

Research Paper

Charactrization and Elemental Analysis of Mina'i Pottery from Alamut Castle Using Scanning Proton Microscope

Davoud Agha-Aligol^{1*}, Melika Yazdani², Mahmoud Moradi¹,
Mohammad Lamei Rashti¹, Seyed Mohammad Amin Emami³

1. Nuclear Science and Technology Research Institute, Physics and Accelerators Research School, Nuclear and Experimental Physics Group, Van de Graaff Laboratory, Tehran, Iran.

2. Art University of Isfahan, Faculty of Handicrafts, Department of Islamic Art, Isfahan, Iran.

3. Art University of Isfahan, Faculty of Conservation and Restoration of Historical Objects, Isfahan, Iran.

Abstract

The measurement of the elemental composition of historical pottery is of particular importance. By examining the elemental composition of the body and glaze of historical pottery, one can obtain valuable information regarding the determination of raw materials and their diversity, as well as techniques employed in the manufacturing of these historical objects. In this research, 12 samples of the mina'i pottery from Alamut Castle, dating back to the 11th to 13th centuries AD, have been studied using ion beam analysis techniques. In this study, the elemental composition of the body, various pigments used in the paintings, and also the baseglaze have been measured using the micro-PIXE. Additionally, the thickness of the gold layer applied on the surfaces of some of these potteries has also been studied using the micro-RBS method. The purpose of conducting this research is to provide appropriate answers to the following questions: What raw materials have been used in the manufacturing of the body and glaze of these objects? What sources have supplied the raw materials used as fluxes? Also, what coloring agents and elements have been used to create different colors in the baseglaze and decorative paintings? Measuring the thickness of the gold layer used in these decorations is also one of the goals of this research work. Based on the results obtained from the elemental composition of the body and glaze of these potteries, it can be concluded that different sources of silica and fluxes have been used in the manufacturing of Alamut Castle mina'i potteries. Also, the coloring agents in producing red, white, blue, and turquoise pigments have been identified as Fe, Sn, Co and Cu elements, respectively. Moreover, the micro-RBS shows that the thickness of the gold layer used in decorations varies from 300 to 800 nanometers in the samples.

Keywords: Mina'i; Alamut Castle; Elemental composition; Micro-PIXE; Gilding layer.



**Knowledge of
Conservation and
Restoration**

Vol. 7(1) No.19
May 2024

<https://kcr.richt.ir>

Pages: 55 to 74

Corresponding Author

Davoud Agha-Aligol

Nuclear Science and
Technology Research Institute,
Physics and Accelerators
Research School, Nuclear and
Experimental Physics Group,
Van de Graaff Laboratory,
Tehran, Iran.

Email

daghaaligol@aeoi.org.ir.

مشخصه‌یابی و آنالیز عنصری سفال‌های مینایی دز الموت با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون

داود آقاطلی گل^{۱*}، ملیکا یزدانی^۲، محمود مرادی^۱، محمد لامعی رشتی^۱، سید محمد امین امامی^۳

۱. پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، گروه فیزیک هسته‌ای و تجربی، آزمایشگاه واندوگراف، تهران، ایران.

۲. دانشگاه هنر اصفهان، دانشکده صنایع دستی، گروه هنر اسلامی، اصفهان، ایران.

۳. دانشگاه هنر اصفهان، دانشکده حفاظت و مرمت، گروه مرمت اشیا تاریخی و فرهنگی، اصفهان، ایران.

چکیده



فصلنامه دانش حفاظت و مرمت

سال هفتم، شماره ۱

شماره پایاپی ۱۹، بهار ۱۴۰۳

<https://kcr.richt.ir>

صفحات: ۵۵ تا ۷۴

نویسنده مسئول

داود آقاطلی گل

پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، گروه فیزیک هسته‌ای و تجربی، آزمایشگاه واندوگراف، تهران، ایران.

رایانمه

daghalaigol@aeoi.org.ir.

شناسایی و اندازه‌گیری عناصر سازنده ترکیبات سفالینه‌های تاریخی از اهمیت خاصی برخوردار است. با بررسی ترکیبات عنصری بدن و لعب زمینه سفالینه‌های تاریخی می‌توان اطلاعات بسیار ارزشمندی در زمینه تعیین مواد اولیه مورد استفاده در ساخت و تنوع آن‌ها و همچنین فن‌شناسی این اشیاء تاریخی به دست آورد. در این پژوهش ۱۲ نمونه از سفال‌های مینایی و لا جور دینه دز الموت که قدمت آن‌ها به سده ۷-۶ هجری قمری بر می‌گردد، با استفاده از روش‌های آنالیز با باریکه‌ی یونی مطالعه شده است. در این مطالعه ترکیبات عنصری بدن، رنگدانه‌های مختلف استفاده شده در نقاشی‌ها و همچنین لعب زمینه با استفاده از روش میکروپیکسی اندازه‌گیری شده‌اند. همچنین ضخامت لایه زراندود به کار رفته بر روی سطوح تعدادی از این سفال‌ها نیز با استفاده از روش Micro-RBS مطالعه شده‌اند. مهم‌ترین اهداف پژوهش پیش رو، دستیابی به عناصر تشکیل‌دهنده و مواد اولیه استفاده شده در ساخت بدن، لعب زمینه و نوع رنگدانه‌ها در ترسیم نقش‌های سفال‌های مینایی و لا جور دینه است. اندازه‌گیری ضخامت لایه زراندود به کار رفته در این تزیینات نیز یکی دیگر از اهداف پژوهش است. براساس نتایج بدست آمده از بررسی ترکیبات عنصری بدن و لعب زمینه این سفال‌ها می‌توان دریافت که در ساخت نمونه‌های دز الموت از منابع مختلف سیلیس و گذازارها استفاده شده است. همچنین با بهره‌گیری از نقشه توزیع عنصری بدست آمده از روش میکروپیکسی، عامل عنصری ایجاد و تولید رنگدانه‌های قرمز، سفید، لا جور دی و فیروزه‌ای به ترتیب؛ آهن، قلع، کبالت و مس مشخص شده‌اند. ضخامت لایه زراندود استفاده شده در تزیینات نیز از ۳۰۰ تا ۸۰۰ نانومتر در نمونه‌ها متغیر است.

واژگان کلیدی: سفال مینایی، لا جور دینه، دز الموت، ترکیبات عنصری، میکروپیکسی، لایه زراندود.

مقدمه

زندگانی و به تدریج سفال مینایی از نظر جنس، کیفیت پخت، طراحی نقوش و غیره رو به افول نهاد- و گونه‌ای دیگر از رو لعابی بانام لا جوردینه و با تزیینات ساده‌تر جایگزین آن شد (Wilson, 1992, pp.144).

همچنین می‌توان گفت که فرآیند گذرا مینایی به لا جوردینه، آزادی اجتماعی هنرمند برای بهره‌مندی از خلاقیت هنرمندان، تنوع مخاطبان و تولیدات، پیشرفت و همگام شدن با جامعه برای پاسخ‌گویی به سلیقه و تقاضا در بازار بوده است (Koss et al., 2009).

در پژوهش پیش‌رو ۱۲ نمونه سفال مینایی و لا جوردینه، شامل ۸ نمونه سفال مینایی با شناسه A1, A2, A3, A11, A4, A5, A8, A10 و ۴ نمونه سفال لا جوردینه با شناسه A7, A6, A9 و A12 بررسی شده‌اند. آنالیز و شناسایی ترکیب عنصری نمونه‌های باستانی و تاریخی با انجام آنالیزهای دستگاهی مختلفی مانند: Micro-PIXE, XRF و SEM-EDX پذیراست (Henderson, 2000, pp. 14-21). در این بین، آنالیز عنصری سفالینه‌های تاریخی با استفاده از میکروپیکسی به دلیل برخی از مزایای این روش مانند دقت اندازه‌گیری بالا و شناسایی همزمان تمام عناصر بالاتر از سدیم با دقت ppm، یکی از بهترین و پرکاربردترین روش‌ها در شناسایی ترکیبات عنصری این نمونه‌ها است (Nastasi et al., 2014, pp.157-160).

نمونه‌های موردنظر، در این پژوهش که از کاوش‌های علمی فصل هفتم در در الموت و زیر نظر دکتر حمیده چوبک به دست آمده، با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون مطالعه شده است. توجه به نتایج آنالیزهای عنصری و ویژگی‌های منطقه‌ی الموت می‌تواند، نتایج منحصر به فردی را در مورد تولید این آثار در اختیار قرار دهد. الموت نام یکی از بخش‌های کوهستانی شمال قزوین است که از سمت شمال به کوهستان مازندران، از جنوب به طالقان، از شرق به گردن معرفه شده است (Sotudeh, 1955).

سفال مینایی جزء گروهی از سرامیک‌های لعاب‌دار دوره اسلامی است که برای تزیینات آن از ترسیم نقوش بر روی لعاب زمینه سفید یا فیروزه‌ای استفاده شده است. این نقوش شامل تصاویر متنوعی از گیاهان، جانوران و انسان‌ها است. این نوع از سفال‌ها مدت کوتاهی در دوران میانی اسلامی (نیمه دوم قرن دوازدهم میلادی) به طور گسترده در ایران و با اقبال کمتری در کشورهای دیگری مانند سوریه و ترکیه رواج داشته است (Mason et al., 2001). درباره مراکز ساخت سفال مینایی و همچنین دوره‌ی زمانی این نوع از سفال‌ها نظرات مختلفی توسط پژوهشگران اظهار شده است، ولی به طور قطع خاستگاه اصلی آن در ایران و کاشان به ثبت رسیده است (Aga-Oglu, 1946; Lane, 1958, pp.41-42).

اخیراً در مقاله گاهنگاری سفال‌های مینایی براساس نمونه‌های کتیبه‌دار، به طور مفصل توسط یزدانی و همکاران مورد بررسی قرار گرفته است که براساس نتایج به دست آمده می‌توان محدوده زمانی و نیز مکان‌های ساخت این نوع سفال‌ها را بهتر تخمین زد (Yazdani et al., 2017). از نظر پژوهشگران، در ایران، مکان‌های مختلفی به عنوان محل تولید سفال مینایی به شمار می‌روند که در بین آن‌ها سه شهر کاشان، ری و ساوه بیشتر مورد تأیید پژوهشگران است (Kambakhshfar, 2000, pp.449-470).

سفال‌های مینایی کتیبه‌دار، شکوه نقوش پرکار در این سفال تقریباً شصت سال ادامه یافت و پس از آن، سفال‌های مینایی با نقوش ساده‌تر و لعاب زمینه‌ی آبی و لا جوردی شکل‌گرفت که این گونه سفال لا جوردینه نامیده شده و به عنوان تداومی از شیوه مینایی معرفی شده است (Yazdani et al., 2015).

