

ANALISIS SAINTIFIK SAMPEL DARI TAPAK ARKEOLOGI SUNGAI BATU, KEDAH MENGGUNAKAN APLIKASI SINAR-X

(Scientific Analysis of Samples from Sungai Batu Archaeological Site, Kedah using X-Ray)

Abdul Mutalib Abdullah
amutalib@usm.my

Ahmad Fadly Jusoh
ahmad_fadly@usm.my

Mohd. Sairul Ramle
sairul@usm.my

Mokhtar Saidin
mmokh@usm.my

Pusat Penyelidikan Arkeologi Global,
Universiti Sains Malaysia.

Abstrak

Pendekatan saintifik dalam penyelidikan arkeologi menjadi suatu keperluan untuk membantu interpretasi data arkeologi pada masa ini. Aplikasi Sinar-X dalam pencirian sesuatu bahan sangat membantu ahli arkeologi untuk mengetahui bahan mentah yang asal dan teknologi yang digunakan, serta cara pembuatannya. Makmal Pencirian Bahan Bumi (MPBB), Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia (USM) mempunyai peralatan Mikroskop Pengimbas Elektron (*Scanning Electron Microscope* (SEM)), Pendaflour Sinar-X (*X-Ray Fluorescence* (XRF)), dan Belauan Sinar-X (*X-Ray Diffraction* (XRD)) yang dapat menganalisis kandungan kimia dan mineral sampel arkeologi secara kualitatif dan kuantitatif. Artikel ini akan membincangkan lebih lanjut berkaitan dengan jenis analisis dan aplikasinya yang dapat dibuat terhadap beberapa sampel arkeologi dari Tapak Arkeologi Sungai Batu, Kedah.

Kata kunci: sinar-x, SEM, XRF, XRD

Abstract

Scientific approach in archaeological research is crucial in interpreting archaeological data. X-Ray application in characterising particular material assists archaeologists in discovering the raw material, technology applied usage and other parameters. The Earth Material Characterisation Laboratory at the Center of Archaeological Research at USM provides chemical and mineral analysis of archaeological samples qualitatively and quantitatively using Scanning Electron Microscope (SEM), X-Ray Fluorescence (XRF) and X-Ray Diffraction (XRD). This article further discusses the types of analysis and applications that can be implemented to archaeological samples from Sungai Batu archaeological site in Kedah.

Keywords: x-ray, SEM, XRF, XRD

PENDAHULUAN

Pendekatan sains dalam arkeologi dimulakan sejak era 1960-an kerana timbul kesedaran dalam kalangan penyelidik untuk mendapatkan maklumat yang lebih bermakna tentang interpretasi data. Berbeza daripada arkeologi saintifik, pendekatan yang diambil sebelum itu lebih bersifat pengalaman peribadi dan dinilai berdasarkan kompetensi kepakaran berbanding dengan penilaian terhadap data empirikal yang diperoleh (Douglas, 2012). Interpretasi data arkeologi akan lebih mencabar sekiranya jumpaan artifak terhad atau tapak arkeologi mengalami kerosakan. Oleh sebab itu, pendekatan kajian multidisiplin dalam penyelidikan arkeologi sangat penting kerana dapat memberikan maklumat sebanyak mungkin berdasarkan sesuatu jumpaan. Aplikasi sinar-X dalam analisis artifak arkeologi digunakan secara komersial untuk analisis elemen sejak tahun 1950-an yang diperkenalkan oleh Wilhelm K. Roöntgen, seorang ahli fizik dari Jerman (Shackley, 2011).

Pada tahun 2011, Pusat Penyelidikan Arkeologi Global (PPAG), USM mengambil inisiatif untuk menubuhkan Makmal Pencirian Bahan Bumi (MPBB) yang dilengkapi dengan beberapa peralatan berteknologi tinggi yang menggunakan aplikasi sinar-X untuk membantu menganalisis sampel arkeologi. Penubuhan makmal ini membantu menjawab pelbagai persoalan arkeologi dan memberikan gambaran yang lebih jelas tentang fungsi sesuatu tapak mahupun artifak yang dijumpai. Tapak arkeologi Sungai Batu merupakan salah satu contoh tapak arkeologi yang boleh dijadikan sebagai kajian kes.

Tapak Arkeologi Sungai Batu mula diekskavasi oleh USM sejak tahun 2008 hingga kini. Terdapat lebih 50 daripada 97 tapak diekskavasi dan hasil penyelidikan ini menemukan tapak yang mempunyai pelbagai fungsi seperti jeti kuno (Ikliil, 2014),

tapak ritual (Zulkornian, 2011), struktur bangunan sokongan (Siha, 2014), dan tapak peleburan besi (Naizatul, 2012). Pentarikhan saintifik membuktikan ketamadunan masyarakat Melayu bermula seawal abad ke-5 Sebelum Masihi (Suhana, 2015). Sungai Batu wujud terlebih dahulu sebagai pusat perdagangan bermula abad ke-5 Sebelum Masihi sebelum kemunculan Sungai Mas (5 – 10 Masihi) dan Pengkalan Bujang (11 – 13 Masihi) sebagai pusat perdagangan pada zaman Kerajaan Kedah Tua (Foto 1). Antara koleksi artifak yang dijumpai termasuklah bata, gelang gangsa, inskripsi batu, *tuyere*, sisa besi, alat besi, dan lain-lain (Foto 2).

Penemuan pelbagai struktur binaan dengan pelbagai fungsi menunjukkan kewujudan sebuah tamadun yang maju, mempunyai struktur masyarakat yang kompleks dan melakukan pelbagai aktiviti ekonomi. Hal ini menggambarkan tahap pengetahuan masyarakat pada ketika itu yang sudah berada pada tahap tinggi. Penelitian terhadap artifak dan struktur binaan yang terdapat di Sungai Batu



Foto 1 Peta kedudukan (A) Sungai Batu, (B) Pengkalan Bujang dan (C) Sungai Mas pada abad ke-11 hingga abad ke-13 Masihi. Laluan air yang semakin sempit ke Sungai Batu menyebabkan kemerosotan aktiviti perdagangan di kawasan tersebut.



Foto 2 Antara koleksi artifak tapak arkeologi Sungai Batu.

mengundang pelbagai jenis persoalan yang perlu dijawab dengan menggunakan pendekatan pelbagai disiplin ilmu bagi membolehkan interpretasi lengkap dihasilkan. Artikel ini membincangkan beberapa contoh persoalan arkeologi yang timbul di Tapak Arkeologi Sungai Batu dan pendekatan saintifik yang digunakan seperti dalam Jadual 1.

Jadual 1 Senarai jenis analisis saintifik yang digunakan untuk menjawab persoalan di tapak arkeologi Sungai Batu.

