



تشکیل نانوذرات نقره و ذرات زیر میکرونی اکسید سرب در لعاب زرین فام دوره ایلخانی و اثر غلظت نانوذرات نقره بر رنگ لعاب

علی محمد مصباحی نیا^۱، مجید رشیدی هویه^{۲*}، مجید شیردل هاور^۲، مهدی شفیع آفرانی^۴

۱- کارشناس ارشد، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان، ایران، صندوق پستی: ۶۷۴-۹۸۱۳۵

۲- دانشیار، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان، ایران، صندوق پستی: ۶۷۴-۹۸۱۳۵

۳- کارشناس ارشد، گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه سیستان و بلوچستان، ایران، صندوق پستی: ۶۷۴-۹۸۱۳۵

۴- دانشیار، گروه مهندسی مواد، دانشکده مهندسی شهید نیکبخت، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان، ایران، صندوق پستی: ۶۷۴-۹۸۱۳۵

تاریخ دریافت: ۹۳/۲۶ تاریخ پذیرش: ۹۳/۴/۹ در دسترس به صورت الکترونیکی از: ۱۳۹۳/۱۲/۲۰

چکیده

در این پژوهش، عوامل مؤثر در ساخت لعاب زرین فام برشمرده شده است. سپس، مطالعات انجام شده در مورد مشخصات عنصری، ساختاری و ریزساختاری زرین فام ایرانی در دوره ایلخانی ارائه گردیده است. بدین منظور از نتایج آزمون‌های XRF، XRD و SEM بهره گرفته شد. آنالیز عنصری XRF بیانگر حضور ذرات حاوی نقره در لعاب است. همچنین، الگوی پراش پرتو ایکس حضور فازهای نقره (Ag) و اکسید قلع (SnO₂) در لعاب را تأیید نمود. بررسی‌های ریزساختاری توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، تشکیل لایه نازکی با ضخامت حدود ۲۲۰ nm حاوی نانوذرات نقره با ابعاد متوسط ۴۵ nm را روی سطح لعاب نشان داد. همچنین نشان داده شد که فرآیند تشکیل زرین فام، حاصل یک تبادل یونی است. در پایان، طیف بازتابی نمونه به منظور رنگ‌سنجی آن بازسازی شد. بدین منظور از تئوری محیط مؤثر ماکسول-گرنیت استفاده گردید و اثر غلظت نانوذرات نقره بر رنگ لعاب زرین فام مورد کنکاش و ارزیابی قرار گرفت. بدین ترتیب رنگ زرین فام مذکور به خوبی به کمک شبیه‌سازی بازسازی شد.

واژه‌های کلیدی: لعاب زرین فام، نانوذرات نقره، نظریه ماکسول-گرنیت، خواص نوری.

Formation of Silver Nanoparticles and Lead Oxide Sub-Micron Particles in the Lustre Glaze of Il-Khanate Dynasty and Influence of Silver Nanoparticles Concentration on the Glaze Color

A. Mesbahinia¹, M. Rashidi-Huyeh^{2*}, M. Shirdel-Havar¹, M. Shafiee Afarani²

¹ Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Sistan and Baluchestan, P.O. Box: 98135-674, Zahedan, Iran

² Department of Material Engineering, Faculty of Engineering, University of Sistan and Baluchestan, P.O. Box: 98135-674, zahedan, Iran

Received: 26-04-2014

Accepted: 30-06-2014

Available online: 11-03-2015

Abstract

In this paper, different factors in fabrication processes of lustre glaze was, investigated. Then, the results of elemental, structure and microstructure characteristics of an Iranian lustre ceramics from Il-Khanate dynasty were presented. For this, XRD, XRF and SEM analysis were used. The XRF elemental analysis showed the presence of low particles included of silver in glaze lustre. The XRD pattern of the lustre glaze confirmed the existence of silver (Ag) and tin dioxide (SnO₂) phases. The SEM microstructure image of sample showed the formation of a thin layer of about 220 nm on the glaze surface, including of embedded silver nanoparticle with an average dimension of 45 nm. It was also shown that the glaze lustre formation process is a result of ion exchange in fabrication procedure. Finally, the reflectance spectrum of sample has been simulated to determine its color. For this the Maxwell-Garnet theory was applied and influence of silver nanoparticle concentration on color of lustre glaze was investigated. The colors of the lustre ceramics were reproduced very well by simulation. *J. Color Sci. Tech.* 8(2015), 333-338©. Institute for Color Science and Technology.

Keywords: Lustre glaze, Silver nanoparticles, Maxwell Garnet model, Optical properties.