کاس و همکارانش با بررسی چند سفال لا جوردینه بر این نظر هستند که گسترده‌ی رنگی لعاب زمینه این آثار را آبی تیره تا لا جوردی تشکیل می‌دهد که دارای یک فرایند پخت دو مرحله‌ای تکمیلی مشابه مراحل پخت مینایی هستند (Koss et al., 2009).

ویلسن در مورد شکل‌گیری سفال لا جوردینه در ایران می‌نویسد: پس از آنکه محصولات مینایی کاشان شهرت زیاد یافت، هنرمندان دست به تولید ابوه

هدف از بررسی و مطالعه‌ی این نمونه‌ها، اندازه‌گیری ترکیبات عنصری بدنه، لعاب زمینه و رنگدانه‌های مختلف استفاده شده در تزیینات سطحی این نمونه‌ها است. در اغلب این نمونه‌ها علاوه‌بر نقاشی‌ها و رنگ‌های مختلف، از لایه‌های نازک طلائیز برای تزیینات سطحی استفاده شده است که اندازه‌گیری ضخامت لایه‌های طلا بر روی سطوح این نمونه‌ها نیز مورد بحث و بررسی قرار گرفته است.

مشخصات نمونه‌های مورد بررسی

در این پژوهش با توجه به ریختشناسی، شکل ظاهری و تزیینات سطحی سفالینه‌ها، ۱۲ نمونه در دسترس مینایی و لا جوردینه با توجه به حداکثر تنوع، جهت انجام مطالعات آزمایشگاهی انتخاب و مورد بررسی قرار گرفته است. در اغلب این نمونه‌ها علاوه‌بر نقاشی‌های مختلفی که بر سطح نمونه‌ها ترسیم شده، از لایه‌ی زراندود و برجسته نیز برای تزیین استفاده شده است. تصاویر نمونه‌های مطالعاتی این پژوهش در شکل ۱ مشاهده می‌شود که نواحی مختلف مورد آنالیز با استفاده از مربع قرمز رنگ نشان داده شده است.

دز الموت در دیلم در حدود ۳۵ کلیومتری شمال شرقی قزوین در منطقه روبار قرار دارد. این دز بر فراز صخره‌ای بلند و دره‌ای حاصلخیز در دامنه‌ی جنوبی کوه‌های البرز مرکزی ساخته شده است. دسترسی به قلعه ظاهراً تنها از طریق مسیری باریک، شیبدار و پر پیچ و خم در جبهه شمالی صخره الموت امکان‌پذیر بوده است (Daftary, 2007, pp.317-318). این دز با شماره ۷۲۵۲ در فهرست آثار ملی ایران به ثبت رسیده است. از دید چوبک، از کاوش‌های فصل هفتم در این محوطه باستان‌شناسی علاوه بر سازه‌ها و آرایه‌های معماری، سفال‌های بی‌شماری همانند زرین فام، مینایی، لا جوردی، قلم‌مشکی و نقاشی زیر لعابی به دست آمده که متعلق به سده پنجم تا سده هفتم هجری قمری است که تاکنون مورد پژوهش قرار نگرفته است. به گفته ایشان، جدیدترین یافته‌های زمینه سرامیک مینایی از کاوش‌های اخیر در دز الموت به دست آمده است. از دیدگاه وی تاکنون شواهدی که نشان‌دهنده تولید آثار در این دز باشد، یافت نشده است و بدلیل موقعیت سیاسی دز الموت، اختلال وارداتی بودن این آثار وجود دارد (Choubak, 2009).



شکل ۱. تصاویر نمونه‌های مورد بررسی و نواحی مختلف آنالیز که با استفاده از مربع در تصاویر نشان داده شده است.

Figure 1. Images of the samples under investigation and the various analysis areas, which are indicated using squares in the sample images.

می‌شوند. یون‌های پراکنده شده در جهت عقب توسط آشکارساز حساس به ذره که به آن آشکارساز سد سطحی گفته می‌شود، آشکار شده و از طیف به دست آمده اطلاعات مفیدی در مورد جنبه‌های مختلف نمونه هدف به دست می‌آید (Beck et al., 2011).

در این پژوهش باریکه‌ی پروتون با انرژی 2MeV و با شدتی در حدود 50pA که توسط ستاده‌نده واندوگراف 3MV آزمایشگاه واندوگراف پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای تولید می‌شود، استفاده شده است. قطر باریکه‌ی پروتون با استفاده از دستگاه میکروبایریکه‌ی یونی ساخته شده توسط شرکت آکسفورد در این آزمایش در حدود $10\text{ }\mu\text{m}$ میکرومتر تنظیم می‌شود. برای آشکارسازی اشعه X از آشکارساز (Si Li) که در زاویه 135° درجه نسبت به پرتوهای پروتون فرودی قرار گرفته و دارای قدرت تفکیک 150eV است، استفاده شده است. همچنین از آشکارساز سد سطحی سیلیکون که در زاویه 160° درجه نسبت به امتداد باریکه‌ی فرودی قرار می‌گیرد برای آشکارسازی پروتون‌هایی که به عقب پراکنده می‌شود استفاده شده است. برای محاسبه میزان غلظت و درصد وزنی عناصر تشکیل‌دهنده بدن و رنگدانه‌های مختلف استفاده شده در نقاشی‌ها و همچنین لعبه‌های به کار رفته روی بدن سفال‌ها طیف‌های به دست آمده، وارد کد GUPIXWIN می‌شود. این کد با پردازش غیرخطی طیف به دست آمده و با استفاده از پارامترهای فیزیکی معلوم مانند شرایط آزمایش، نوع آشکارساز، اتفاق آزمایش، سطح مقطع یونبراسیون عناصر مختلف و با انجام اصلاحات لازم، میزان غلظت وزنی عناصر تشکیل‌دهنده نمونه مورد بررسی را محاسبه می‌کند (Fernandes et al., 2018).

یافته‌ها و بحث

نتایج آنالیز عنصری بدن

نتایج آنالیز عنصری بدن سفال‌های آنالیز شده از دز الموت با استفاده از روش میکروبیکسی بر حسب درصد وزنی و به صورت اکسید در جدول ۱ ارائه شده است. عناصری که در همه نمونه‌های آنالیز شده اندازه‌گیری شده است، شامل: اکسید سدیم (Na_2O ، Al_2O_3)، اکسید منیزیم (MgO)، اکسید آلمونیوم

روش پژوهش

با استفاده از باریکه‌ی میکرونی از ذرات پرانرژی می‌توان توانایی‌ها و قابلیت‌های آنالیز با استفاده از باریکه‌ی یونی متداول را به میزان زیادی افزایش داد. در این حالت با استفاده از باریکه‌ی میکرونی می‌توان سطح نمونه مورد بررسی را جاروب (اسکن) کرد و تصویری دو بعدی از توزیع عنصری موجود در نمونه را با استفاده از روش‌های مختلف آنالیز با باریکه‌ی یونی به دست آورد (Nastasi et al., 2014, pp.157-160). در این پژوهش از روش‌های micro- و micro-PIXE RBS برای مطالعه سفالینه‌های مینایی و لاجوردینه دز الموت استفاده شده است. آنالیز عنصری به روش میکروبیکسی یکی از روش‌های متداول در آنالیز عنصری مواد است. میکروبیکسی یا "گسیل پرتو X" در اثر برانگیختگی با باریکه‌ی میکرونی پروتون روش توانمندی برای آنالیز بس عنصری (از سدیم تا اورانیم) نمونه‌های مختلف است. در روش میکروبیکسی، نمونه مورد بررسی تحت تابش باریکه‌ی میکرونی پروتون قرار می‌گیرد. در اثر برخورد پروتون با اتم هدف، پرتو X مشخصه‌ای گسیل می‌شود که انرژی این پرتو X، نوع عنصر موجود در نمونه و تعداد پرتوهای X با انرژی معین، غلظت عنصر در نمونه را مشخص می‌کند (Johansson & Campbell, 1989, pp.101-104).

همچنین با استفاده از باریکه‌ی میکرونی می‌توان برای لایه‌های نازکی که باریکه‌ی یونی قادر به عبور از آن لایه هستند، اطلاعات مفیدی در مورد خامات لایه‌های نازک و همچنین توزیع عمقی عناصر تشکیل‌دهنده این لایه‌ها به دست آورد که به این روش، micro-RBS یا "طیف‌گاری با استفاده از پراکنده‌ی ذرات برگشتی" گفته می‌شود. این روش آنالیز، بر پایه آشکارسازی ذرات یونی که به طور کشسان به وسیله هسته‌های اتمی موجود در نمونه مورد آنالیز پراکنده می‌شوند استوار است (Jeynes & Colaux, 2016). در این روش باریکه‌ی ای از یون‌ها، با انرژی مشخص به نمونه مورد آنالیز برخورد کرده و در عمق نمونه حرکت می‌کند و این یون‌ها فرودی در اثر برخورد با اتم‌های نمونه هدف، انرژی خود را به تدریج در طول مسیرشان از دست داده و پراکنده

می شده است (Mason, 2004, pp. 5-17). برای بررسی تفاوت های موجود در ترکیبات تشکیل دهنده و منابع سیلیس استفاده شده در سفالینه های آنالیز شده از محوطه ای تاریخی دز الموت، تغییرات درصد وزنی عناصر اصلی تشکیل دهنده بدنی این سفالینه ها بررسی شده است. مبنا و فرض اصلی این ریافت به این صورت است که در نمونه های تولید شده از یک نوع ماده اولیه سیلیس، درصد وزنی عناصری که وجود آن ها از سیلیس ناشی می شود، دارای ترکیبات عنصری تقریباً مشابه خواهد بود (Pincé et al., 2019). بر این اساس، در شکل ۲-الف تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آلمینیم و در شکل ۲-ب تغییرات درصد وزنی اکسید آلمینیم بر حسب اکسید کلسیم رسم شده است.

با توجه به شکل ۲-الف مشخص است که میزان درصد وزنی سیلیس در تمام نمونه ها به جز نمونه A2 بین ۸۶-۸۰ درصد و میزان اکسید آلمینیم در این نمونه ها بین ۷-۳ درصد تغییر می کند. در نمونه A2 نیز میزان سیلیس ۵۲ درصد و میزان اکسید آلمینیم حدود ۹ درصد است که در این نمونه از

اکسید سیلیسیم (SiO_2)، اکسید پتاسیم (K_2O)، اکسید کلسیم (CaO)، اکسید تیتانیم (TiO_2)، اکسید منگنز (MnO) و اکسید آهن (Fe_2O_3) است. همچنین اکسید فسفر (P_2O_5)، اکسید گوگرد (SO_3 ، کلر (Cl))، اکسید مس (Cu_2O)، اکسید استرانسیم (SrO) و اکسید سرب (PbO) نیز در برخی از نمونه ها اندازه گیری شده است. بر پایه نتایج ترکیبات عنصری بدنی، مشخص است که در نمونه های آنالیز شده به غیراز ۳ نمونه، بقیه نمونه ها دارای ترکیبات عنصری تقریباً یکسانی هستند و بدنی این نمونه ها در گروه ترکیبات غیر اهکی قرار می گیرند. برای بررسی تنوع و نوع مواد اولیه استفاده شده در بدنی اصلی سفالینه ها براساس عناصر شاخص و تعیین کننده، از نمودارهای پراکندگی دو بعدی براساس نتایج ترکیبات عنصری ارائه شده در جدول ۳ استفاده می شود.

