>2</sub> tergantung dari macam sampelnya. Tulang, arang, kayu, selulosa, diperlakukan cara kering. Sampel dipanaskan pada kondisi vakum pada suhu 600 C. Kemudian dialiri gas oksigen dan dengan karbon menghasilkan CO<sub>2</sub>. Gas CO dibersihkan dari gas-gas H<sub>2</sub>O, NO<sub>x</sub>, SO<sub>y</sub>, dan lain-lain dengan melewatkannya campuran gas hasil pembakaran ke tabung yang berisi CUO, Pb-kromat, dan selanjutnya tabung yang dicelup dalam larutan es kering dan propanol-2. Sampel jenis oksalat, kerang, garam-garam karbonat diproses dengan metode basah. Larutan asam oksalat dioksidasi dengan larutan kMnO<sub>4</sub>, menghasilkan CO<sub>2</sub> juga dalam kondisi vakum. Kerang dilarutkan dalam asam fosfat pekat dan terjadi peruraian karbonat menjadi CO<sub>2</sub>. Gas CO<sub>2</sub> dilewatkan tabung yang dicelup dalam campuran es kering dengan propanol-2. Disini air membeku dan CO<sub>2</sub> terus membeku dalam tabung yang dicelup dalam nitrogen cair. CO<sub>2</sub> diubah menjadi gas dan direaksikan dengan litium cair pada suhu 650 C membentuk karbida Li<sub>2</sub>C<sub>2</sub>. Selanjutnya direaksikan dengan air menghasilkan gas karbida (asetilen C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>). Seperti halnya dengan CO<sub>2</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> ditampung dalam tabung yang dicelup dalam nitrogen cair. Selanjutnya C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> ditrimerasi dalam tabung yang berisi katalisator V2O<sub>5</sub> Perlakator menghasilkan benzena. Benzena dibebaskan dengan pemanasan suhu 100 C dan ditampung dalam tabung yang dicelup dalam es kering.

kering. Suhu es kering dalam propanol-2 sekitar -80 C, dan Nitrogen cair sekitar-196 C. Benzena siap untuk proses pencacahan.

### *Pencacahan dengan Pencacahan Kelip Cair Latar Rendah (PKCLR)*

KCLR sebelum dipakai untuk mencacah, terlebih dahulu dikalibrasi sesuai dengan urut-urutan test fungsinya. Setelah semua normal baru sampel dimasukkan dalam alat pencacah untuk dicacah aktivitasnya. Setiap kali pengukuran selalu disertai dengan pengukuran latar. Kedalam vial 7ml dimasukkan benzene 3 ml dan 05 ml coctail berisi PPO dan POPOP sebagai sintilator. Karbon-14 sebagai pemancah beta, menguja elektron pelarut dan selanjutnya molekul pelarut memancarkan sinar-X dan sinar-X ini menguja sintilator. Molekul-molekul sintilator memancarkan kelipan yang diteruskan ke tabung pengganda foton. Di sini foton diperkuat lagi dan selanjutnya diubah menjadi denyutan listrik, dicatat pada recorder. Banyaknya kelipan sebanding dengan aktivitas karbon-14 dalam sampel. Kemudian dihitung aktivitas jenisnya setelah dikurangi latar. Waktu pencacahan dipilih 27 x 100 menit bagi setiap sampel. Setiap kali pencacahan dibutuhkan benzena dari asam oksalat sebagai standar dan benzena dari sampel dan satu lagi benzena mati untuk peng-ukuran latar. Dari hasil pengukuran dan perhitungan tersebut maka dapat dihitung umur suatu sampel.

### *Hasil-hasil Penelitian Umur Sampel*

*Tabel 1 Hasil-hasil Penentuan Umur*

No.	Kode/Nama	Umur	
		Referens	PPNY
1	C4 SRR-3809d Kauri Wood IAEA	44525 BP	43566 BP
2	C5 Srr-3810a Twoo Creeks Wood, IAEA	11790 BP	11360 BP
3	C6 SSR-3811a Sucrose IAEA	151,2 AD	155,7 AD

Dari tabel 1 di atas ternyata bahwa hasil yang diperoleh di PPNY apabila dibandingkan dengan hasil dari IAEA tidak berbeda dan harga dari IAEA tersebut sudah merupakan

rata-rata dari berbagai laboratorium di dunia. Ini membuktikan bahwa prosedur kerja, ke-trampilan kerja, dan alat sintesa benzena serta pencacahan PKCLR adalah cukup baik dan dipercaya hasilnya.