Bil.	Persoalan	Analisis Saintifik Berkaitan
1	Adakah manik yang dijumpai di Sungai Batu ini dibuat oleh penduduk tempatan atau diimport?	SEM/EDX
2	Bagaimanakah masyarakat Sungai Batu mencipta bahan seperti bata dan atap genting yang mempunyai ketahanan tinggi?	XRD, XRF
3	Apakah campuran bahan/nisbah yang digunakan untuk menghasilkan bata yang berkualiti?	SEM/EDX, XRF

ANALISIS MANIK DAN BATA SUNGAI BATU MENGGUNAKAN TEKNIK SEM/EDX

2.1 Pendahuluan

Mikroskop Pengimbas Elektron (SEM) digunakan dalam penyelidikan arkeologi sejak empat dekad yang lalu. Universiti of Cambridge membangunkan SEM yang pertama

secara komersial dengan jenama 'Stereoscan' pada tahun 1965 dan sejak itu SEM berkembang dan digunakan dengan pelbagai aplikasi dalam penyelidikan ilmiah. Jonathan Pilcher (1968) menerbitkan sebuah artikel terawal yang membincangkan aplikasi SEM dalam arkeologi. Beliau menggunakan kaedah SEM untuk mengenal pasti jenis spora melalui struktur morfologinya untuk membina semula paleoalam pada masa lampau.

Selepas itu, ahli arkeologi dari Muzium British, iaitu Don Brothwell (1969) membincangkan dengan terperinci tentang kelebihan SEM untuk menganalisis material arkeologi seperti sisa tulang dan gigi, fiber, tinggalan flora, dan alat batu. Bermula pada era 80-an, penggunaan SEM dalam penyelidikan arkeologi mula mendapat perhatian serius oleh para pengkaji. Pada tahun 1986, satu seminar bertajuk Scanning Electron Microscope (SEM) in Archaeology dianjurkan di Universiti of London dan sebuah prosiding diterbitkan oleh Sandra Olsen yang bertindak sebagai editor pada tahun 1988. Sehingga kini, SEM digunakan secara meluas dalam aspek penyelidikan arkeologi seiring dengan kemajuan teknologi aplikasinya. Kini, dalam kebanyakan sistem SEM, unit aksesori EDX didatangkan sekali untuk melengkapkan fungsinya, iaitu (1) SEM untuk menghasilkan imej sampel pembesaran tinggi menggunakan elektron dan (2) EDX untuk mendapatkan maklumat kandungan kimia sesuatu sampel.

2.2 Penyediaan Sampel

Secara umumnya, semua sampel pepejal boleh diuji menggunakan SEM. Manik, tulang, gigi, kepingan besi, syiling, alat batu, dan lain-lain ialah contoh artifak arkeologi yang boleh dianalisis. Saiz maksimum sampel yang boleh dimasukkan



Foto 3 Manik dilekatkan pada stub untuk analisis SEM/EDX.

ke dalam sistem SEM berdiameter kira-kira 15 cm. Artifak bata perlu dipotong kepada bahagian kecil (5cm x 5cm), manakala manik pula terus dilekatkan di atas pita karbon untuk dianalisis. Kelebihan analisis menggunakan SEM/EDX terhadap artifak bersaiz kecil seperti manik dan gigi tidak merosakkan sampel yang diuji.

2.3 Analisis dan Interpretasi SEM/EDX

Sebanyak 33 sampel manik yang dianalisis dipilih secara rawak mengikut warna, bentuk dan jenis. Foto 4, Jadual 2 dan Jadual 3 menunjukkan hasil keputusan analisis yang dilakukan.

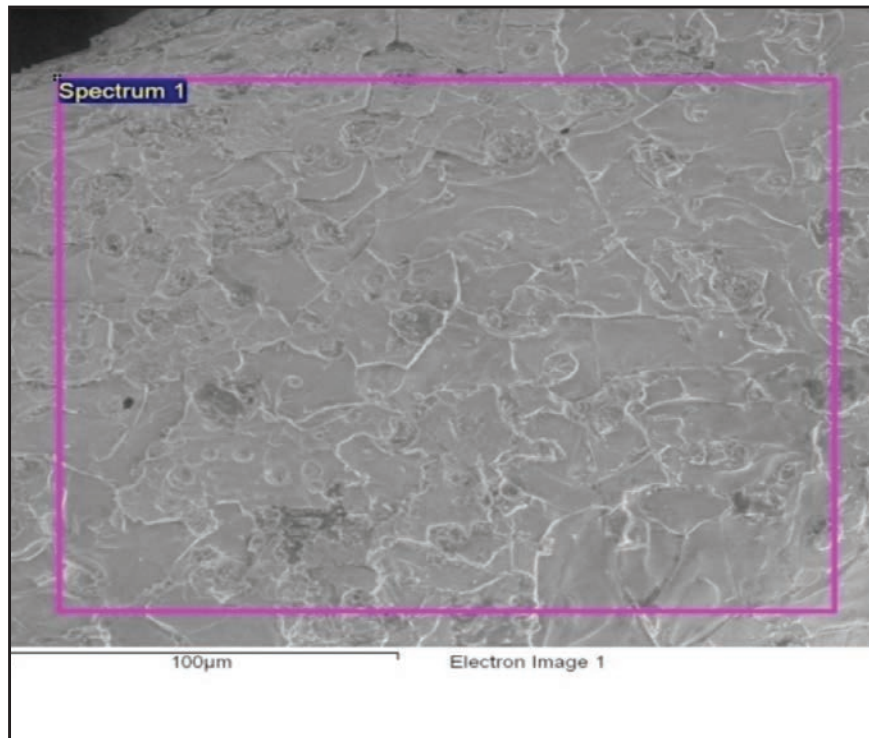


Foto 4 Imej SEM permukaan manik pada pembesaran 300x.

(Sumber: Iklil, 2016)

Daripada teknik pengimejan yang dilakukan terhadap permukaan sampel manik, didapati kebanyakan manik dari Sungai Batu mempunyai lapisan kaca pada permukaannya yang menunjukkan kandungan silika (SiO_2) yang tinggi sebagai bahan asas pembuatan manik.

Jadual 2 Hasil analisis EDX terhadap 33 sampel manik kaca Sungai Batu.