۱- مقدمه

زرین فام گونه‌ای سرامیک زینتی است و از لایه‌ای شامل نانوذرات فلزی مس و نقره روی لعاب سفید مات با پایه سیلیسی ساخته شده است. شاخصه این گونه سرامیک برآمده از بازتاب‌های فلزی و رنگارنگ آن می‌باشد [۱-۳]. فرمول‌های فراوانی برای ساخت زرین فام از دوره‌های مختلف به دست آمده است. در تمام موارد ترکیبات نقره و مس و خاک رس و ترکیبات گوگردی موجود است [۴، ۵]. فرآیند تولید این گونه سرامیک از سه مرحله پخت تشکیل شده است. ابتدا بدنه سفال، که از جنس پایه سیلیس است، پخت می‌شود. پخت دوم شامل ایجاد لایه‌ای میکرومتری سفیدرنگ شیشه‌ای همگن از اکسید قلع و اکسید سرب می‌باشد [۶]. دو پخت اول در دمای نسبتاً بالای حدود ۸۰۰-۹۵۰ درجه سانتی‌گراد صورت می‌پذیرد [۷]. مینای زرین فام در پخت سوم حاصل می‌گردد. لایه نازک بلوری مس و نقره از طریق نقاشی به وسیله محلولی از ترکیبات نقره، مس، اکسید آهن و برخی ترکیبات گوگردی روی لعاب مات و سپس پخت و ایجاد شرایط احیا در دمای حدود ۶۰۰ درجه سانتی‌گراد، تشکیل می‌گردد [۸-۱۰]. به دلیل فقدان عوامل احیاکننده در ترکیب لعاب زرین فام، اتمسفر کوره هنگام پخت باید احیایی باشد. بنابراین، در مدت خاصی از آتش‌گیری، هوادهی به آتش، برای ایجاد یک اتمسفر احیایی و با تولید گاز مونواکسید کربن، محدود می‌شود. این گاز متغیر از هر منبع در دسترس اکسیژن می‌گیرد و ترکیبات نقره و مس، که در طی گرمایش به اکسید تبدیل شده‌اند، اکسیژن خود را از دست می‌دهند و به شکل لایه فلزی نازکی در لعاب رسوب می‌کنند [۱۱]. در اتمسفر احیایی ابتدا لعاب نرم می‌گردد و یون‌های فلزی در سطح لعاب نفوذ می‌کنند؛ یعنی تبادل یونی بین یون‌های قلیایی مانند سدیم و پتاسیم موجود در لعاب و یون‌های فلزی نقره و مس اتفاق می‌افتد و سطح لعاب را می‌پوشانند. سپس ترکیبات نقره و مس به فلزات احیا می‌گردند و نانوذرات فلزی با محدوده گسترده‌ای از رنگ‌های زیبا پدیدار می‌شود [۱۲، ۱۳، ۱۰]. از این رو، روش تولید سنتی زرین فام یکی از قدیمی‌ترین روش‌های شناخته شده برای به دست آوردن نانوترکیبات فلز بدون نیاز به خلأ فوق‌العاده بالا یا محیط تمیز، تحت شرایط نسبتاً کنترل شده است [۱۰].

بررسی‌ها روی قطعات سفال قدیمی، که ترکیب شیمیایی آنها مانند هم است، نشان می‌دهد که ترکیب شیمیایی تنها عامل مؤثر در توصیف خواص نوری زرین فام‌ها نیست [۹]. در این زمینه، عوامل مهم دیگری می‌توانند نقش کلیدی داشته باشند و تغییر این عوامل، با داشتن ترکیب شیمیایی یکسان، به خواص نوری متفاوتی می‌انجامد. در ادامه این عوامل معرفی و تأثیر غلظت نانوذرات در رنگ زرین فام دوره ایلخانی بررسی خواهد شد. دلایل به دست آمده در این پژوهش نشانه‌هایی به دست می‌دهد که به درک چگونگی کنترل و اصلاح فرآیند تولید این سرامیک‌ها کمک خواهد نمود.

۲- بخش تجربی

۱-۲- مواد

زرین فام مطالعه شده قطعه‌ای است که در شکل ۱ دیده می‌شود که زرین فام ایرانی متعلق به دوره ایلخانی است. در این قطعه دو رنگ تشخیص داده می‌شود: رنگ طلایی و رنگ سفید، که رنگ سفید مربوط به ذرات حاوی قلع و سرب و رنگ طلایی مربوط به ذرات نقره است. پیکان نشان داده شده در شکل ۱ نشان‌دهنده مکانی است که قرار است طیف بازتابی در این نقطه شبیه‌سازی گردد. در ادامه کسر حجمی نانوذرات نقره محصور در اکسید قلع با شبیه‌سازی طیف بازتابی در این نقطه تعیین خواهد شد.