همان طور که در جدول ۱ مشاهده می شود، اکسید سیلیسیم (سیلیس) عمده ترین ماده ای تشکیل دهنده بدنی سفالهای مینایی و لا جوردینه دز الموت است. برای تهییه ماده ای اولیه سیلیس در سفالینه های تاریخی معمولاً از خاک رس و یا خمیر سنگ استفاده

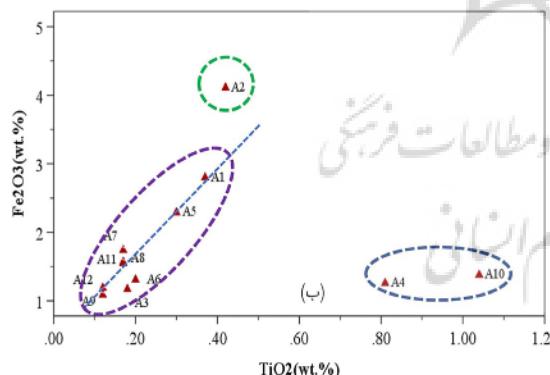
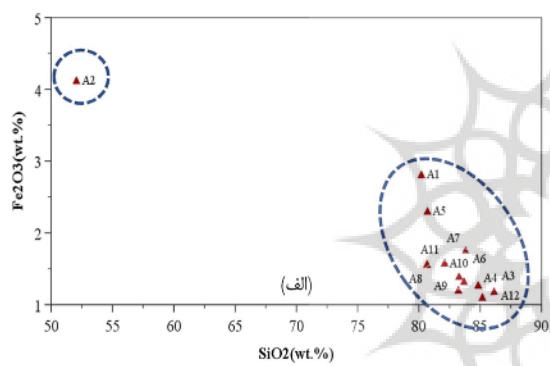
جدول ۱. ترکیبات عنصری بدنی سفالینه های مینایی و لا جوردینه دز الموت به صورت اکسید و بر حسب درصد وزنی (%) با استفاده از روش میکروپیکسی.

Table 1. Elemental compositions of the body of Mina'i and Lajvardina pottery from Alamut Castle in the form of oxides and in terms of weight percentage (wt%) using the micro-PIXE method.

PbO	SrO	Cu ₂ O	Fe ₂ O ₃	MnO	TiO ₂	CaO	K ₂ O	Cl	SO ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	Sample
-	-	0.13	2.8	0.09	0.37	4.88	0.74	-	80.2	5.36	3.28	2.15	2.15	A1
-	0.06	0.09	4.11	0.06	0.42	11.32	1.39	0.16	18.4	52.06	8.63	2.5	0.76	A2
-	-	0.09	1.17	0.03	0.18	2.64	1.05	-	86.13	3.6	3.1	2.01	2.01	A3
0.79	0.17	0.02	1.26	0.02	0.81	2.01	0.95	0.23	-	84.83	5.4	0.72	2.79	A4
-	0.16	0.08	2.29	0.05	0.3	4.49	0.69	0.11	-	80.69	5.17	3.4	2.51	A5
-	-	0.02	1.31	0.03	0.2	2.92	0.94	0.07	-	83.67	5.34	2.91	2.59	A6
-	-	0.03	1.74	0.05	0.17	3.05	1.11	-	-	83.8	4.91	2.95	2.19	A7
-	0.11	0.07	1.55	0.03	0.17	3.81	0.75	0.11	0.72	80.66	5.93	3.34	2.75	A8
-	-	0.03	1.19	0.03	0.12	3.2	1.39	0.14	-	83.21	5.14	3.15	2.4	A9
0.31	-	-	1.38	0.02	1.04	1.63	1.47	0.33	-	83.27	6.7	0.9	2.95	A10
-	-	-	1.57	0.02	0.17	3.2	1.37	-	0.27	82.1	5.33	3.67	2.3	A11
-	-	0.04	1.09	0.02	0.12	2.26	0.75	0.09	-	85.17	4.56	3.42	2.48	A12

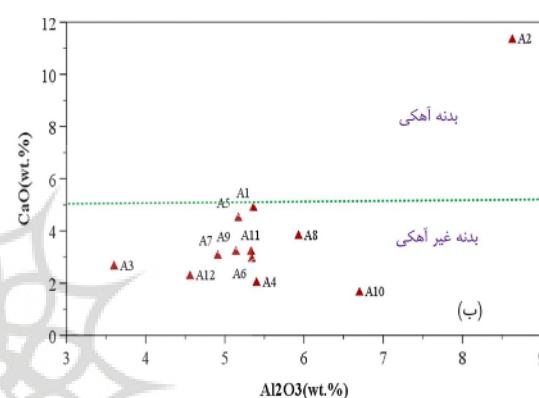
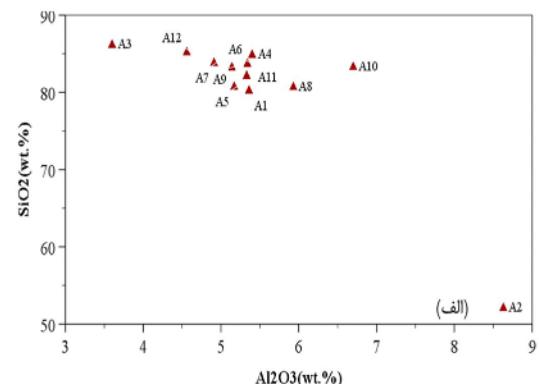
کلسیم در بدن نمونه A2 نشان می‌دهد که در ساخت بدن این نمونه از منابع آهکی استفاده شده است (Bonis et al., 2017).

در شکل ۳-الف نیز مشخص است که براساس تغییرات اکسید آهن بر حسب اکسید سیلیسیم ترکیبات بدن نمونه‌های آنالیز شده یکسان هستند. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود به جز نمونه A2 در غالب نمونه‌های آنالیز شده میزان اکسید آهن کمتر از ۱/۵ درصد و در برخی از نمونه‌ها بین ۱-۳-۱ درصد متغیر است. اما در نمونه A2 اکسید آهن بیشتر از ۴ درصد وزنی است. از طرف دیگر همان‌گونه که در شکل ۳-ب براساس تغییرات درصد وزنی اکسید تیتانیم بر حسب



شکل ۳. (الف) تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آهن، (ب) تغییرات درصد وزنی اکسید آلومینیم بر حسب اکسید کلسیم، در بدن اصلی نمونه‌های آنالیز شده از دز الموت.

Figure 3. a) Variations in the weight percentage of silicon oxide based on iron oxide, b) Variations in the weight percentage of titanium oxide based on iron oxide, in the main body of the analyzed samples from Alamut Castle.



شکل ۲. (الف) تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آلومینیم، (ب) تغییرات درصد وزنی اکسید آلومینیم بر حسب اکسید کلسیم، در بدن اصلی نمونه‌های آنالیز شده از دز الموت.

Figure 2. a) Variations in the weight percentage of silicon oxide based on aluminum oxide, b) variations in the weight percentage of aluminum oxide based on calcium oxide, in the main body of the analyzed samples from Alamut Castle.

منابع خاک رس با درصد وزنی بالایی از آلومینا استفاده شده است (Tite, Wolf, & Mason, 2011). همچنین در شکل ۲-ب مشخص است که در تمام نمونه‌های آنالیز شده به جز نمونه A2 میزان اکسید کلسیم بین ۲-۵ درصد متغیر است. اما در نمونه A2 میزان اکسید کلسیم حدود ۱۲ درصد وزنی است. بنابراین، مشاهده می‌شود که درصد وزنی اکسید کلسیم در اکثر این نمونه‌ها بسیار پایین و کمتر از ۵ درصد وزنی است که این نشان‌دهنده این است که از منابع سیلیسیم غیر آهکی در ساخت بدن این نمونه‌ها استفاده شده است. اما مقدار بالای اکسید (Holakooei et al., 2013)

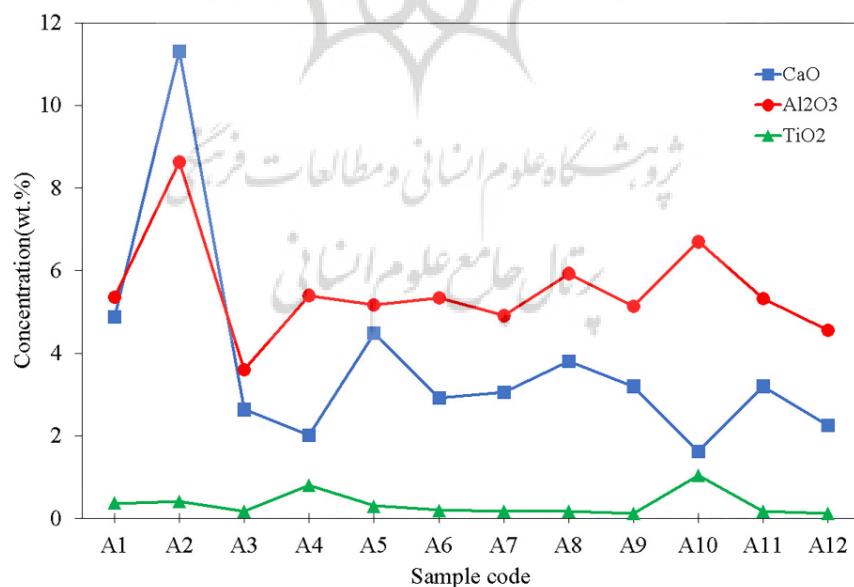
شكل مشاهده می شود برای نمونه های A4 ، A2 و A10 در این نمودارها انحراف از خط راست مشاهده می شود که نشان دهنده متفاوت بودن این ۳ نمونه از بقیه نمونه ها است.