*Tabel 2 Hasil-hasil Penentuan dari Berbagai Sampel*

No	Kode/Nama	Umur	
		Referens	PPNY
1	Kerang, Indian, USA		1929 BP
2	Arang, Indian, USA		1862 BP
3	Tulang, Indian, USA		1725 BP
4	Kerang, USA		7041 BP
5	Kerang Song Prahu Tuban		6971 BP
6	Arang, Nanga Balang, Kal.Bar.		2871 BP
7	Tulang, Trowulan, Mojokerto	Majapahit	46 BP (1467 AD)

Sampel 1,2,3, Tabel 2 diambil dari salah satu situs perkampungan Indian kuno di bagian selatan USA. Dari penelitian gerabah yang diperoleh di situs tersebut, diperkirakan sekitar 20 abad yang lalu. Demikian pula umur yang diperoleh dari sampel-sampel dari berbagai tempat di Jawa no. 5,6,7, semuanya masuk dalam perkiraan umur (relatif) dari data/catatan yang diterima PPNY-BATAN.

### *Teknik Pengambilan Sampel di Lapangan*

Pengambilan sampel di lapangan sangat penting. Perlu dijaga jangan sampai terkontaminasi dengan karbon modern. Karenanya peralatan yang dipakai, cara pembersihan pertama di lapangan perlu mengikuti prosedur yang benar, tempat-tempat pembungkus dari plastik polietilen atau kertas pembungkus aluminium perlu disediakan. Pengambilan sampel perlu diperhatikan horizon dimana sampel-sampel ditemukan dan diberi kode yang jelas dan konsisten.

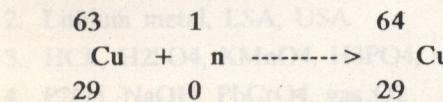
### *Komposisi Kimia Artefak Logam*

Komposisi kimia artefak logam mutlak diperlukan dan diinventaris. Pengetahuan yang baik akan komposisi logam murni dengan unsur-

unsur pengotor, komposisi logam paduan, tidak selalu sama dan selalu berubah sebagai fungsi waktu, tempat, dan teknologi pada waktu itu. Kalau benar demikian maka dengan mengetahui komposisinya maka secara tidak langsung dapat diketahui pertanggalannya dan juga tidak mudah terkecoh dengan barang yang secara fisik kelihatan sama tetapi sebenarnya secara kimia berbeda. Analisis Pengaktifan Neutron (APN) dan Metoda Pendar Sinar-X, dua diantara sekian banyak teknik nuklir yang akan diuraikan di sini.

### Analisis Pengaktifan Neutron

Analisis Pengaktifan Neutron pada prinsipnya adalah adsorpsi neutron oleh inti atom suatu nuklida menghasilkan nuklida radioaktif. Karena terbentuk zat radioaktif maka dapat dianalisis baik secara absolut maupun secara relatif.



Contoh aktifasi tembaga pada reaksi di atas menghasilkan isotop tembaga yang bersifat radioaktif, pemancar sinar gamma, dan beta, watu paro 12,8 jam. Aktivitas isotop tembaga yang radioaktif sebanding dengan banyaknya tembaga semula, sesuai dengan rumus sebagai berikut:

$$-0,693 \cdot t/T$$

$$A = \frac{N \cdot W \cdot K \cdot \emptyset \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-t/T})}{M}$$

A	= aktivitas individu nuklida hasil aktivasi (dps)
M	= massa atom relatif unsur induk
N	= bilangan Avogadro
W	= berat unsur induk
K	= kelimpahan isotop induk
$\emptyset$	= fluks neutron
t	= waktu iradiasi
T	= waktu paro
$\sigma$	= tampang serapan neutron

Sinar gama yang dipancarkan dapat dideteksi dengan metode radiometri gamma. Fasilitas

iradiasi dapat menggunakan Reaktor Nuklir. Keuntungan dari metoda ini adalah analisis multi element secara simultan.

### Analisis dengan metoda Pendar Sinar-X

Cara ini pada prinsipnya dibutuhkan semacam sumber eksitasi. Sumber dapat berupa sumber radioaktif Am-241, Cd-106, atau sistem tabung sinar-X. Sinar gamma atau sinar-X dari sumber mengaktifasi atom-atom dalam sampel. Masing-masing atom yang teraktifasi memancarkan sinar-X lain yang karakteristik untuk sebuah atom unsur. Atas dasar itu maka dapat dilakukan analisis kualitatif dan juga analisis kuantitatif. Metode ini mempunyai keuntungan karena termasuk analisis tidak merusak dan multi elemen secara simultan.