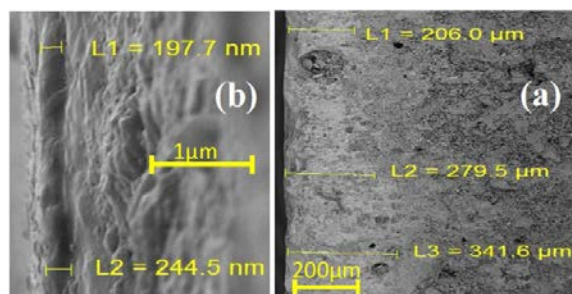
شکل ۱: تصویری از زرین فام ایرانی دوره ایلخانی که در دو زاویه مختلف از آن عکس گرفته شده است. (موزه آستانه حضرت معصومه (س) قم).

۲-۲- روش کار

جهت بررسی‌های ریزساختاری از میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل VEGA// TESCAN XMU ساخت کشور چک که به دستگاه آنالیز EDS مدل RONTEC ساخت کشور آلمان مجهز است، استفاده شد. بررسی ساختاری (فازی) با دستگاه GNR- MPD3000 ساخت کشور ایتالیا صورت گرفت. الگوی پراش پرتو ایکس با پرتو ایکس $CuK\alpha$ با جریان ۳۰ میلی‌آمپر و ولتاژ شتاب‌دهنده ۴۰ کیلوولت به دست آمد. جهت آنالیز عنصری از دستگاه فلورسانس پرتو ایکس (XRF) مدل ARL8410 ساخت کشور آمریکا استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

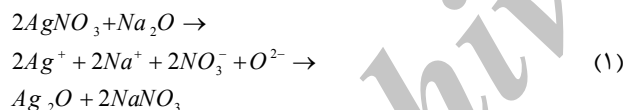
نتایج XRF از نمونه زرین فام شکل ۱ که فقط از لایه لعاب گرفته شده است؛ در جدول ۱ مشاهده می‌گردد. جهت انجام این آزمون از لایه لعاب حاصل از پخت دوم و سوم، ابتدا لایه لعاب از بدنه برش داده شد. سپس لایه لعاب، پولیش داده می‌شود تا در حد امکان از بدنه جدا گردد. این آنالیز نشان‌دهنده وجود ۰,۰۱۷٪ ذرات حاوی نقره و ۰,۷۰٪ ذرات حاوی قلع و ۱,۹٪ ذرات حاوی سرب در لعاب است.



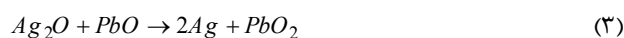
شکل ۳: (a) تصویر گرفته شده با الکترون های پس پراکنده که نفوذ لعاب ناشی از پخت دوم را در حدود $300 \mu\text{m}$ درون بدنه سیلیسی نشان می دهد. (b) تصویر گرفته شده با الکترون های ثانویه که ضخامت لایه زرین فام ناشی از پخت سوم را در حدود 220 nm نشان می دهد.

۳-۱- فرآیند تشکیل و نانساختار زرین فام

براساس تصویر SEM شکل ۴ از سطح لعاب نمونه شکل ۱، که با الکترون های پس پراکنده گرفته شده است، ذرات نقره با آنالیز EDS در مکان C و D شناسایی شدند. طبق جدول ۲، در مکان C که در آن ذرات نقره بیشتری نسبت به مکان D هست، درصد کمتری عنصر سرب و عناصر قلیایی، مانند سدیم و پتاسیم و منیزیم، وجود دارد. این آنالیز برای مکان های دیگر سطح لعاب انجام شد و تکرارپذیری آن مورد تأیید قرار گرفت. بنابراین، فرآیند تشکیل زرین فام، حاصل یک مبادله یونی است [۱۰]. مبادله یون، در آغاز، با جای گذاری یون های قلیایی تک ظرفیتی موجود در لایه سطحی با ترکیبات نقره مانند نیترات نقره طبق واکنش ۱ انجام می شود.