نتایج آنالیز عنصری لعب زمینه و رول عابی ها

همان طور که در تصاویر نمونه های آنالیز شده مشاهده می شود، در سفال های مینایی، نقوش مختلفی بر روی لعب های سفید (کرم)، فیروزه ای یا لا جور دی در سفال لا جور دینه ترسیم شده است و همچنین برخی از نواحی نقوش با رنگ دانه های قرمز یا مشکی قلم گیری شده اند. علاوه بر این، در برخی از این نمونه ها نیز از لایه هی طلا به عنوان تزیین سطحی استفاده شده است. نتایج آنالیز عنصری لعب زمینه هی این نمونه ها که با استفاده از میکرو پیکسی به دست آمده است، در جدول ۲ ارائه شده است. همان طور که مشخص است، از نظر ماده گداز آور استفاده شده در لعب زمینه در این نمونه ها، اکسید سدیم و اکسید سرب با درصد وزنی متفاوتی مشاهده می شود. بر پایه ای اندازه گیری ترکیبات عنصری لعب ها احتماً

اکسید آهن مشاهده می شود، به نظر می رسد که دو نمونه A4 و A10 نیز با بقیه نمونه های آنالیز شده متفاوت باشند و این دو نمونه بر اساس تغییرات این دو اکسید در گروه جداگانه ای قرار گرفته اند. همچنین همان طور که در شکل ۳ ب نشان داده شده است. بر اساس تغییرات درصد وزنی اکسید آهن بر حسب اکسید تیتانیم ۹ نمونه از مجموع نمونه های آنالیز شده، تقریباً حول یک خط قرار گرفته اند و همبستگی بسیار قوی بین این دو اکسید در ترکیبات بدنه مشاهده می شود که این همبستگی قوی نشان می دهد که ماده اولیه سیلیس استفاده شده در این نمونه ها یکسان هستند و با احتمال بسیار زیاد این ۹ نمونه با استفاده از ماده اولیه یکسانی تولید شده اند (Hamdan et al., 2014).

در شکل ۴، تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم، اکسید آلومینیم و اکسید تیتانیم بدنه نمونه های آنالیز شده از دز الموت در یک نمودار خطی نشان داده شده است. در این نمودار، در صورتی که درصد وزنی عنصر در نمونه های آنالیز شده یکسان باشند، تغییرات هر عنصر برای تمام نمونه های آنالیز شده باید به صورت یک خط تقریباً افقی باشد، اما همان طور که در این



شکل ۴. تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم، اکسید آلومینیم و اکسید تیتانیم بر حسب درصد وزنی در بدنه نمونه های آنالیز شده از دز الموت.

Figure 4. Variations in the weight percentage of calcium oxide, aluminum oxide, and titanium oxide based on weight percentage in the body of the analyzed samples from Alamut Castle.

بدین صورت که کبالت در فاز مذاب لعاب حل شده و رنگ‌دهی قابل توجهی حتی در غلظت‌های بسیار کم را دارد است. علاوه بر خاصیت رنگ‌دهی بسیار بالای اکسید کبالت، مونواکسید کبالت (CoO) نیز به عنوان یک گدازآور قوی در لعاب مطرح است که شدت آن با گدازآورهای قلیایی برابری می‌کند. اکسید کبالت در همه پایه‌های لعاب‌های قلیایی-سربی، قلیایی و سربی لاجوردی و آبی تیره و درخشان را به وجود می‌آورد (Hamer and Hamer, 2003, pp.70). در شکل ۵ طیف‌های میکروپیکسی به دست آمده از آنالیز دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که در شکل ۱ تصویر اپتیکی آن مشاهده می‌شود، ارائه شده است. در این شکل، کلیه عناصر موجود در این نمونه برای دو ناحیه مختلف، نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود اختلاف زیادی بین عناصر موجود در این دو ناحیه وجود دارد. به عنوان نمونه در ناحیه ۱ که با مربع قرمز مشخص شده، قله‌های مربوط به عنصر طلا دیده می‌شود در حالی که در ناحیه ۲ که با مربع آبی مشخص شده، قله‌های مربوط به عنصر قلع وجود دارد. برای اینکه به‌طور کامل و دقیق علت اختلاف موجود در این دو طیف به دست آمده را بررسی کنیم، نقشه توزیع عنصری عناصر موجود در دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که با استفاده از میکروپیکسی به دست آمده، را بررسی خواهیم کرد. نتایج نقشه توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در این دو ناحیه در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود تفاوت توزیع عنصری بین این دو ناحیه به رنگ‌دانه‌های مختلف استفاده شده در این دو ناحیه برمی‌گردد. نقشه توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۱ نشان می‌دهد که در ناحیه زراندو، به‌طور عمده همان‌طور که انتظار می‌رفت عنصر طلا وجود دارد، زیرا با مقایسه تصویر اپتیکی ناحیه ۱ و توزیع نقشه عنصر طلا مشاهده می‌شود که تنها در ناحیه‌ای که در تصویر اپتیکی، لایه‌ی طلا وجود دارد. در تصویر نقشه توزیع عنصری مربوط به طلا، عنصر طلا قابل توجه است. همچنین رنگ‌دانه قرمز که برای دورگیری ناحیه زراندو استفاده شده است، به‌طور

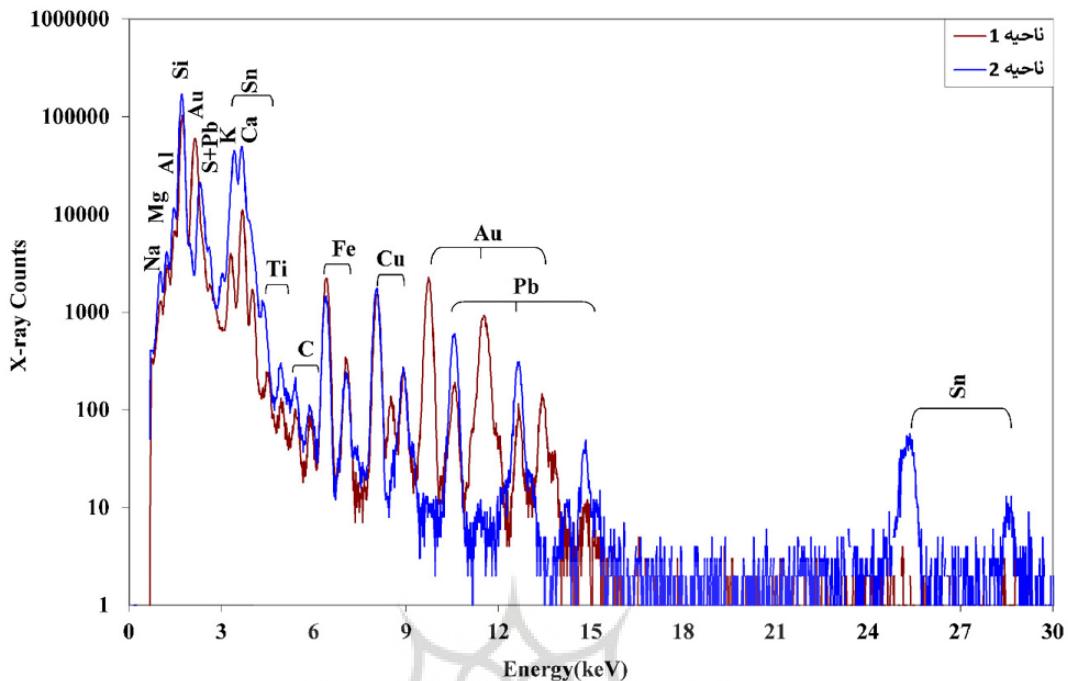
غالب لعاب‌های زمینه در این سفالینه‌ها از نوع لعاب‌های قلیایی هستند، اما میزان اکسید سدیم موجود در این نمونه‌ها، به‌دلیل تدفین طولانی مدت در زمین از سطح نمونه‌ها تهی شده است و میزان اکسید سدیم اندازه‌گیری شده در لعاب‌ها کمتر از مقدار واقعی است (Weber et al., 2002). همچنین تعدادی از این نمونه‌ها از نوع لعاب‌های سرب و قلع هستند که این نمونه‌ها شامل نمونه‌های A10 و A12 است (Mason et al., 2001). در دو نمونه از این گروه، اکسید سرب بین ۲۸-۱۰ درصد متغیر است. همچنین در این نمونه‌ها اکسید قلع بین ۲۲-۵ درصد وزنی تغییر می‌کند. علاوه بر این همان‌طور که در جدول ۲ مشاهده می‌شود سیلیس عنصر عمده تشکیل‌دهنده این لعاب‌ها است که برای تهیه آن از شن و ماسه کف رودخانه‌ها و یا سنگ چخماق (رگه‌های کوارتز خالص) استفاده می‌شده است. همچنین ترکیباتی مانند اکسید کلسیم نیز ممکن است از طریق مواد گدازآور مانند اکسید سدیم و یا از طریق موادی مانند پودر استخوان یا سنگ آهک وارد لعاب‌ها شده باشد. اکسید آلومینیم نیز ممکن است از طریق ناخالصی موجود در سیلیس وارد ترکیبات لعاب شده باشد. عناصر دیگری نیز در ترکیبات لعاب وجود دارند که برخی از آن‌ها مانند اکسید فلزات واسطه مانند اکسید مس، اکسید آهن و اکسید کبالت به‌طور آگاهانه و بهمنظور ایجاد رنگ دلخواه و به عنوان رنگ‌دانه به لعاب زمینه اضافه شده‌اند (Mason, 2004, pp130-136). همچنین ترکیبات SO₃, P₂O₅ و Cl از جمله ترکیبات شیمیایی هستند که موجودیت این عناصر به‌دلیل ترکیب شیمیایی محیط خاکی نیز می‌تواند باشد. سولفات‌ها و کلریدها بیشتر به صورت ترکیبات با منشأ شوره و یا محیط‌های مرطوب ایجاد می‌شوند که علت این امر به‌دلیل تدفین طولانی مدت نمونه‌ها در درون بستر خاکی است. در لعاب زمینه دو نمونه لاجوردینه A6 و A7 نیز حدود ۱ درصد اکسید کبالت مشاهده می‌شود و در خطوط رولعلایی لاجوردی در نمونه A10 نیز ۲/۷۹ درصد اکسید کبالت مشاهده می‌شود که عامل ایجاد رنگ لاجوردی بوده است. به‌طور کلی در صنعت لعب‌سازی، کاربرد ۰/۵ تا ۵ درصد مشتقات کبالت، رنگ آبی تا لاجوردی تیره را به وجود می‌آورد.

جدول ۲. ترکیبات عنصری لعاب زمینه سفالینه‌های مینایی و لاچوردینه در الموم به صورت اکسید و بر حسب درصد وزنی (%) با استفاده از روش میکروپیکسی (nd= not detected, f= front, b= back).

Table 2. Elemental compositions of the glaze of Mina'i and Lajvardina pottery from Alamut Castle in the form of oxides and in terms of weight percentage (wt%) using the micro-PIXE method (nd= not detected, f= front, b= back).