### Gagasan Pemikiran Pemanfaatan dan Pengembangan Laboratorium Radiokarbon

Di atas telah disinggung bahwa ada tiga isotop karbon, C-12, C-13, dan C-14 yang bersifat radioaktif. Delta (d) C-13 dapat dijadikan indikator bagi setiap spesies tanaman maupun biologi karena masing-masing mempunyai dC-13 yang berbeda dan karakteristik bagi setiap spesies. Dengan mengetahui dC-13 suatu sampel maka dapat diidentifikasi jenis makanan dalam suatu hunian kuno. Sehingga dapat diikuti evolusi peradaban dan kebudayaan dari jenis makanan. Di samping itu juga dengan mengetahui dC-13 dapat diketahui kemurnian suatu bahan alam. Untuk tujuan tersebut maka harus didukung analisis isotopik menggunakan spektrometer khusus untuk unsur ringan, dan PPNY sudah memilikinya. Beberapa gagasan pemikiran yang dapat diketengahkan sebagai topik riset di masa mendatang adalah:

1. Penentuan pusat-pusat lokasi kebudayaan seperti bekas kerajaan, ibukota, candi-candi termasuk penentuan umurnya.
2. Studi evolusi makanan dan hubungannya dengan evolusi teknologi pertanian
3. Studi pergeseran garis pantai
4. Studi civilisasi kuno Indonesia, migrasi dan difusi kebudayaan.

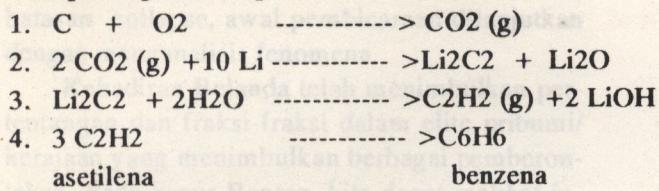
## Kepustakaan

- Brothwell, D., Higgs, E., Graham Clark  
1969 *Science in Archaeology*, Thames and Hudson, p.46-58, 555-563.
- Cresswell, R.  
1991 "Radiocarbon Dating of Iron Artifacts", *Radiocarbon*, vol.33, p.188.
- Haynes, C.V.  
1967 "Bone Organic Matter and Radiocarbon Dating", *Radioactive Dating and Methods of Low Level Counting*, IAEA, Vienna, p. 163.
- Kobayasi, Y.  
1988 "Liquid Scintillation Analysis", *Science and Technology Packard*, Instr. Co.Inc.
- Libby, W.F.  
1955 *Radiocarbon Dating*, Univ. of Chicago Press, Chicago second edition.
- Moore, W.J.  
1955 *Physical Chemistry*, Prentice Hall, Inc., and Maruzen Co.Ltd., p.147-152.
- Michels, J.W.  
1973 *Dating Methods in Archaeology*, *Radiocarbon Dating*, Seminar Press, N.Y., p.148-169.
- Noakes, J., et.al.  
*Benzene Synthesizer*, Instrument Manual.
- Plicht, J.V.D., Mook, W.G.  
1988 *Calibration of Radiocarbon Ages by Computer*, Centre for Isotope Research, Univ. of Groningen, Netherland.
- Roth, E.  
1968 *Chimie Nucleaire Appliquée*, Masson, p.219.
- Sheppard, J.C.  
1975 "A Radiocarbon Dating Primer", *Washington Univ. College of Engineering Bulletin* 338, Pullman, Washington.
- Wisyachudin, F., Lahagu, F., Dewi, K., Pujiono, P.  
1990 "Penanganan Cuplikan Kerang dengan Metoda Radiokarbon Dating", *Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Pengetahuan dan Teknologi Nuklir*, Yogyakarta.  
1990 "Metoda Penanganan Radiokarbon dengan Pembakaran Kering", *Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Pengetahuan dan Teknologi Nuklir*, Yogyakarta.
- Wisyachudin, F., Lahagu, F., Wisnu Susetyo  
1990 "Pengaruh Farksinasi Isotop Karbon Terhadap Pertanganan Cuplikan Arkeologi", *Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Pengetahuan dan Teknologi Nuklir*, Yogyakarta.

## Lampiran 1

## Tahap-tahap reaksi pembuatan benzene

## Tahap-tahap reaksi pembuatan benzene



## **Peralatan**

1. Liquid Scintillation Counter, HP 2000
  2. Benzena Synthesizer, CAIS-UGA, USA
  3. Furnace, Oven
  4. Frezer
  5. PC-IBM Compatible

## Bahan

1. Asam oksalat, NBS 4990 C
  2. Lithium metal, LSA, USA
  3. HCL, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, KMnO<sub>4</sub>, H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, semua kualitas p.a
  4. P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, NaOH, PbCrO<sub>4</sub>, gas O<sub>2</sub>
  5. Benzena mati, Toluena, PPO, POPOP
  6. Katalisator K.C. Peerlkator
  7. Glass wool, Quartz wool
  8. Ascarit II