اکسید سرب چهار ظرفیتی (PbO_2) در شرایط احیایی طبق واکنش ۲ به اکسید سرب دو ظرفیتی (PbO) تبدیل می شود. در مرحله دوم تبادل یونی، یون های نقره به دست آمده از واکنش ۱ به راحتی در حضور یون سرب دو ظرفیتی (Pb^{2+}) با توجه به واکنش ۳ به فلزهایشان احیا می شوند و در شبکه لعاب نفوذ می کنند [۱۱]. طبق جدول ۲ نیز دیده می شود، در مکان C که ذرات نقره بیشتری نسبت به مکان D هست، درصد کمتری عنصر اکسیژن وجود دارد.

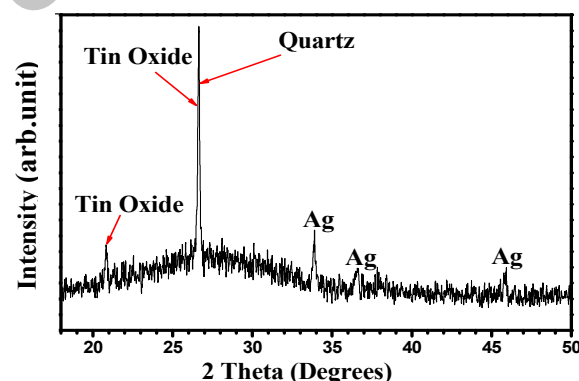


تصاویر SEM گرفته شده با الکترون های پس پراکنده در شکل ۵a ذرات زیر میکرون اکسید سرب را با قطر متوسط 215 nm نشان می دهد. همچنین، در شکل ۵b، نانوذرات نقره با قطر متوسط 45 nm

جدول ۱: نتایج XRF از زرین فام ارائه شده در شکل ۱.

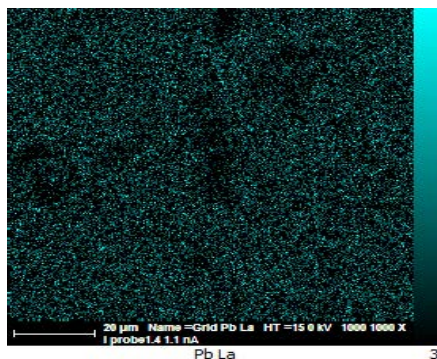
ترکیب	درصد وزنی	ترکیب	درصد وزنی
Na ₂ O	۳,۶	TiO ₂	۰,۱۷
K ₂ O	۲,۶	SnO ₂	۰,۷۰
CuO	۰,۰۸۱	SiO ₂	۷۰,۷
MgO	۱,۶	Fe ₂ O ₃	۲,۶
CaO	۴,۲	PbO	۱,۹
Ag ₂ O	۰,۰۱۷	La&Lu	<۱
Al ₂ O ₃	۵,۱	L.O.I	۶,۸۸

در شکل ۲ الگوی پراش پرتو ایکس از سطح لعاب زرین فام نمونه شکل ۱ مشاهده می شود که سه فاز کوارتز، اکسید قلع و نقره براساس کارت های JCPDS به ترتیب به شماره های ۱۰۴۵-۴۶، ۱۱۷۵-۸۸ و ۱۱۶۴-۰۱ شناسایی شدند. با توجه به اینکه قسمت عمده لعاب مربوط به سیلیس است اصل فاز لعاب بی شکل است و در جایی که سیلیس به صورت بلوری تشکیل شود مانند فاز بلوری کوارتز در شکل ۲، قوی ترین پیک دیده می شود. اکسید قلع (SnO_2) نیز با توجه به ظرفیت بالا و شعاع اتمی کم در لعاب به صورت جوانه زای عمل کرده و به صورت بلوری در لعاب ظاهر می شود؛ که این امر نیز باعث کدر شدن لعاب می شود.

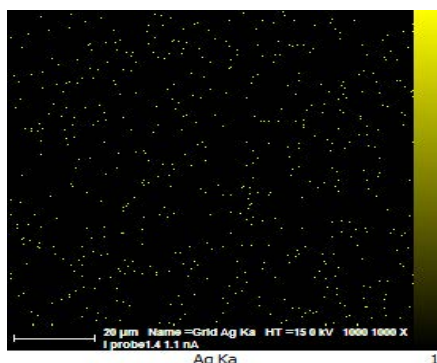


شکل ۲: الگوی پراش پرتو ایکس از سطح لعاب زرین فام قطعه شکل ۱.