K ₂ O	Cl	SO ₃	P ₂ O ₅	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	Color glaze	Sample
2.06	1.47	0.56	nd	74.64	5.85	1.57	nd	Green	A1f
1.71	0.31	nd	nd	76.59	7.69	0.94	nd	Turquoise	A2f
2.89	0.30	nd	nd	71.80	4.02	1.43	1.34	Green	A3f
1.85	0.18	nd	nd	77.70	5.92	0.47	0.40	Green	A3b
1.61	0.26	5.55	nd	43.26	5.28	0.76	nd	Cream	A4f
1.98	0.45	0.28	nd	47.73	3.41	nd	0.32	Blue	A4b
2.40	0.37	0.32	nd	73.14	5.76	1.02	1.74	Green	A5f
2.92	0.19	nd	nd	74.47	1.40	1.13	2.11	Azure	A6f
2.37	0.65	3.80	nd	71.04	4.82	1.20	1.42	Green	A6b
2.00	0.70	4.73	nd	61.63	6.54	1.81	nd	Azure	A7f
2.36	0.51	0.66	nd	73.48	4.27	1.78	3.81	Green	A8f
2.17	0.33	nd	nd	54.12	1.41	1.28	2.93	Cream	A10f
2.34	1.32	nd	nd	42.71	1.79	1.24	2.43	Azure (overglaze)	A10b
2.52	0.36	nd	nd	60.05	1.17	1.50	3.26	Cream	A10b
1.79	0.15	0.49	nd	82.18	6.69	0.33	nd	Cream	A11f
3.72	0.54	0.89	nd	59.44	5.02	0.89	0.94	Blue	A12f

PbO	SnO ₂	CoO	ZnO	Cu ₂ O	Fe ₂ O ₃	MnO	TiO ₂	CaO	Color glaze	Sample
0.66	nd	nd	nd	2.07	2.41	nd	0.16	8.58	Green	A1f
0.65	nd	nd	nd	2.43	1.75	0.05	0.11	7.80	Turquoise	A2f
4.33	nd	nd	nd	4.62	1.57	0.09	0.13	7.51	Green	A3f
2.63	nd	nd	nd	1.77	2.74	0.05	0.23	6.10	Green	A3b
10.48	22.48	nd	nd	nd	1.57	nd	0.19	8.56	Cream	A4f
28.41	10.77	0.22	nd	0.19	2.00	0.03	0.12	4.09	Blue	A4b
2.42	nd	nd	0.14	3.20	1.41	nd	0.10	7.34	Green	A5f
4.04	nd	1.04	nd	1.44	3.31	0.09	nd	7.65	Azure	A6f
0.36	nd	nd	nd	1.06	2.35	0.07	0.19	10.68	Green	A6b
1.10	nd	1.33	nd	0.28	9.56	1.00	0.39	10.85	Azure	A7f
1.74	nd	nd	nd	3.04	1.40	0.05	0.11	6.70	Green	A8f
24.26	8.09	nd	nd	0.10	0.92	0.05	0.12	4.11	Cream	A10f
22.87	10.40	2.79	0.05	0.43	2.08	0.07	0.17	5.89	Azure (overglaze)	A10b
19.89	5.68	nd	nd	0.13	0.79	0.04	0.12	4.47	Cream	A10b
nd	nd	nd	nd	nd	2.53	nd	0.17	5.68	Cream	A11f
2.12	1.23	nd	0.16	7.79	3.42	0.12	0.20	8.69	Blue	A12f



شکل ۵. طیف‌های میکروپیکسی به دست آمده از آنالیز دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که در شکل ۱ نشان داده شده است. ناحیه ۱ خارج از لایه زرآندود و ناحیه ۲ شامل لایه زرآندود است.

Figure 5. Micro-PIXE spectra obtained from the analysis of two different areas in sample A3, as shown in Figure 1. Area 1 is outside the gilded layer, and Area 2 includes the gilded layer.

سفید استفاده شده در تزیین این نمونه به طور عمدۀ از عنصر قلع تشکیل شده است. بنابراین می‌توان نوع ماده مورد استفاده در ایجاد رنگدانه سفید را اکسید قلع (SnO_2) تعیین کرد (Eastaugh et al., 2004). پژوهشگران عقیده دارند که رایج‌ترین ماده اپک‌کننده لعب در دوره اسلامی اکسید قلع است (Mason and Tite, 1997; Tite et al., 2015). اکسید قلع علاوه بر اینکه، سبب تولید لعب اپک سفیدرنگ است، خاصیت الاستیکی لعب را نیز افزایش داده و مانع تولید ترک‌های مویین در سطح لعب می‌شود. همچنین، مقاومت شیمیایی لعب را نیز افزایش می‌دهد. اکسید قلع دمای ذوب و گرانروی لعب را افزایش داده و سبب تولید رنگ فیروزه‌ای در لعب‌های دارای اکسید مس می‌شود (Mason and Tite, 1997).

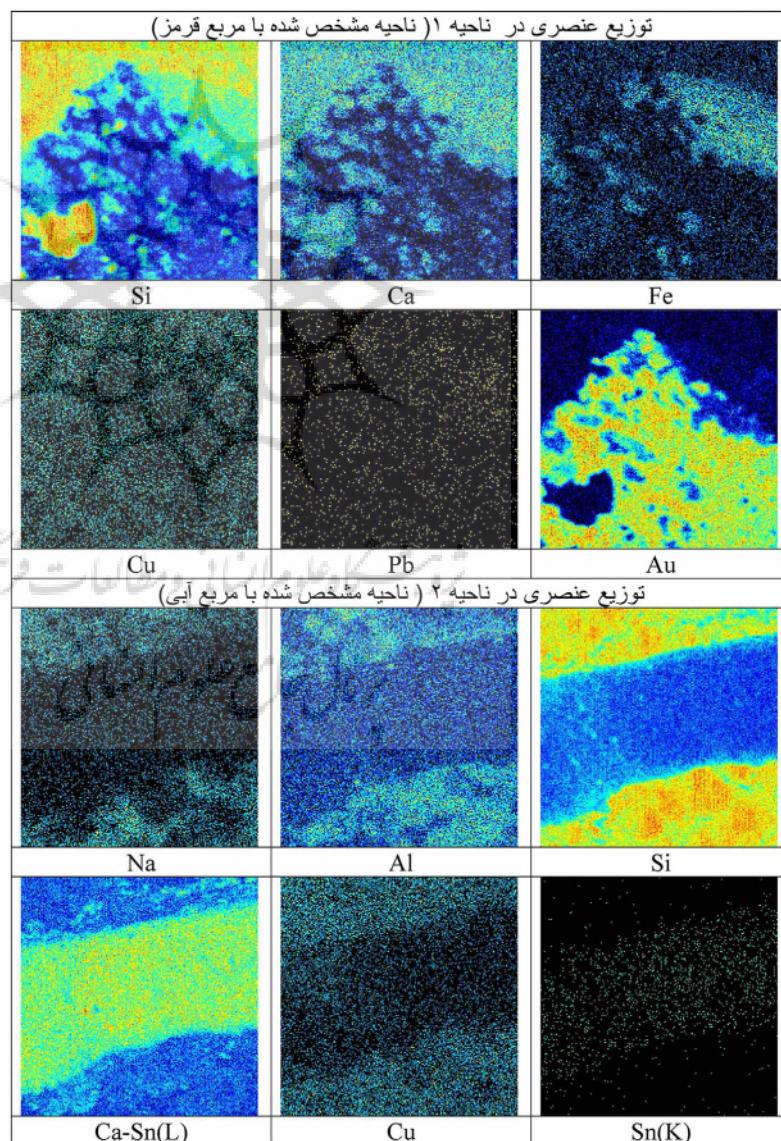
قدرت اپک‌کننده اکسید قلع را می‌توان به سبب میزان حلالیت پایین اکسید قلع در لعب دانست که باعث ایجاد سطح نامنظم و ناهموار در لعب می‌شود.

عمده از عنصر آهن تشکیل شده که با توجه به رنگدانه‌های مورد استفاده در ایجاد رنگ قرمز، منبع این رنگدانه می‌تواند، اخراً (Fe_2O_3) باشد (Eastaugh et al., 2004; Holakooei et al., 2019; Innocenti et al., 2024). همچنین در ناحیه ۱ مشاهده می‌شود که لعب فیروزه‌ای استفاده شده در روی بدنۀ سفال از عنصر مس تشکیل شده و عنصر مس عامل ایجاد رنگ فیروزه‌ای است (Coccato, Moens, & Vandenabeele, 2017). علاوه بر این در تمام ناحیه ۱ عنصر سرب که به طور یکنواخت توزیع شده است دیده می‌شود که در اصل از این عنصر به عنوان گدازآور استفاده شده است.

دیگر عناصر مشاهده شده در این ناحیه که عناصری مانند سیلیسیم، کلسیم و پتاسیم هستند نیز مربوط به لعب زمینه هستند. همچنین توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۲ نشان می‌دهد که در رنگدانه

پاتسیم مشاهده می شود که مربوط به لعب زمینه هستند. همچنین در توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۲ مشاهده می شود در ناحیه‌ای که عنصر قلع وجود دارد، عناصر سدیم، الومینیم، سیلیسیم و مس کمتر شده است. این کاهش بهدلیل جذب Xهای مشخصه توسط عنصر قلع است. در توزیع عنصری نشان داده شده در شکل ۶، هر چه فراوانی تعداد Xهای مشخصه بیشتر باشد تصویر ایجاد شده دارای رنگ روشن تری است و هر چه فراوانی تعداد Xهای مشخصه کمتر باشد، تصویر ایجاد شده تیره تر است.

ذرات ریز اکسید قلع درون لعب، با میکروسکوپ نیز قابل مشاهده است. علاوه بر اکسید قلع، عوامل دیگری نیز سبب ایجاد سطح اپک می شوند که عبارتند از: حبابهای هوای موجود در لعب، کوارتز و اجزاء فلدسپار نامحلول در لعب، و سیلیکاتهای نامحلول مانند سیلیکات منیزیم- کلسیم^۳ و سیلیکات کلسیم^۴ که در طول حرارت ایجاد می شوند. این موارد، در مقایسه با اکسید قلع از قدرت اپک کنندگی پایین تری برخوردار هستند (Mason and Tite, 1997; Iñáñez et al., ۲۰۱۰). در این ناحیه نیز عنصری دیگری مانند سدیم، الومینیم، سیلیسیم، کلسیم و



شکل ۶. توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در دو ناحیه مختلف از نمونه A3 : (الف) ناحیه اول که در شکل ۱ با مربع قرمز نشان داده شده است، (ب) ناحیه ۲ که در شکل ۱ با مربع آبی نشان داده شده است. ابعاد نواحی آنالیز شده در روی نمونه حدود $2/5 \times 2/5$ میلی‌متر است.

Figure 6. Elemental distribution of some elements in two different areas of sample A3, shown in the optical image with Area 1 marked by a red square and Area 2 marked by a blue square. The dimensions of the analyzed areas in the sample are approximately 2.5×2.5 mm.

جدول ۳. درصد وزنی عناصر موجود در رنگدانه‌های قرمز، سفید و ناحیه زراندود در نواحی ۱ و ۲ نمونه A3. همچنین ترکیبات عنصری لعاب زمینه روی نمونه، پشت نمونه و بدنه نمونه ۳ بر حسب درصد وزنی برای مقایسه در این جدول ارائه شده است.

Table 3. Weight percentage of elements present in the red, white, and gilded areas in Areas 1 and 2 of sample A3. Additionally, the elemental compositions of the glaze on the front, back, and body of sample 3 are presented in this table for comparison.