Bil.	Sampel	Peratus Berat Elemen (W %)											Ciri Fizikal
		Na	Mg	Al	Si	Cl	K	Ca	Fe	Sn	Ti	Pb	
1	Sampel 1i	5.07	0.55	9.22	27.11	1.27	2.24	1.75	8.1	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i>
2	Sampel 2i	4.71	-	12.65	28.29	-	-	-	14.38	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i>
3	Sampel 3i	3.35	-	13.09	25.37	-	1.39	0.99	10.43	-	-	-	5.0R 4/8 <i>Rose Taupe</i>
4	Sampel 4i	6.14	0.62	8.17	27.27	0.56	2.58	1.66	8.54	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i> & 2.5 4/6 <i>Mustard Brown</i>
5	Sampel 5i	5.19	0.64	8.62	27.92	0.77	1.53	1.63	8.62	-	-	-	10.0YR 5/8 <i>Butterscotch</i>
6	Sampel 2ii	1.56	-	7.16	37.14	-	3.02	1.83	-	-	-	-	2.5B 3/6 <i>Grayish Blue</i>
7	Sampel 3ii	5.56	-	6.65	34.5	-	2.65	2.12	-	-	-	-	7.5G Dark <i>Emerald Green</i>
8	Sampel 4ii	6.6	-	7.22	33.11	0.96	2.24	2.49	-	-	-	-	2.5B 3/6 <i>Grayish Blue</i>
9	Sampel 5ii	1.44	-	7.25	35.86	-	2.59	3.25	-	-	-	-	2.5B 3/6 <i>Grayish Blue</i>
10	Sampel 14i	6.63	-	6.63	31.58	-	2.58	2.51	-	-	-	-	7.5Y 8/6 <i>Light Lemon Yellow</i>
11	Sampel 19ii	4.24	0.85	7.59	31.58	-	4.52	2.3	-	-	-	4.35	7.5YR 8/6 <i>Light Lemon Yellow</i>
12	Sampel 14ii	0.71	2.1	5.45	29.52	-	1.64	3.07	13.1	-	-	-	10.0YR 5/10 <i>Topaz</i>
13	Sampel 6i	5.41	-	13.39	31.52	-	-	-	-	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i>
14	Sampel 7i	6.03	-	12.09	31.09	-	4.19	-	-	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i>
15	Sampel 8i	5.19	-	9.65	33.47	-	-	-	-	-	-	-	2.5YR 5/10 <i>Copper</i>
16	Sampel 9i	2.78	0.58	11.28	25.62	0.82	2.23	1.2	10.91	-	-	-	5.0R 4/8 <i>Rose Taupe</i>
17	Sampel 10i	9.19	0.38	7.39	29.91	1.08	10.19	1.33	6.99	-	-	-	10.0YR 5/10 <i>Topaz</i> & 2.5Y 2/2 <i>Dark Brown</i>
18	Sampel	5.39	-	6.34	36.09	-	-	-	-	-	-	-	5.0 B 4/6 <i>Medium Blue</i>

sambungan **Jadual 2**

Bil.	Sampel	Peratus Berat Elemen (W %)											Ciri Fizikal
		Na	Mg	Al	Si	Cl	K	Ca	Fe	Sn	Ti	Pb	
19	Sampel 8ii	-	-	7.2	37.17	-	2.43	2.84	-	-	-	-	7.5GY 6/6 <i>Leaf Green</i>
20	Sampel 9ii	1.02	-	7.72	39.61	-	-	-	-	-	-	-	10.0GY 4/8 <i>Deep Green Grass</i>
21	Sampel 18ii	1.04	0.51	9.28	35.25	-	2.27	2	-	-	-	-	7.5YR 8/6 <i>Light Lemon Yellow</i>
22	Sampel 6ii	-	1.44	5.05	41.73	-	-	-	-	-	-	-	2.5G 3/6 <i>Dark Green</i>
23	Sampel 16ii	3.54	-	11.12	24.74	-	1.96	0.97	13.7	-	-	-	2.5YR 5/10 <i>Copper</i>
24	Sampel 22ii	-	1.89	2.49	39.82	-	1.71	3.52	-	-	-	-	2.5B 5/5 <i>Medium Turquoise Blue</i>
25	Sampel 10ii	1.33	-	6.79	39.29	-	1.86	-	-	-	-	-	2.5B 3/6 <i>Grayish Blue</i>
26	Sampel 11ii	-	-	8.04	37.84	-	3.22	-	-	-	-	-	10.0BG 4/8 <i>Turquoise</i>
27	Sampel 15ii	5.4	-	11.29	28.26	-	1.93	1.2	10.81	-	-	-	7.5R 4/6 <i>Antique Rose</i>
28	Sampel 23ii	0.67	0.34	7.53	37.12	-	2.24	1.74	-	-	-	-	N1 <i>Lamp Black</i>
29	Sampel 12ii	6.14	0.45	9.59	29.23	-	1.81	-	10.35	1.86	0.8	-	10.0G 6/6 <i>Light Jade Green</i>
30	Sampel 13ii	-	-	8.08	34.36	-	2.28	1.18	-	2.5	-	-	5.0BG 3/6 <i>Teal Green</i>
31	Sampel 17ii	3.24	-	7.62	35.12	1.59	2.39	2.78	-	-	-	-	5.0Y 8/10 <i>Daffodil</i>
32	Sampel 21ii	0.97	0.49	8.99	35.79	-	2.185	1.22	-	-	-	-	7.5YR 8/6 <i>Light Lemon Yellow</i>
33	Sampel 1ii	1.86	-	5.41	38.06	1.3	3.13	0.74	-	2.37	-	-	7.5G 5/6 <i>Jade Green</i>

(Sumber: Iklil, 2016)

Jadual 3 Analisis perbandingan elemen kimia antara sampel manik hitam Tapak Arkeologi Sungai Mas (Sampel 26ii dan 27ii) dengan Sungai Batu (23ii).

Sampel	Peratus Berat Elemen (W%)							Ciri Fizikal
	Na	Mg	Al	Si	Cl	K	Ca	
23ii	0.67	0.34	7.53	37.12	-	2.24	1.74	N1 Lamp Black
26ii	9.41	0.45	6.89	31.19	-	2.52	2.73	N1 Lamp Black
27ii	5.5	0.52	6.68	34.44	-	2.78	1.50	N1 Lamp Black

(Sumber: Iklil, 2016)

Berdasarkan Jadual 2 dan 3, 82.9 peratus manik yang dianalisis terdiri daripada manik jenis kaca soda (kaya Natrium oksida, NaO dan Silika, SiO₂). Manik warna hitam Sungai Batu didapati mempunyai persamaan dari segi kandungan kimia dengan manik hitam yang ditemui di Tapak Sungai Mas. Hal ini menunjukkan bahawa manik kaca Sungai Batu ini berkemungkinan berasal dari Sungai Mas kerana tapak Sungai Mas mempunyai bukti proses pembuatan dan perdagangan manik (Iklil, 2016). Manik daripada jenis kaca soda yang ditemui pula boleh dikaitkan dengan