تصاویر SEM از سطح مقطع نمونه زرین فام شکل ۳ نشان دهنده نفوذ لعاب به درون بدنه سیلیسی است. در شکل ۳a تصویری با الکترون های پس پراکنده (BSE) گرفته شد که نفوذ لعاب ناشی از پخت دوم در حدود $300 \mu\text{m}$ درون بدنه سیلیسی تعیین گردید. تمایز بین زیر لایه سیلیسی و لعاب در شکل ۳a کاملاً مشهود است. همچنین، در شکل ۳b تصویر گرفته شده با الکترون های ثانویه (SE) نشان داد که ضخامت لایه زرین فام ناشی از پخت سوم در حدود 220 nm است. تمایز بین زیر لایه و لایه نازک لعاب زرین فام در شکل ۳b نیز کاملاً مشهود است.



شکل ۷: نقشه عنصری اتم سرب.



شکل ۸: نقشه عنصری اتم نقره.

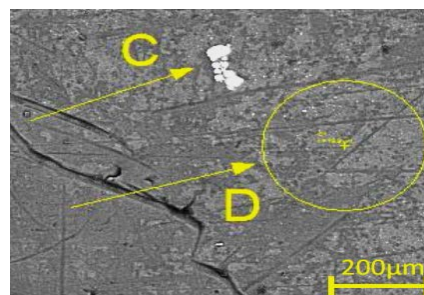
۳-۲- خواص نوری لایه نازک لعاب زرین فام

در بخش‌های قبلی بررسی‌های عنصری، ساختاری و ریزساختاری روی نمونه زرین فام شکل ۱ انجام شد. تصاویر SEM نشان‌دهنده وجود ریزساختارهای اکسید قلع در ابعاد زیر میکرون و نانوذرات نقره در این گونه سرامیک‌ها است. آنالیز عنصری XRF حضور مقدار ناچیز نقره حدود ۰.۰۱۶٪ در نمونه شکل ۱ را تأیید نمود که همین مقدار ناچیز عامل مهمی در تشکیل رنگ طلایی در سطح لعاب است. اگرچه ناخالصی‌های دیگری در اثر وجود عناصر دیگر در سطح لعاب وجود دارد، اما عامل اصلی رنگ طلایی حضور ذرات نقره در سطح لعاب می‌باشد. با استفاده از تصاویر SEM، ساختار لایه‌ای زرین فام مشخص شد. در این قسمت، مدلی ابتدایی برای توصیف خواص نوری ارائه خواهد شد. در این مدل، لایه‌ای شامل نانوذرات نقره محصور در اکسید قلع روی یک لایه نیمه‌نامتناهی از جنس سیلیس در نظر گرفته می‌شود. طرح‌واره‌ای از این مدل در شکل ۹ مشاهده می‌شود.

به‌منظور شبیه‌سازی ضریب بازتاب R نمونه زرین فام، از تداخل چندگانه لایه استفاده شد. دامنه بازتاب r_c ، که با توجه به رابطه $R = |r_c|^2$ به ضریب بازتاب مربوط می‌شود، با رابطه ۱ داده می‌شود [۱۴].

$$r_c = \frac{r_0 + r_1 e^{2i\beta}}{1 + r_0 r_1 e^{2i\beta}} \quad \text{with} \quad \beta = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 d \quad (1)$$

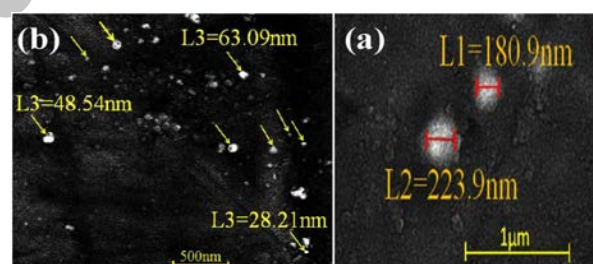
با الکترون‌های ثانویه نمایان شدند. چنان‌که در شکل ۶ دیده می‌شود، این نانوذرات کروی‌اند. همچنین، در شکل ۷ و ۸ نقشه اتم‌های سرب و نقره در سطح لعاب زرین فام دوره ایلخانی، توزیع این عناصر را روی سطح نشان می‌دهد.



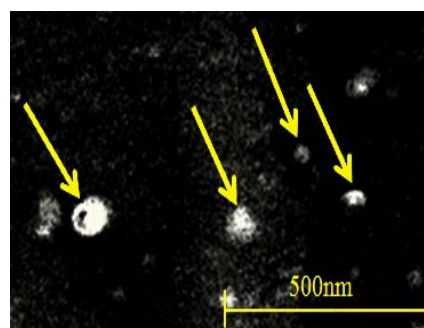
شکل ۴: تصویر SEM از سطح لعاب نمونه شکل ۱ که با الکترون‌های پس‌پراکنده گرفته شده است.