بدنه سفال body	لاب سبز(پشت) Green glaze (back)	لاب فیروزه‌ای (رو) Turquoise glaze (front)	رنگدانه سفید White pigment	رنگدانه قرمز Red pigment	ناحیه زراندود Gilded area	Elements (wt%)
2.01	0.37	1.34	-	0.56	-	Na ₂ O
3.1	0.47	1.43	-	1.63	0.96	MgO
3.6	5.92	4.01	1.55	3.53	1.2	Al ₂ O ₃
86.13	77.69	71.80	15.57	65.76	39.99	SiO ₂
-	-	-	2.32	0.62	-	SO ₃
-	0.18	0.30	0.54	0.51	0.38	Cl
1.05	1.84	2.90	-	1.69	2.13	K ₂ O
2.64	6.11	7.51	4.72	9.67	8.03	CaO
0.18	0.23	0.13	0.19	0.20	0.15	TiO ₂
0.03	0.05	0.09	-	0.07	0.079	MnO
1.17	2.76	1.55	0.97	7.56	1.63	Fe ₂ O ₃
0.09	1.77	4.62	1.05	3.78	4.88	Cu ₂ O
-	-	-	61.13	-	-	SnO ₂
-	-	-	-	-	36.53	Au ₂ O ₃
-	2.63	4.33	10.21	4.41	4.00	PbO

و منیزیم نیز وجود دارد. همچنین در بدنه‌ی این سفالینه مقدار کمی نیز اکسیدهای آهن، تیتانیم، مس و منگنز وجود دارد که از ناخالصی‌های موجود در کانی سیلیسیس وارد ترکیبات عنصری بدنه شده است.

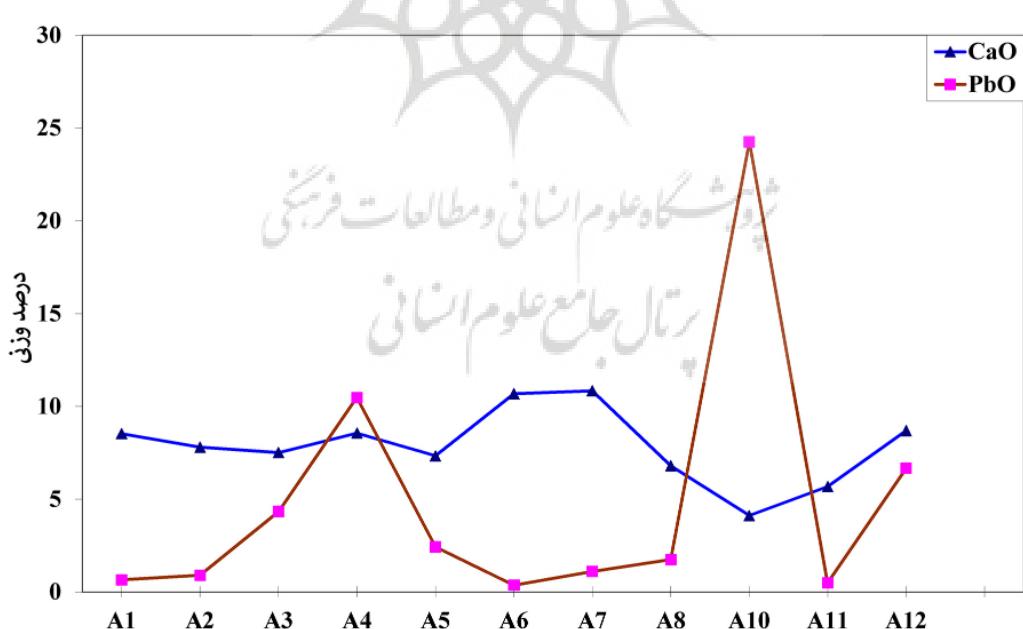
با بررسی نتایج مربوط به ترکیبات عنصری لعاب زمینه نمونه‌های آنالیز شده در این پژوهش که در جدول ۲ ارائه شده است، مشخص است که در همه نمونه‌های مورد بررسی، اکسید کلسیم و اکسید سرب به عنوان استحکام‌بخش و گدازآور استفاده شده است. در شکل ۷ تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم و اکسید سرب در این نمونه‌ها رسم شده است. همان‌طور که در این شکل مشخص است، در همه این نمونه‌ها (به جز دو نمونه لا جور دینه A4 و A12) درصد وزنی اکسید کلسیم همواره بسیار بیشتر از درصد وزنی اکسید سرب است. اما با بررسی دو نمونه ۴ و ۱۲ مشخص است که درصد

مقدار درصد وزنی عناصر موجود در رنگدانه‌های قرمز، سفید و ناحیه زراندود در نواحی ۱ و ۲، همچنین ترکیبات عنصری لعاب‌های سطح داخلی، سطح بیرونی و بدنه نمونه A3 بر حسب درصد وزنی در جدول ۳ ارائه شده است. همان‌طور که در این جدول دیده می‌شود، ناحیه زراندود با درصد وزنی بالایی از طلا تشکیل شده است. همچنین در رنگدانه قرمز حدود ۸ درصد اکسید آهن و در رنگدانه سفید حدود ۶۰ درصد، اکسید قلع وجود دارد. علاوه‌بر این مشخص است که عامل رنگ لعاب فیروزه‌ای روی نمونه A3 اکسید مس است که درصد وزنی آن در این نمونه اکسید آهن و اکسید مس هستند. همچنین همان‌گونه که در این جدول مشاهده می‌شود، بدنه این نمونه به طور عمده از اکسید سیلیسیم تشکیل شده است. که در آن عناصری مانند اکسید آلومینیم، اکسید سدیم

از این نمونه‌ها می‌توان به دست آورد. با استفاده از آنالیز نمونه‌ها از سطح مقطع، اندازه‌گیری ضخامت لعب‌های زمینه در این نمونه‌ها امکان پذیر خواهد بود. در شکل ۸ توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در بدنه و لعب زمینه نمونه A12 که از سطح مقطع آنالیز شده است، نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل با پیکان‌های قرمزرنگ مشاهده می‌شود، با توجه به نقشه توزیع عنصری عناصر سرب و مس متوجه خواهیم شد که این عناصر به طور عمده و غالب در لعب زمینه وجود دارند. از طرف دیگر، با توجه به اینکه ابعاد آنالیز در راستای افقی (X) و عمودی (Y) در حدود ۲۵۰۰ میکرومتر است، ضخامت لعب زمینه در این نمونه حدود ۶۰۰ میکرومتر تخمین زده می‌شود. آنالیز نمونه مختلف از سطح مقطع در این پژوهش نشان داد که ضخامت لعب‌های زمینه در این نمونه از ۱۰۰ تا ۶۰۰ میکرومتر متغیر است. همچنین با توجه به توزیع عنصری کروم در شکل ۸، می‌توان ضخامت لایه‌های نقاشی شده در زیر لعب را نیز مشاهده و محاسبه کرد. با توجه به ابعاد اسکن،

وزنی اکسید سرب این دو نمونه بیشتر از درصد وزنی اکسید کلسیم است. همچنین همان‌طور که در جدول ۲ مشخص است در این دو نمونه از اکسید قلع به عنوان ماده اپک‌کننده در ترکیبات لعب زمینه استفاده شده است. آنالیز عنصری این دو نمونه نشان می‌دهد که در نمونه ۴ و ۱۲ مقدار اکسید قلع به ترتیب ۲۲/۵ و ۸ درصد است. بنابراین نوع لعب‌های به کار رفته در Matin, 2018 این دو نمونه با بقیه نمونه‌ها متفاوت است (Tite, & Watson, 2018). از طرفی، همان‌گونه که در بالا ارائه شد دو نمونه ۴ و ۱۲ و همچنین نمونه ۲ از نظر ترکیبات بدنه نیز با دیگر نمونه‌های آنالیز شده متفاوت داشتند. بنابراین با توجه به نوع لعب زمینه و همچنین ترکیبات عنصری بدنه می‌توان به این نتیجه رسید که سفال‌های کشف شده در ذ موت وارداتی بوده و شاید در مراکز مختلف و با دستور ساختهای متفاوت در کارگاه‌های پراکننده تولید شده باشند.

علاوه بر مشخص کردن ترکیبات عنصری بدنه، لعب زمینه و تعیین رنگدانه‌های استفاده شده در نقاشی‌ها با روش میکروپیکسی، اطلاعات مهم دیگری نیز



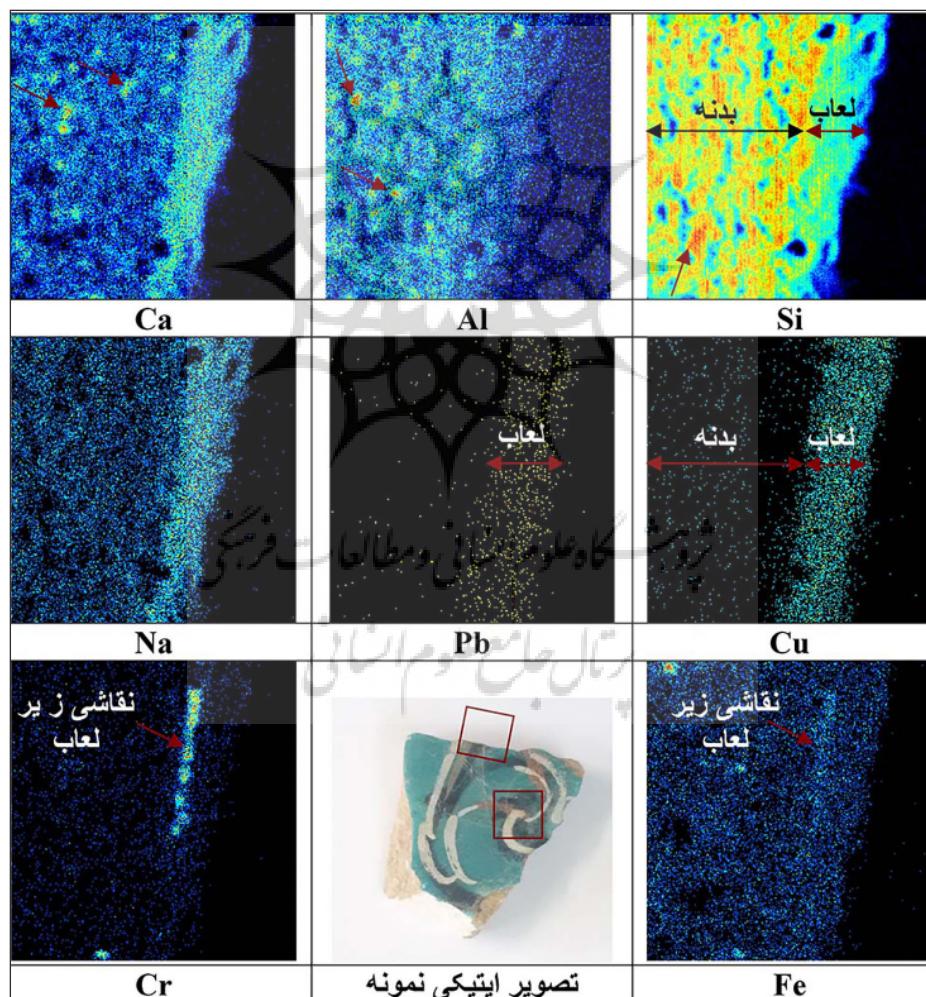
شکل ۷. تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم و اکسید سرب موجود در لعب زمینه ای آنالیز شده.