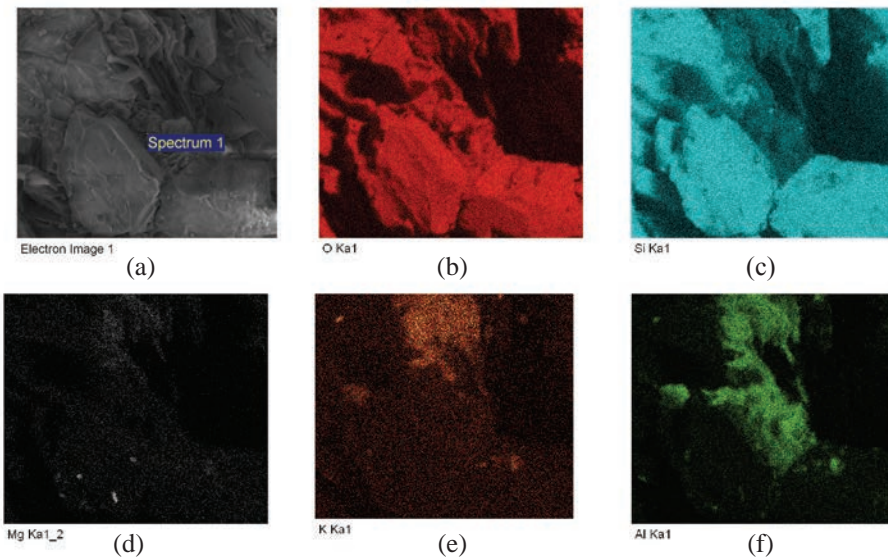


Foto 5 Analisis pemetaan unsur terhadap sampel bata kuno dari tapak arkeologi Sungai Batu. (a) imej SE, (b) taburan unsur oksigen, (c) taburan unsur silikon, (d) taburan unsur magnesium, (e) taburan unsur kalium dan (f) taburan unsur aluminium menggunakan teknik EDX.

aktiviti perdagangan dengan negara India. Analisis data yang dibentangkan ini ialah data awal yang memerlukan proses kajian lanjut sebelum interpretasi penuh dibuat.

Dalam Foto 5, analisis awal terhadap serpihan bata Sungai Batu menunjukkan kehadiran elemen oksigen, silikon, magnesium, kalium, dan magnesium. Hal ini menunjukkan bahawa elemen kimia ini digunakan sebagai bahan mentah dalam proses pembuatan bata. Walau bagaimanapun, maklumat pemetaan unsur ini tidak mencukupi kerana bersifat kualitatif. Analisis kuantitatif menggunakan teknik XRF diperlukan bagi mengetahui dengan lebih lanjut tentang nisbah campuran pembuatan bata yang akan dibincangkan dalam bab interpretasi XRF.

3.0 ANALISIS BATA DAN ATAP GENTING MENGGUNAKAN TEKNIK XRD

3.1 Pengenalan

Setiap bahan artifak mempunyai kandungan mineral yang berbeza bergantung pada jenis bahan yang digunakan atau teknologi pembuatannya. Teknik penghasilan bahan juga berubah mengikut peredaran zaman. Sebagai contoh, masyarakat awal Sungai Batu pada mulanya membuat bata dengan mencampurkan tanah dengan tanah liat, serta digaul dan dijemur hingga kering sebagai teknik asas. Teknologi ini kemudian berkembang sehinggalah mereka menemui teknik pembakaran bata.

Komposisi kimia dan kandungan mineral yang berbeza ini dapat dikenal pasti melalui penggunaan teknik XRD. Umumnya, XRD mampu menganalisis pelbagai bahan seperti sebatian kimia farmaseutikal, komponen bahan kejuruteraan, mineral di dalam tanah, kaca, polimer, logam, material forensik, zeolit dan pelbagai bahan lain (Skoog *et al.*, 1998). Secara teorinya, sinar-X merupakan sinaran elektromagnetik dengan panjang gelombang yang pendek dalam lingkungan 10^{-12} hingga 10^{-8} m. XRD mengukur kedudukan dan keamatan sinar-X ini dari suatu permukaan sampel berhablur dengan kedudukan atom relatif dalam unit ulangan molekul dan juga segmennya di dalam sel unit yang dapat ditentukan sebagai nilai *d-spacing*. Setiap mineral mempunyai corak spektrum yang berbeza antara satu dengan yang lain. Oleh sebab itu, penggunaan teknik XRD sangat berguna untuk memberikan maklumat tepat berkenaan dengan kandungan bahan, komposisi mineral, dan mencadangkan teknik pembuatan yang digunakan, terutamanya aspek suhu pembakaran. Teknik ini sangat sesuai diaplikasikan dalam penyelidikan artifak di Sungai Batu. Malah, penyelidik terdahulu seperti Zuliskandar (2012) pernah membuat penyelidikan terhadap komposisi mineral dan komposisi artifak bata yang ditemui di Candi Sungai Mas, Lembah Bujang menggunakan teknik XRD dan XRF.