جدول ۲: آنالیز عنصری (EDS) از مکان‌های C و D.

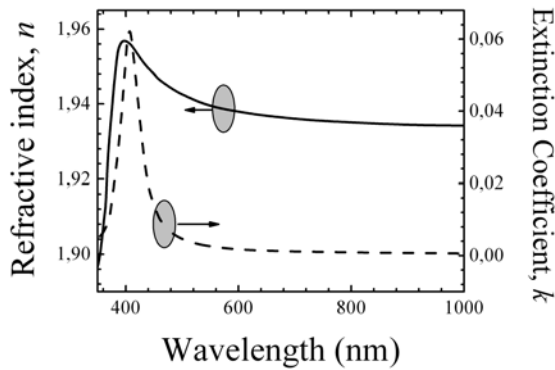
عنصر	مکان C (درصد وزنی)	مکان D (درصد وزنی)
Ag	۶.۶۳	۶.۳۸
Pb	۱۴.۷۹	۱۵.۸۰
Na	۰.۸۴	۰.۹۷
Mg	۰.۸۱	۰.۸۶
K	.	۱.۴۲
O	۳۳.۱۴	۳۶.۲۷



شکل ۵: (a) عکس SEM گرفته‌شده با الکترون‌های پس‌پراکنده ذرات زیر میکرون اکسید سرب را با قطر متوسط ۲۱۵ nm نشان می‌دهد، (b) عکس SEM گرفته‌شده با الکترون‌های ثانویه که در آن نانوذرات نقره با قطر متوسط ۴۵ nm نمایان شدند.

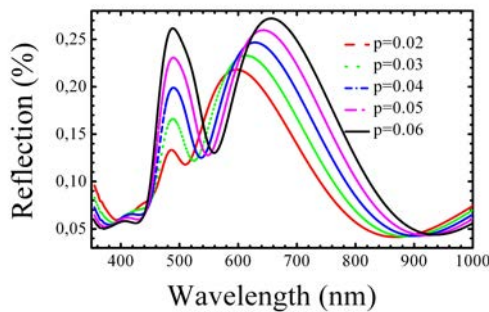


شکل ۶: نانوذرات کروی نقره.



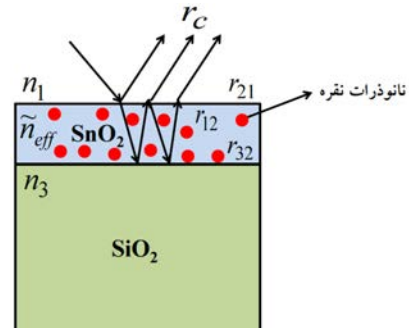
شکل ۱۰: تغییرات ضریب شکست و خاموشی اکسید قلع (SnO₂) بر حسب طول موج (مستخرج از مرجع [۱۷]).

طبق رابطه ۳، با تغییر کسر حجمی نانوذرات نقره محصور در اکسید قلع ضریب بازتاب کل نیز تغییر خواهد کرد. حال طیف بازتاب به ازای کسر حجمی‌های متفاوت به دست می‌آید. نتایج در شکل ۱۱ هنگامی که نور به طور عمود به سطح برخورد می‌کند، نشان داده شده است. دو کمینه در شکل ۱۱ مشاهده می‌شود که یکی حدود ۹۰۰ نانومتر به دلیل تداخل و دیگری حدود ۵۵۰ نانومتر به دلیل تشدید پلاسمون سطحی است. با افزایش کسر حجمی نانوذرات نقره دو کمینه به سمت طول موج‌های بلند جابه‌جا می‌شوند و همچنین بازتاب‌پذیری نیز افزایش می‌یابد.



شکل ۱۱: طیف ضریب بازتاب شبیه‌سازی شده لعاب زرین فام در غلظت‌های مختلف. ضخامت لایه ۲۵۰ نانومتر و زاویه تابش نور، عمودی در نظر گرفته شده است.

چنان‌که در شکل ۱۲ دیده می‌شود، هنگامی که طیف‌ها به صورت نمودار رنگ‌سنجی برگردانده می‌شوند، به ازای $p = 0.04$ ، رنگ به دست آمده با شبیه‌سازی طیف بازتابی با رنگ زرین فام دوره ایلخانی در ناحیه مشخص شده در شکل ۱ مطابق است. بنابراین، ترکیب



شکل ۹: طرح‌واره مدل اولیه برای زرین فام. در این مدل، لایه‌ای شامل نانوذرات نقره محصور در اکسید قلع روی یک لایه نیمه‌نامتناهی از جنس سیلیس در نظر گرفته می‌شود.