Figure 7. Variations in the weight percentage of calcium oxide and lead oxide present in the glaze of the analyzed samples.

اندازه‌گیری ضخامت لایه زراندود

در سفال‌های مینایی زراندود در دز الموت، نقوش مختلف با شیوه‌ی نقاشی بر روی لامب سفید یا فیروزه‌ای ترسیم شده و سپس برخی از نواحی این نقوش با لایه‌ی طلا تزیین شده‌اند. بنابراین، از نظر فلسفه‌ی انسانی لایه‌ی طلاکاری شده خارجی‌ترین و سطحی‌ترین لایه است که بر روی لامب فیروزه‌ای یا سفید و همچنین گاهی اوقات بر روی لایه‌های نقاشی شده قرار گرفته است. همان‌طور که قبل نیز اشاره شد، با استفاده از روش micro-RBS ما قادر هستیم تا ضخامت لایه‌های طلای به کار رفته در

ضخامت لایه‌ی نقاشی در ناحیه‌ای که دارای رنگدانه مشکی و کرومیت است، حدود ۱۰۰ میکرومتر است. نکته حائز اهمیت که باید در اینجا به آن اشاره شود، این است که همان‌طور که در شکل ۸ نیز در توزیع مربوط به عنصر کروم دیده می‌شود، این عنصر در نمونه‌ی نقاشی با رنگ مشکی، زیر لامب و روی بدنه قرار گرفته است (Holakooei et al., 2019). فناوری منحصر به‌فردی که در برخی از سفال‌های مینایی دز الموت به کار رفته است حضور نقاشی زیرلعلابی (نقاشی با رنگ مشکی) در کنار نقاشی رولعلابی (نقاشی با رنگ سفید و قرمز) در یک نمونه است.



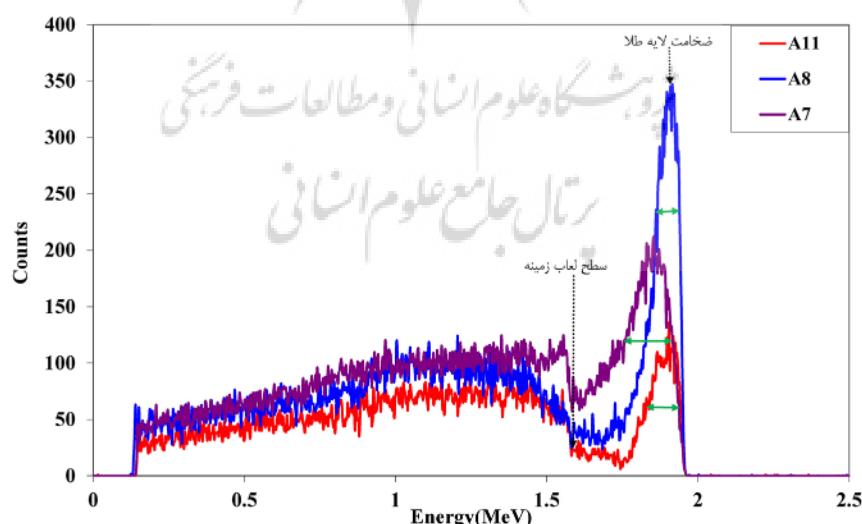
شکل ۸. توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در بدنه و لعلاب زمینه نمونه A12 از سطح مقطع.

Figure 8. Elemental distribution of some elements in the body and glaze of sample A12 from the cross-section.

لیاب و لایه‌ی طلاکاری شده است، نشان می‌دهد که طلای استفاده شده حدود ۱/۵ میکرومتر در داخل لیاب نفوذ کرده است که علت این نفوذ را می‌توان به گرم کردن نمونه‌ها نسبت داد. در جدول ۴ همچنین ترکیبات اصلی تشکیل‌دهنده این دو لایه بر حسب درصد اتمی نشان داده شده است. ترکیب اصلی لیاب مورد استفاده در صنعت سرامیک سیلیس (SiO_2) است. همچنین همان‌طور که در تصویر اپتیکی نمونه A8 دیده می‌شود، رنگ لیاب زمینه‌ی این نمونه فیروزه‌ای است و عامل رنگ این لیاب، عنصر مس است. همچنین برای کاهش نقطه‌ی ذوب لیاب یکی از عناصری که در این نمونه استفاده شده است، عنصر سرب است. بنابراین ترکیب به دست آمده برای این دو لایه کاملاً با فرمول شیمیایی مورد استفاده برای ایجاد لیاب مورد استفاده، تطابق دارد. لایه چهارم نیز که لایه کاملاً ضخیم است، ترکیب لیاب زمینه است. همچنین نتایج محاسبات برای نمونه A2 نیز در جدول ۴ ارائه شده است. محاسبات نشان می‌دهد که لایه‌ی اول که مربوط به لایه‌ی طلا است، ضخامتی در حدود ۵۶۰ نانومتر دارد. همچنین ضخامتی که طلای ناشی از لایه‌ی زراندود در آن نفوذ کرده حدود ۰/۷ میکرومتر است.

ناحیه زراندود را اندازه‌گیری نماییم (Albéric et al., 2016; Fourdrin et al., 2015). در شکل ۹ طیف‌های micro-RBS به دست آمده از سه نمونه‌ی مختلف از نمونه‌های آتاکیزشده از ذره‌ی الموت با یکدیگر مقایسه شده است. در این شکل مشخص است که ضخامت لایه طلا، تعییر می‌کند و هر چه ضخامت لایه‌ی طلا بیشتر باشد، پهنای قله نشان دهنده لایه طلا پیکان سبزرنگ نشان داده شده نیز افزایش می‌باید. همان‌طور که در شکل ۹ مشخص است، ضخامت لایه‌ی طلا در هر سه نمونه متفاوت است زیرا پهنای قله در این سه نمونه کاملاً با یکدیگر تفاوت دارد. همچنین این شکل نشان می‌دهد که هر چه ضخامت لایه‌ی طلا بیشتر باشد، طلای به کار رفته در سطح، در اثر فرایندهای حرارتی تا عمق بیشتری در لیاب نفوذ می‌کند.

نتایج اندازه‌گیری و محاسبه‌ی ضخامت لایه‌ی طلا و میزان نفوذ آن در لیاب زمینه برای دو نمونه در جدول ۴ ارائه شده است. نتایج این محاسبات برای نمونه A8، نشان می‌دهد که لایه‌ی اول که مربوط به لایه‌ی طلا است، ضخامتی در حدود ۳۲۰ نانومتر دارد. لایه دوم و سوم که مربوط به ناحیه‌ی مشترک



شکل ۹. مقایسه طیف‌های micro-RBS به دست آمده از لایه زراندود در سه نمونه مختلف.

Figure 9. Comparison of micro-RBS spectra obtained from the gilded layer in three different samples.

جدول ۴. نتایج اندازه‌گیری و محاسبه ضخامت لایه طلا و میزان نفوذ آن در لعاب زمینه برای دو نمونه A8 و A2.

Table. Measurement results and calculation of the thickness of the gold layer and its penetration into the glaze for two samples, A8 and A2.

عناصر تشکیل دهنده لایه (درصد اتمی).						کد نمونه. Sample Code.		
O	Si	Pb	Cu	Au	ضخامت لایه طلا (نانومتر). Gold Layer Thickness (nanometers).	ضخامت لایه. ($\times 10^{15}$ atom/cm ²) Layer Thickness ($\times 10^{15}$ atom/cm ²).	ترتیب لایه. Layer Order.	
-	-	-	-	100	320	1900	لایه اول (لایه خالص طلا). First Layer (Pure Gold Layer).	A8
40	18	2	24	16	-	3200	لایه دوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Second Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
64	13	2	11	10	-	2500	لایه سوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Third Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
64	36	2.5	2	0	-	130000	لایه چهارم (لعاب زمینه). Fourth Layer (Base Glaze).	
-	-	-	-	100	560	3000	لایه اول (لایه خالص طلا). First Layer (Pure Gold Layer).	A2
20	18	2	30	30	-	3300	لایه دوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Second Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
60	35	4	1	0	-	130000	لایه سوم (لعاب زمینه). Third Layer (Base Glaze).	

مینایی مورد توجه پژوهشگران ایرانی و خارجی مورد مطالعه که نتایج آن منتشر شده، می‌توان به این نتیجه رسید که در ساخت سفال‌های این محوطه به جز نمونه A2، در بقیه نمونه‌ها از خمیرسنج و خاک رس غنی از آلومینا استفاده شده است. درصد وزنی اکسید کلسیم نمونه‌های آنالیز شده بسیار پایین است که این نشان دهنده این است که از سیلیس غیرآهکی در این نمونه‌ها استفاده شده است. اما در نمونه A2 از منابع خاک رس آهکی استفاده شده است. نتایج آنالیز رنگدانه‌های به کار رفته در نقاشی‌های تزیینی نشان می‌دهد که عامل رنگ قرمز، عنصر

نتیجه‌گیری

همان‌طور که در جدول ۱ مشاهده می‌شود، بدن نمونه‌های مورد بررسی از نظر ترکیبات تفاوت‌هایی با یکدیگر دارند. این تفاوت در ترکیبات بدن نشان دهنده این است که در ساخت سفال‌های مینایی از مواد اولیه متفاوتی استفاده شده است. همچنین، این احتمال نیز وجود دارد که نمونه‌های به دست آمده در این منطقه از مکان‌های مختلفی به این محوطه وارد شده باشند. بر پایه نتایج به دست آمده در این پژوهش و مقایسه آن با نتایج گزارش شده از سفال‌های

Albéric, M., Müller, K., Pichon, L., Lemasson, Q., Moignard, B., Pacheco, C., Reiche, I. (2015). Non-invasive quantitative micro-PIXE–RBS/EBS/EBS imaging reveals the lost polychromy and gilding of the Neo-Assyrian ivories from the Louvre collection. *Talanta*, 137, 100-108. doi:<https://doi.org/10.1016/j.talanta.2015.01.029>.

Beck, L., Pichon, L., Moignard, B., Guillou, T., & Walter, P. (2011). IBA techniques: Examples of useful combinations for the characterisation of cultural heritage materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*: 269(24), 2999-3005.

Coccato, A., Moens, L., & Vandenabeele, P. (2017). On the stability of mediaeval inorganic pigments: a literature review of the effect of climate, material selection, biological activity, analysis and conservation treatments. *Heritage Science*, 5(1), 12. doi:[10.1186/s40494-017-0125-6](https://doi.org/10.1186/s40494-017-0125-6).