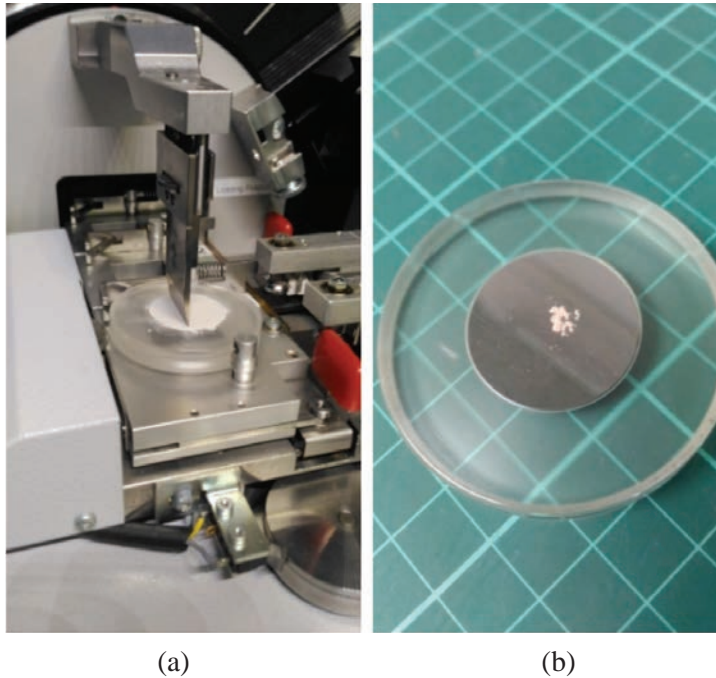


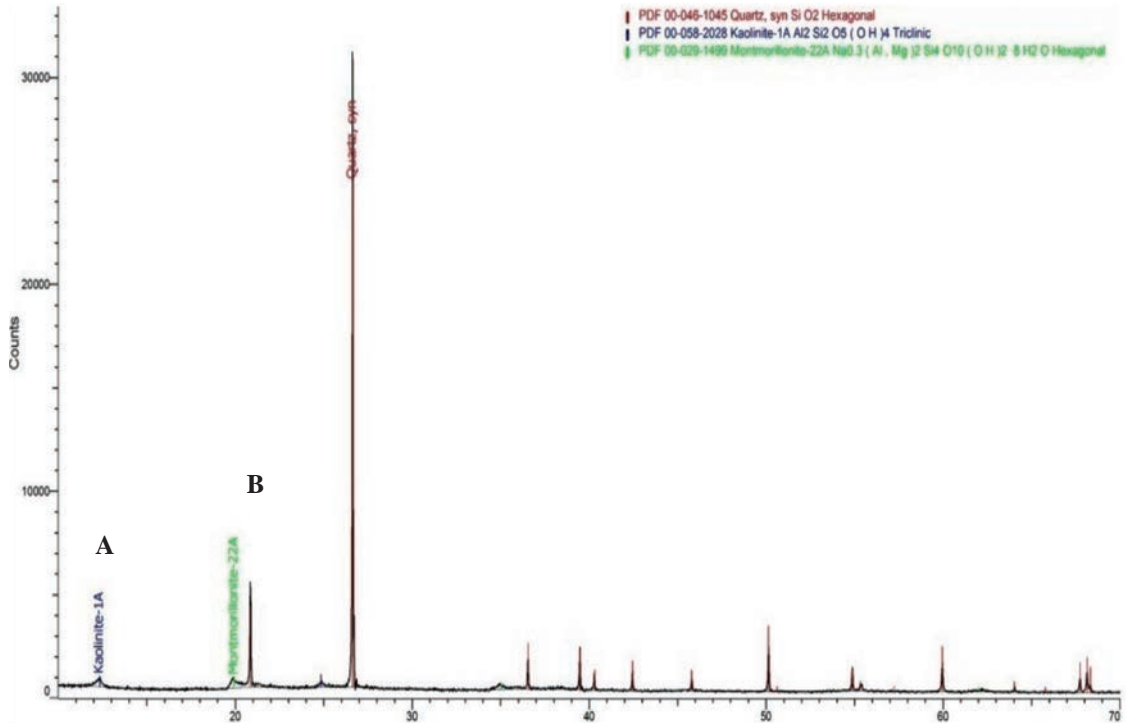
Foto 6 (a) Sampel serbuk sebanyak 10g di atas pemuat sampel pukal dan (b) pemegang sampel Low Background untuk kuantiti sampel yang terhad.

3.2 Penyediaan sampel XRD

Pensampelan sesuatu artifak lazimnya akan mendorong kerosakan struktur asalnya. Oleh itu, sedikit sampel akan diambil untuk tujuan analisis. Sebanyak kira-kira 10g sampel dalam bentuk serbuk dengan saiz partikel kurang $20\mu\text{m}$ diperlukan bagi menganalisis kandungan bahan di dalam sampel. Bagi sampel yang mempunyai kekangan kuantiti kerana kandungannya yang terlalu sedikit, sampel perlu diletakkan di atas pemegang sampel Low Background (Foto 6).

3.3 Analisis dan Interpretasi XRD

Analisis yang dibuat terhadap sampel bata dari tapak arkeologi Sungai Batu menunjukkan kehadiran beberapa mineral penting seperti silikat dan mineral lempung (*clay*). XRD mampu membezakan jenis mineral walaupun bahan tersebut datang daripada kumpulan yang sama seperti contoh mineral kaolinit dan montmorilonit yang merupakan mineral daripada kumpulan lempung (*clay*) (Rajah 1).

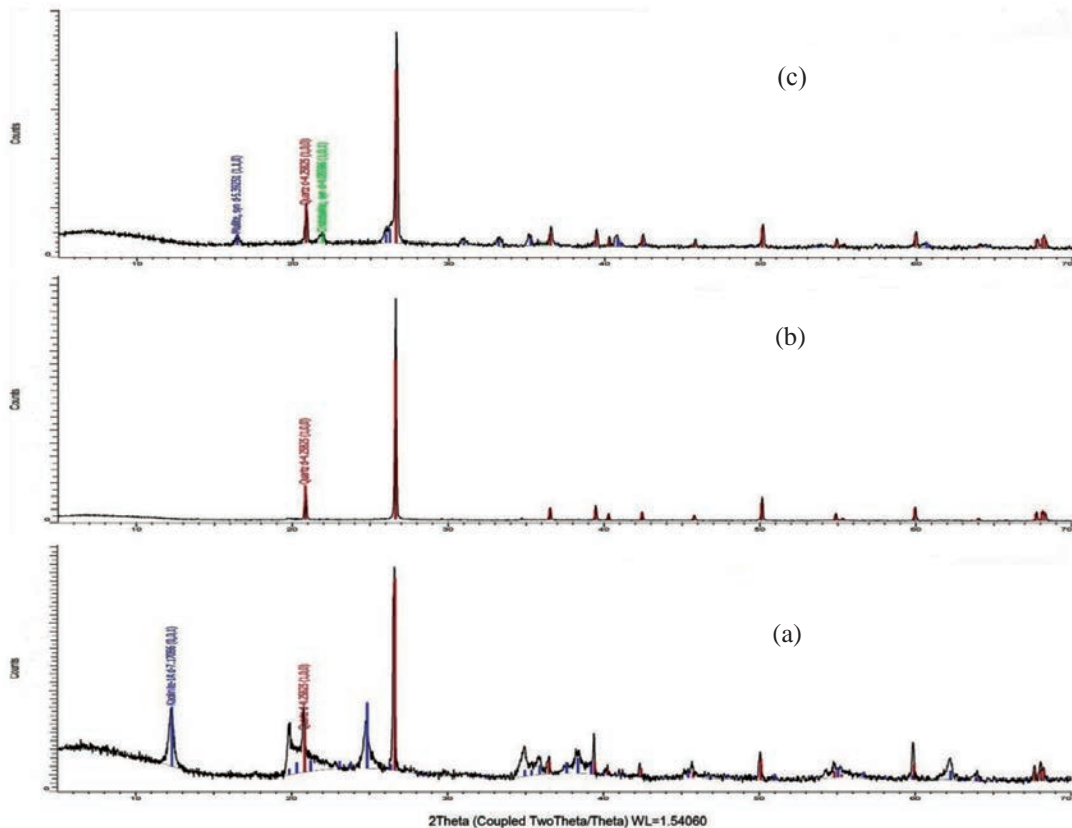


Rajah 1 Analisis XRD dapat membezakan mineral yang kompleks seperti dua jenis mineral lempung (*clay*), iaitu kaolinit (A) dan montmorilonit (B).