که β اختلاف راه بین دو بازتاب متوالی نور و d ضخامت لایه نازک است که با توجه به الگوی SEM شکل 3b، در شبیه‌سازی ۲۵۰ nm لحاظ شده است. r_0 و r_1 در این رابطه به ترتیب دامنه‌های بازتاب از سطح مشترک هوا-لایه و لایه-زیرلایه می‌باشند که در تابش عمود به صورت رابطه ۲ ارائه می‌شوند [۱۵].

$$r_0 = \frac{n_1 - \tilde{n}_{eff}}{n_1 + \tilde{n}_{eff}} \quad (2)$$

$$r_1 = \frac{\tilde{n}_{eff} - n_3}{\tilde{n}_{eff} + n_3}$$

n_1 ضریب شکست هوا و n_3 ضریب شکست زیرلایه سیلیسی است. \tilde{n}_{eff} ضریب شکست لایه زرین فام است. این ضریب شکست ممکن است بر اساس یک تئوری محیط مؤثر بیان شود. از آنجا که کسر حجمی نانوذرات نقره بسیار ناچیز است؛ می‌توان از مدل ماکسول-گرنر به منظور بازسازی خواص نوری لایه زرین فام بهره جست. با استفاده از این مدل، لایه ناهمگن شامل ذرات به صورت لایه‌ای همگن با همان خواص نوری در نظر گرفته خواهد شد. این خواص نوری توسط یک تابع دی‌الکتریک مؤثر توصیف می‌شوند. در این مدل تابع دی‌الکتریک مؤثر بر حسب $\tilde{\epsilon}_d$ ثابت دی‌الکتریک محیط پیرامون نانوذرات فلزی، $\tilde{\epsilon}_m$ ثابت دی‌الکتریک نانوذرات فلزی و p کسر حجمی فلز در لایه، به صورت رابطه ۳ داده می‌شود [۱۶].

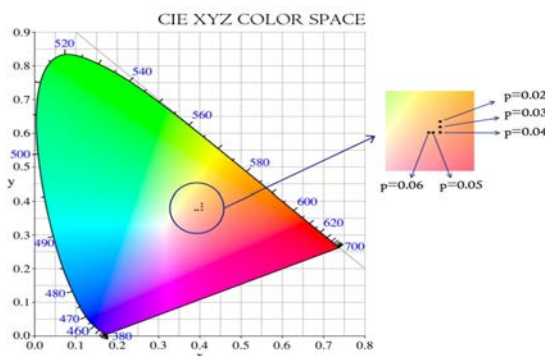
$$\tilde{\epsilon}_{eff} = \tilde{\epsilon}_d \frac{\tilde{\epsilon}_m (1 + 2p) + 2\tilde{\epsilon}_d (1 - p)}{\tilde{\epsilon}_m (1 - p) + \tilde{\epsilon}_d (2 + p)} \quad (3)$$

تابع دی‌الکتریک اکسید قلع، $\tilde{\epsilon}_d$ ، با توجه به مقادیر ضریب شکست n و ضریب خاموشی K مستخرج از مرجع [۱۷] و با توجه به رابطه $\tilde{\epsilon}_d = (n + iK)^2$ به دست آمد. در شکل ۱۰ تغییرات ضریب شکست و خاموشی اکسید قلع بر حسب طول موج مشاهده می‌شود.

۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش، نخست فرآیند ساخت زرین‌فام بررسی شد. سپس با استفاده از آنالیزهای XRD، XRF و SEM روی نمونه زرین‌فام دوره ایلخانی، وجود لایه نازکی از نانوذرات نقره با ضخامت در حدود ۲۲۰ نانومتر و با قطر متوسط ۴۵ نانومتر تأیید شد. همچنین، نتیجه گرفته شد که فرآیند تشکیل لعاب زرین‌فام، حاصل یک مبادله یونی است. بدین‌صورت که ترکیبات نقره جای‌گزين عناصر قلیایی موجود در سطح لعاب به‌صورت یونی می‌شود و در نهایت، با ایجاد محیط احیایی، نانوذرات فلزی نقره روی لایه سطحی سرامیک تشکیل می‌گردد. همچنین، با شبیه‌سازی طیف بازتابی از نمونه زرین‌فام دوره ایلخانی، بر مبنای رنگ، غلظت نانوذرات نقره محصور در اکسید قلع در ناحیه مشخص شده اندازه‌گیری گردید. در پایان، نتیجه‌گیری گردید که ترکیب شیمیایی تنها اثر مرتبط با توضیح خواص نوری زرین‌فام‌ها نیست. دیگر پارامترها، مانند شعاع ذرات، کسر حجمی نانوذرات فلزی و ثابت دی‌الکتریک محیط پیرامون نانوذرات و زیرلایه در توضیح این تأثیرات نقش کلیدی دارند.