Choubak, H., (2009). Alamut Castle (Eagle's Nest), <http://www.chn.ir/NSite/FullStory/News/?Id=68476&Serv=0&SGr=0>.

Daftary, F., (2007). *The Ismā‘īlīs: Their History and Doctrines* (Second ed.). Cambridge: Cambridge University Press.

De Bonis, A., D'Angelo, M., Guarino, V., Massa, S., Anaraki, F. S., Genito, B., & Morra, V. (2017). Unglazed pottery from the masjed-i jom'e of Isfahan (Iran): technology and provenance. *Archaeological and Anthropological Sciences*, 9(4), 617-635. doi:[10.1007/s12520-016-0407-z](https://doi.org/10.1007/s12520-016-0407-z).

Eastaugh, N., Walsh, V., Chaplin, T., & Siddall, R. (2004). *The Pigment Compendium: A Dictionary of Historical Pigments*, Taylor & Francis.

Fernandes, F., Niekraszewicz, L. A. B., Amaral, L., & Dias, J. F. (2018). Evaluation of detector efficiency through GUPIXWIN H value. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*: 417, 56-59.

Fourdrin, C., Pagès Camagna, S., Pacheco, C., Radepont, M., Lemasson, Q., Moignard, B., . . .

آهن و عامل رنگ سفید، عنصر قلع است. همچنین برای رنگدانه مشکی در برخی از این نمونه‌ها عنصر کروم و آهن به عنوان عامل رنگ شناسایی شد که نشان‌دهنده استفاده از ترکیب معدنی کرومیت است. علاوه بر این، عامل رنگ لاجوردی در لعاب‌های زمینه سفال‌های لاجوردینه و رولعابی‌های مینایی عنصر کبالت تشخیص داده شد. همچنین مشخص شد که عامل رنگ لعاب‌های فیروزه‌ای مورد استفاده در نمونه‌ها، عنصر مس و عامل رنگ لعاب سبزرنگ، ترکیب عنصر آهن و مس است. نتایج به دست آمده از لایه‌ی زراندود در نمونه‌های دز الموت نشان می‌دهد که ضخامت لایه‌ی زراندود در نمونه‌ها متفاوت هستند و ضخامت آن‌ها بین ۳۲۰ تا ۸۴۰ نانومتر متغیر است.

سپاسگزاری

نویسنده‌گان مقاله از همراهی خانم دکتر حمیده چوبک (سرپرست کاوش‌های باستان‌شناسی دز الموت قزوین) به دلیل تحويل نمونه‌های مورد نیاز در انجام این پژوهش، کمال تشکر و قدردانی را دارند. همچنین لازم است از پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای و کلیه همکاران آزمایشگاه واندوگراف که شرایط مناسب برای آنالیز این نمونه‌ها را فراهم کردند، تشکر و قدردانی شود.

حامیان مالی و معنوی

آنالیز با باریکه‌ی یونی در این پژوهش با حمایت پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای در آزمایشگاه واندوگراف انجام شده است.

پی‌نوشت‌ها

1. Stonepaste .
2. Opacifier .
3. Diopside .
4. Wollastonite .

منابع

Aga-Oglu, M. (1946). The Origin of the Term *Mina*; and Its Meanings. *Journal of Near Eastern Studies*, 5(4), 241-256.

- Jeammet, V. (2016). Characterization of gold leaves on Greek terracotta figurines: A PIXE-RBS study. *Microchemical Journal*, 126, 446-453. doi:<https://doi.org/10.1016/j.microc.2015.12.030>.
- Hamdan, M. A., Martinez, S. M., Garcia Vallès, M. T., Nogués, J. M., Hassan, F. A., Flower, R. J., Ebrahim, E. S. (2014). Ancient Egyptian Pottery from the Subsurface Floodplain of the Saqqara-Memphis Area: Its Mineralogical and Geochemical Implications. *Archaeometry*, 56(6), 987-1008. doi:[doi:10.1111/arcm.12075](https://doi.org/10.1111/arcm.12075).
- Hamer, F., & Hamer, J. (2003). The potter's dictionary of materials and techniques, London: A. & C.
- Henderson, J. (2000). The Science and Archaeology of Materials: An Investigation of Inorganic Materials: Routledge.
- Holakooei, P., de Lapérouse, J.-F., Carò, F., Röhrs, S., Franke, U., Müller-Wiener, M., & Reiche, I. (2019). Non-invasive scientific studies on the provenance and technology of early Islamic ceramics from Afrasiyab and Nishapur. *Journal of Archaeological Science: Reports*, 24, 759-772. doi:<https://doi.org/10.1016/j.jasrep.2019.02.029>.
- Holakooei, P., Petrucci, F. C., Tassinari, R., & Vaccaro, C. (2013). Application of WDXRF in the provenance studies of Persian haft rang tiles: a statistical approach. *X-Ray Spectrometry*, 42(2), 105-115. doi:[10.1002/xrs.2441](https://doi.org/10.1002/xrs.2441).
- Innocenti, S., Quintero Balbás, D., Galeotti, M., Cagnini, A., Porcinai, S., & Striova, J. (2024). Historical Pigments and Paint Layers: Raman Spectral Library with 852 nm Excitation Laser. *Minerals*, 14, 557. doi:[10.3390/min14060557](https://doi.org/10.3390/min14060557).
- Íñáez, Javier G., Bellucci, Jeremy J., Enrique Rodríguez-Alegría, Richard A., William McDonough, Speakman, Robert J., (2010). Romita pottery revisited: a reassessment of the provenance of ceramics from Colonial Mexico by LA-MC-ICP-MS, *Journal of Archaeological Science*, 37(11), 2698-2704.
- Jeynes, C., & Colaux, J. L. (2016). Thin film depth profiling by ion beam analysis. *Analyst*, 141(21), 5944-5985. doi:[10.1039/c6an01167e](https://doi.org/10.1039/c6an01167e).
- Johansson, S. A. E., & Campbell, J. L. (1989). PIXE: A novel technique for elemental analysis, New York, John Wiley & Sons.
- Kambakhshfard, S. (2000). The Pottery in Iran from the beginning of Neolithic to contemporary, Tehran, Iran: Ghoghnoos (In Persian).
- [کامبخش‌فرد، سیف الله (۱۳۷۹). سفال و سفال‌گری در ایران از ابتدای نوستگی تا دوران معاصر، تهران، انتشارات ققوس].
- Koss, K., Blythe, M.C., Chase, E.S., Smith, D. (2009), Analysis of Persian Painted Minai Ware, in Scientific Research on Historic Asian Ceramics, Proceedings of the Fourth Forbes Symposium at the Freer Gallery of Art, Washington D.C.
- Lane, A. (1958). Early Islamic Pottery: Mesopotamia, Egypt and Persia: Faber & Faber.
- Mason, R. B. (1997). Shine Like the Sun: Lustre-painted and Associated Pottery from the Medieval Middle East: Mazda Publishers.
- Mason, R. B., Tite, M. S., Paynter, S., & Salter, C. (2001). Advances in Polychrome Ceramics in the Islamic World of the 12th Century AD. *Archaeometry*, 43(2), 191-209. doi:[10.1111/1475-4754.00014](https://doi.org/10.1111/1475-4754.00014).
- Mason, R. B., Tite, M. S. (2017). The beginnings of tin-opacification of pottery glazes, *Archaeometry*, 39(1), 41-58.
- Matin, M., Tite, M., & Watson, O. (2018). On the origins of tin-opacified ceramic glazes: New evidence from early Islamic Egypt, the Levant, Mesopotamia, Iran, and Central Asia. *Journal of Archaeological Science*, 97, 42-66. doi:<https://doi.org/10.1016/j.jas.2018.06.011>.
- Nastasi, M., Mayer, J., & Wang, Y. (2014). Ion Beam Analysis: Fundamentals and Applications. Boca Raton: CRC Press.

Pincé, P., Braekmans, D., Lycke, S., & Vandenabeele, P. (2019). Ceramic Production in the Kur River Basin (Fars, Iran) During the Middle to Late Second Millennium bce: A Geochemical and Technological Characterization. *Archaeometry*, 61(3), 556-573. doi:10.1111/arcm.12451.

Sotūdeh, M., (1955). Alamut Castle, Farhang e Iran Zamin. No. 3, 5-21. [In Persian].

[ستوده، منوچهر (۱۳۳۴). قلعه الموت - بلدة الاقبال، نشرية فرهنگ ایران زمین، شماره ۳، ۵-۲۱.]

Tite, M., Watson, O., Pradell, T., Matin, M., Molina, G., Domoney, K., Bouquillon, A., (2015). Revisiting the beginnings of tin-opacified Islamic glazes, *Journal of Archaeological Science*, 57, 80-91.

Tite, M. S., Wolf, S., & Mason, R. B. (2011). The technological development of stonepaste ceramics from the Islamic Middle East. *Journal of Archaeological Science*, 38(3), 570-580.

Weber, G., Strivay, D., Martinot, L., & Garnir, H. P. (2002). Use of PIXE–PIGE under variable incident angle for ancient glass corrosion measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*:189(1), 350-357. doi:[https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(01\)01085-0](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(01)01085-0).

Wilson J. Christy (1992) A History of Iranian Art, Translated by Abdullah Faryar, Tehran: Yasavoli [In Persian].

[ویلسن، ج. کریستی (۱۳۷۰). تاریخ صنایع ایران، ترجمه: عبدالله فریار، انتشارات یساولی، تهران.].

Yazdani, M., Emami, S. M. A., Ahmadi, H., Lamehi-Rachtı, M., Abdollah Khan Gorji, M., & Agha-Aligol, D. (2017). A Technological Study of Making and Executing Raised and Gilded Ornaments on Mina'i Wares from the Medieval Islamic Period in Iran. *Journal of Iranian Handicrafts*, 1(1), 5-20. (In Persian).

[یزدانی، ملیکا؛ امامی، سید محمد امین؛ احمدی، حسین؛ لامعی رشتی، محمد؛ عبدالله خان گرجی، مهناز؛ آقائعلی گل، داود (۱۳۹۶). مطالعه شیوه ساخت و اجرای

تزیینات برجسته و زراندود در سفال مینایی دوران میانی اسلامی در ایران، هنرهای صناعی ایران، شماره ۱، ۵-۵.].

Yazdani, M., Ahmadi, H., Emami, S. M. A. and Abdollahkhan Gorji, M. (2015). Chronology of Mina'i Ware based on in Scripted Samples. *Journal of Fine Arts: Visual Arts*, 20(3), 45-56. doi: 10.22059/jfava.2015.56380 [In Persian].

[یزدانی، ملیکا؛ احمدی، حسین؛ امامی، سید محمد امین؛ عبدالله خان گرجی، مهناز (۱۳۹۴). گاهنگاری سفال مینایی براساس نمونه‌های کتیبه‌دار، نشریه هنرهای زیبا-هنرهای تجسمی، دوره ۳، شماره ۴۵-۵۶.].