Analisis perbandingan kandungan mineral bahan seperti tanah liat (a), artifak bata (b) dan artifak atap genting (c) dari Sungai Batu dibuat bagi menentukan kandungan mineral dan teknologi pembuatannya (Rajah 2). Sampel tanah liat (a) menunjukkan kehadiran mineral lempung (*clay*) montmorilonit, kaolinit dan kuarza (pasir) yang terdapat dalam tanah liat. Sampel bata (b) pula hanya menunjukkan kehadiran mineral kuarza sahaja, manakala tiada mineral lempung direkodkan. Hal ini berlaku akibat pelenyapan mineral lempung kerana suhu dan tekanan tinggi dikenakan semasa pembakaran bata dibuat. Kaolinit ialah sejenis mineral aluminasilikat yang terdiri daripada lapisan tetrahedral silika dan oktahedral alumina dan membentuk formula $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$. Pada suhu yang tinggi antara $500 - 600^\circ\text{C}$, hablur kaolinit mengalami dehidroksilasi (penyingkiran molekul air (OH)) daripada kekisi struktur dan menghasilkan metakaolin. Metakaolin ialah amorfus dan tidak dapat dikesan oleh XRD. Peningkatan suhu sehingga $850^\circ - 950^\circ\text{C}$ akan menyebabkan metakaolin pula melebur (Caspar, 2001). Hal ini

membuktikan pembuatan bata kuno di Sungai Batu melibatkan proses pembakaran melebihi $500^{\circ} - 600^{\circ}\text{C}$.

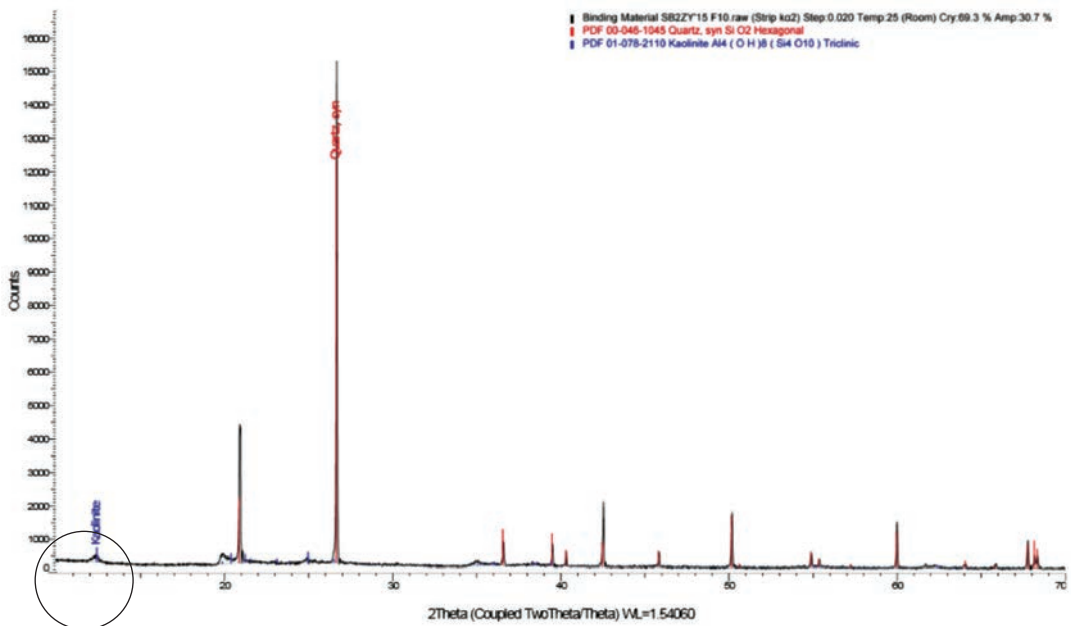
Bagi artifak atap genting (c), mineral mullit (*mullite*) hadir selain kuarza. Mullit hanya akan hadir hasil interaksi antara silika (SiO_2), biasanya diwakili kuarza dan alumina (Al_2O_3), yang biasanya daripada mineral lempung dalam tanah. Tanah liat yang digunakan ialah jenis kaya dengan alumina dan digaul bersama-sama pasir yang kaya dengan silika. Apabila suhu yang tinggi dalam anggaran $1200^{\circ}\text{C} - 1400^{\circ}\text{C}$ dikenakan, mineral mullit akan terbentuk, mengiringi kuarza dan kristobalit. Hal ini menunjukkan bahawa suhu pembakaran lebih tinggi daripada 1200°C dalam pembuatan atap genting.



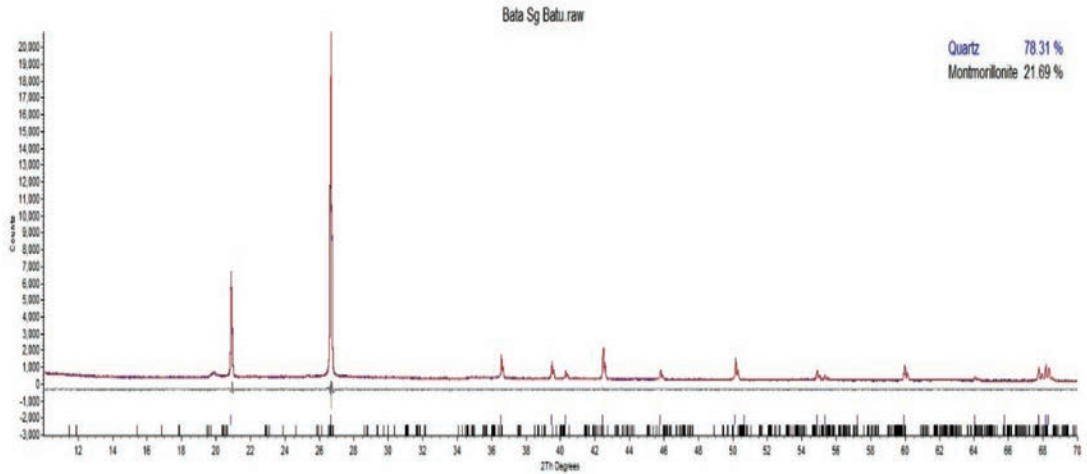
Rajah 2 Pola belauan XRD bagi wakil tanah liat (a), bata (b) dan atap genting (c) di tapak Sungai Batu. Tanah liat (a) mengandungi kuarza dan kaolinit, bata (b) mengandungi kuarza sahaja, sementara atap genting (c) mengandungi kuarza, kristobalit dan mullit.

Sampel perekat bata yang dicerap mengandungi mineral kuarza (SiO_2) dan kaolinit ($\text{Al}_4(\text{OH})_8(\text{Si}_4\text{O}_{10})$) (Rajah 2). Kuarza ialah pasir yang hadir daripada tanah yang digunakan, manakala kaolinit ialah lempung (tanah liat). Campuran ini membuktikan bahawa tapak arkeologi Sungai Batu menggunakan tanah dan tanah liat tanpa sebarang proses bagi menghasilkan perekat untuk melekatkan bata antara satu dengan yang lain. Oleh sebab bahan perekat ini tidak jauh beza dengan bahan pembuatan bata, struktur binaan di Sungai Batu masih utuh walaupun telah ditinggalkan lebih 2000 tahun sebelum ditemui.