شیمیایی تنها اثر مرتبط با توضیح خواص نوری زرین‌فام‌ها نیست و با تغییر کسر حجمی نانوذرات نقره خواص نوری تغییر خواهد کرد. طبق رابطه ۱ و ۲ با تغییر غلظت و یا ثابت دی‌الکتریک محیط اطراف نانوذرات و ثابت دی‌الکتریک زیرلایه، محدوده وسیعی از رنگ‌ها در لعاب زرین‌فام نیز به دست می‌آید.



شکل ۱۲: نمودار رنگ‌سنجی تأثیر کسر حجمی نانوذرات نقره در محیط اکسید قلع. به ازای $p=0.04$ ، رنگ به‌دست‌آمده با شبیه‌سازی طیف بازتابی با رنگ زرین‌فام دوره ایلخانی در ناحیه مشخص شده در شکل ۱ مطابق است.

۵- مراجع

1. T. Pradell, J. Molera, A. D. Smith, A. Climent-font, M. S. Tite, Technology of islamic lustre. *J. Cult. Herit.* 9(2008), e123-e128.
2. D. Agha- Aligol, P. Oliyai, M. Mohsenian, M. Lamchi-Rachti, F. Shokouhi, Provenance study of ancient Iranian lustre pottery using PIXE multivariate statistical analysis. *J. Cult. Herit.* 10(2009), 487-492.
3. V. Reillon, S. Berthier, C. Andraud, New perspectives for the understanding of optical properties of middle-age nano cermits: the lusters. *Physica B.* 394(2007), 272-274.
4. Caiger-Smith, Lustre Pottery: Technique, tradition and innovation in Islam and the western world. Faber & Faber. London. 1985.
5. J. Molera, M. Mes quida, J. Perez-Arantequi, T. Pradell, M. Vendrell, Lustre recipes from a medieval workshop from paterna. *Archaeometry.* 43(2001), 455-460
6. P. Fredrickx, J. Verbeeck, D. Schryvers, D. Hélarly, E. Darque-Ceretti, Nanoparticles in lustre reconstructions. *MRS Proceedings*, 852(2004), 169-175.
7. A. P. delrio, S. Roehrs, M. Acoururier, J. Castaing, A. Bouquillon, Medina Al-Zahra lustre ceramics: 10th century local Nanotechnology or important from middle east. *AJSE.* 35(2010), 157-168.
8. I. Borgia, B. Brunetti, I. Mariani, A. Sgamellotti, F. Cariati, P. Fermo, M. Mellini, C. Vitti, G. Padeletti, Heterogeneous distribution of metal nanocrystals in glazes of historical pottery. *Appl. Surf. Sci.* 185(2002), 206-216.
9. V. Reillon, S. Berthier, C. Andraud, Optical properties of lustred ceramics: complete modelling of the actual structure. *Appl Phys A.* 100(2010), 901-910.
10. J. Roqué, J. Molera, P. Sciau, E. Pantos, M. Vendrell-Saz, Copper and silver nanocrystals in lustre lead glazes: Development and optical properties. *J. Eur. Ceram. Soc.* 26(2006), 3813-3824.
11. P. Colomban, Rediscovered secrets of the Abbassid glaze. *Revue Céramique & Verre.* 139(2004), 13-20.
12. J. Roqué, T. Pradell, J. Molera, M. Vendrell-saz, Evidence of nucleation and growth of metal Cu and Ag nanoparticles in lustre: AFM surface characterization. *J. Non-Cryst. Solids* 351(2005), 568-575.
13. V. Reillon, S. Berthier, C. Andraud, New perspective for the understanding of the optical properties of middle -age nano cermits: the lusters. *Physica B.* 394(2007), 242-247
14. D. M. Born, E. Wolf, Principles of optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light 7th Ed., Cambridge University Press, Uk(1991), 391-401.
15. D. M. Born, E. Wolf, Principles of optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light 7th Ed., Cambridge University Press, Uk(1991), 40-43.
16. J. C. Maxwell Garnett, Colors in metal glasses and in metallic films. The Royal Society. 203(1904), 384-420.
17. V. Rottkay, K. Rubin, M. Optical indices of pyrolytic Tin-Oxide glass. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 426(1996), 449-455.