Satu kajian semi kuantitatif dijalankan untuk mengenal pasti komposisi tepat sampel bata (Rajah 3) dari salah satu tapak di Sungai Batu. Bagi menjalankan analisis semi kuantitatif, sampel perlulah berada dalam keadaan berkrystal tinggi dengan peratus kristal melebihi 70 peratus. Hal ini penting bagi memastikan puncak (*peak*) yang dikenal pasti daripada difraktogram jelas semasa analisis kualitatif dan pengecaman fasa dapat dilakukan dengan tepat. Maklumat daripada analisis kualitatif amat penting untuk mendapatkan maklumat fasa bahan dan mineral yang terdapat dalam sampel sebelum proses padanan pangkalan data kristal dapat dilakukan dengan menggunakan perisian TOPAS daripada Bruker.



Rajah 3 Difraktogram sampel bahan perekat yang menunjukkan kehadiran mineral lempung kaolinit (dalam bulatan) dan kuarza.



Rajah 4 Analisis semi kuantitatif sampel bata Sungai Batu menggunakan perisian TOPAS.

Dalam analisis ini, komposisi bahan yang terdapat dalam sampel dikenal pasti terlebih dahulu menggunakan teknik analisis kualitatif. Sampel bata Sungai Batu ini mengandungi kuarza (SiO_2) dan montmorilonit ($\text{Na}_{0.3}(\text{AlMg})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$). Keputusan analisis ini kemudian dianalisis menggunakan perisian TOPAS, dengan mengambil kira peratus bahan amorfus (tidak berkristal) rendah. Difraktogram dipadankan dengan pangkalan data daripada perisian TOPAS selepas puncaknya (*peak*) diperhalus (*refine*). Hasil analisis kuantitatif mendapati sampel bata Sungai Batu mengandungi 78.31 peratus kuarza (SiO_2) dan 21.96 peratus montmorilonit ($\text{Na}_{0.3}(\text{AlMg})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$). Campuran bahan dan peratusnya ini penting kepada penyelidik untuk menentukan jenis bahan mentah dan pecahan komposisi mortar yang sesuai untuk menghasilkan bata yang hampir sama bagi tujuan konservasi dan eksperimen arkeologi.

4.0 ANALISIS BATA MENGGUNAKAN TEKNIK XRF

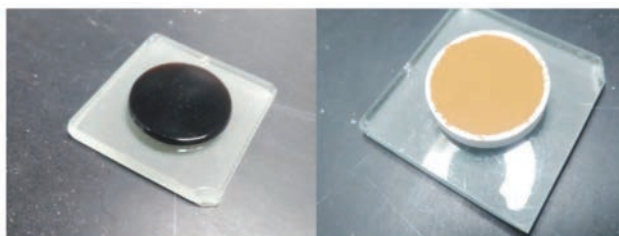
4.1 Pengenalan

Teknik XRF mempunyai persamaan dengan EDX. Kedua-dua teknik ini dapat memberikan maklumat elemen kimia yang terdapat dalam sesuatu bahan secara kualitatif dan kuantitatif. Walau bagaimanapun, teknik XRF berupaya menganalisis sampel secara lebih homogenus berbanding dengan EDX yang hanya dapat menganalisis pada permukaan sampel sahaja. Alatan yang berkuasa 4kW ini mampu untuk menganalisis sampel bermula daripada unsur berilium (Be) hingga uranium (U). Analisis XRF merupakan suatu kaedah yang tidak memusnahkan

(*non-destructive*) yang menggunakan kaedah penyerbukan sampel, iaitu sedikit sampel dalam bentuk serbuk diperlukan dalam proses ini.

4.2 Penyediaan Sampel XRF

Sampel yang akan dianalisis perlu ditukar dalam bentuk serbuk sehingga butiran bersaiz 20 μm . Sampel serbuk ini seterusnya akan disediakan dalam bentuk cakera terlakur atau palet tertekan (Foto 7). Saiz butiran sampel yang halus ini dapat memastikan proses peleburan yang sempurna semasa penghasilan cakera terlakur dan bagi penyediaan palet tertekan, saiz butiran yang halus dapat mengurangkan “kesan saiz partikel” dan “kesan kerataan permukaan”. Bagi penyediaan sampel palet tertekan, sebanyak 2 gram sampel akan ditimbang dan kemudian “diikat” menggunakan asid borik dan tekanan sebanyak 15 tan diberikan untuk menghasilkan palet yang padat. Sementara itu, cakera terlakur disediakan dengan meleburkan 0.5 gram sampel dan 5.0 gram fluks pada suhu 1200 $^{\circ}\text{C}$ selama 20 minit. Kebaikan penyediaan cakera terlakur akan dapat menghilangkan kesan matriks dan saiz partikel.



(a)

(b)

Foto 7 (a) Sampel cakera terlakur dan (b) sampel palet tertekan.

4.3 Analisis dan Interpretasi XRF

Proses analisis unsur major akan dimulakan dengan membina graf kalibrasi. Teknik graf kalibrasi ini akan menggunakan sampel piawai yang dilakurkan. Sebanyak lebih 30 bahan piawai terperaku (*certified reference material*) digunakan untuk menganalisis 10 elemen major yang wujud dalam pelbagai bahan antaranya seperti SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , MnO , MgO , CaO , Na_2O , K_2O dan P_2O_5 (Jadual 4). Kalibrasi ini membantu memberikan hasil analisis yang tepat.

Sebelum analisis lanjut dijalankan, proses pengiraan LOI (*loss on ignition*) atau “kehilangan ketika peleburan” perlu dilakukan. Proses penghasilan cakera terlakur akan membakar dan meleburkan unsur yang terdapat dalam sampel yang akan

Jadual 4 Keputusan analisis sampel dan disertakan analisis bahan piawai terperaku yang menggunakan teknik penyediaan sampel cakera terlakur.

Kompaun	Sampel 1	SARM 42 (<i>control</i>)	
		Nilai Cadangan	Nilai Cerapan
SiO ₂	46.32	74.09	74.00
TiO ₂	3.82	0.36	0.37
Fe ₂ O ₃	14.47	4.68	4.72
MnO	0.21	0.10	0.09
MgO	5.44	1.92	1.89
CaO	9.08	0.89	0.81
Na ₂ O	2.44	0.15	0.09
K ₂ O	0.93	0.45	0.45
P ₂ O ₅	0.45	0.04	0.04
Jumlah	97.00	92.71	92.66

menyebabkan jumlah keseluruhan komposisi kimia yang diperoleh tidak menghampiri 100 peratus. Kerja penentuan LOI dilakukan dengan cara membakar sampel di dalam relau pada suhu 1100°C. Berat awal sampel akan ditimbang terlebih dahulu sebelum dimasukkan ke dalam relau, dan pembakaran akan mengambil masa satu jam. Sampel akan dikeluarkan dan ditimbang semula bagi mengira perubahan atau pengurangan berat sampel yang dibakar. Proses menimbang-membakar-menimbang ini akan berulang sehingga berat sampel tidak lagi menunjukkan perubahan berat dan biasanya mengambil masa sekitar tiga jam. Pengiraan akan dibuat, dan satu nilai LOI akan diperoleh dalam bentuk peratusan. Jadual 5 menunjukkan hasil peratus elemen kimia yang wujud dan nilai LOI yang diperoleh:

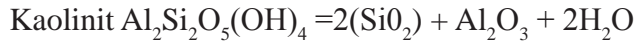
Jadual 5 Cerapan analisis bata Sungai Batu.

Unsur	% Berat
SiO ₂	79.05
TiO ₂	0.50
Al ₂ O ₃	9.93
Fe ₂ O ₃ (t)	1.49
MnO	bdl*
MgO	0.13
CaO	0.06
Na ₂ O	0.33
K ₂ O	0.32
P ₂ O ₅	0.02
LOI**	8.17
Jumlah	100.00

*bdl = Di bawah had pengesanan (*below detection limit*)

** LOI = Kehilangan semasa pembakaran (*loss on ignition*)

Formula kimia bagi kuarza dan kaolinit adalah seperti yang berikut:



Berdasarkan hasil analisis XRF, nisbah sebatian kaolinit = $2\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 : 2\text{H}_2\text{O}$, andaian H₂O (air) mewakili nilai LOI. Seterusnya, nisbah keseluruhan yang menjadi campuran di dalam bata adalah seperti yang berikut:



Berdasarkan nilai cerapan XRF, nilai SiO₂, Al₂O₃ dan H₂O dibahagikan dengan bilangan molekul masing-masing, iaitu:

$$= 79.05/3 : 9.93/1 : 8.17/2$$

$$= 26.35 : 9.93 : 4.09$$

Oleh itu, nisbah komposisi bata ialah:

$$= \text{pasir} : \text{tanah liat} : \text{air}$$

$$= \text{SiO}_2 : (\text{Al}_2\text{O}_3 + 2\text{SiO}_2) : 2\text{H}_2\text{O}$$

$$= 26.35 : (9.93 + 52.70) : 8.18$$

$$= 26.35 : 62.63 : 8.18 \text{ dipermudah kepada } 3 : 8 : 1$$

Berdasarkan cerapan komposisi kimia, sebatian bata menggunakan XRF yang dibantu dengan pencirian mineral XRD dan pengiraan, dirumuskan bahawa masyarakat Sungai Batu menggunakan nisbah tiga bahagian pasir, lapan bahagian tanah liat dan satu bahagian air untuk menghasilkan bata.

KESIMPULAN

Analisis artifak menggunakan teknik Sinar-X menjadikan kajian terhadap komposisi sampel arkeologi lebih menyeluruh. Di samping itu, data yang diperolehi juga lebih mudah diterima kerana menggunakan pendekatan saintifik dalam analisis. Penemuan analisis saintifik ini membuka lebih banyak ruang dan pelibatan multidisiplin bagi menjawab pelbagai persoalan arkeologi. Kombinasi analisis seperti ini dapat memastikan setiap kajian arkeologi mampu memberikan impak yang tinggi, selain membantu melengkapkan data arkeologi negara.

RUJUKAN

- Caspar, M. J. (2001). Thermal transformation in kaolinite clay minerals. In Carty, W. M. (Ed.). *Ceramics Engineering & Science Proceedings: Materials & Equipment and Whitewares*, 22(2), 149 – 158.
- Douglas J. Kennett. (2012). *Scientific method in archaeology, the Oxford companion to archaeology* (2nd Ed.). Oxford: Oxford University Press.
- Ellery Frahm. (2014). *Scanning Electron Microscopy (SEM): Applications in archaeology*. In *Encyclopedia of global archaeology* (pp. 6487 – 6495).
- Ellery Frahm. (2014). *Scanning Electron Microscopy (SEM): Applications in archaeology*. University of Sheffield, South Yorkshire, United Kingdom: Department of Archaeology.
- J. Froh. (2004). Archaeological ceramics studied by scanning electron microscopy. *Hyperfine Interactions*, 154, 159 – 176.
- Hamzah Mohamad. (2015). *Application of X-Ray Technique (XRD) in Geoarchaeology Study: Case Study from Archaeology Site at Sungai Batu, Kedah*.
- Hamzah Mohamad, Ahmad Fadly Jusoh, Mokhtar Saidin, & Izzati Hazlina Marudin. (2015). Application of X-Ray Technique (XRD) in Geoarchaeology Study: Case Study from Archaeology Site at Sungai Batu, Kedah. In *Proceeding in National Geoscience Conference 2015*.
- Ikilil Izzati Zakaria. (2014). Kajian arkeologi di tapak jeti SB2B dan SB2D, Kompleks Sungai Batu, Lembah Bujang (Unpublished). Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia.
- Ikilil Izzati Zakaria. (2015). Kajian manik di Lembah Bujang: Konteks teknologi dan perkembangan sosial (Unpublished Masters Thesis). Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia.
- M.S. Shackley (Ed.). (2011). *X-Ray Fluorescence Spectrometry (XRF) in Geoarchaeology*. United States: Springer Science Business Media.
- Naizatul Akma Mohd. Mokhtar. (2012). Ekskavasi tapak peleburan besi SB2A, Sungai Batu, Lembah Bujang (Unpublished Masters Thesis). Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia.
- Skoog, D. A., Holler, F. J., & Nieman, T. A. (1998). *Principles of instrumental analysis* (5th Ed.). Belmont, Ca: Thomson Brooks.
- Siti Nurul Siha. (2014). Ekskavasi Tapak SB1C, SB1D, SB1E dan SB1F di Sungai Batu, Lembah Bujang Kedah (Unpublished Masters Thesis). Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia.
- Suhana Yusof. (2015). Ekskavasi tapak monumen SB1P, SB1Q, SB1W, dan SB1X di Kompleks Sungai Batu, Lembah Bujang, Kedah (Unpublished Masters Thesis). Pusat Penyelidikan Arkeologi Global, Universiti Sains Malaysia.
- Zuliskandar Ramli, Nik Hassan Shuhaimi Nik Abd. Rahman, Adnan Jusoh, & Mohd. Zobir Hussien. (2012). Compositional analysis on ancient bricks from Candi Sungai Mas (Site32/34), Bujang Valley, Kedah. *American Journal of Applied Sciences*, 9(2), pp. 196 – 201.

Diperoleh (*Received*): 20 Februari 2018

Diterima (*Accepted*): 2 Mei 2018