

고려청자 발색에 미치는 요인분석

김정아 · 이영은 · 고경신
중앙대학교 대학원 과학학과

An analysis on factors affecting color development of Goryeo celadon

Jung-A Kim · Young-eun Lee · Kyong-shin Koh
Dept. of Science of Sciences, Chung-Ang University

I. 서론

본 연구는 부안 유천리와 용인 보정리 가마터 출토 자기편을 중심으로 고려청자 유약 발색에 영향을 미치는 여러 요인들에 대한 과학적인 분석을 시도한 것이다. 지금까지 청자 유약의 색조는 성분조성 중 Fe_2O_3 와 TiO_2 의 착색산화물 함량 차이에 따른 것으로 해석하는 경우가 대부분이었으며, 철산화물상태의 상대적인 비를 구하여 번조분위기의 영향을 밝히고자 하는 시도가 있었다. 그러나, 유색은 성분 이외에도 번조시간과 번조분위기 등이 복잡하게 작용한 결과로 얻어지는 것으로, 단순히 성분분석결과만으로 해석하는 것에는 한계가 있다. 이번 연구에서는 성분분석과 함께 원료의 제작방법과 번조온도와 식히는 속도의 조절 등에 의한 미세구조의 변화를 분석하였으며, 그 결과들을 종합적으로 해석함으로써, 화학적인 요인 이외에 유약 발색에 작용하는 광학적인 반응에 의한 영향을 구체적으로 파악하고자 하였다.

II. 실험

1. 분석시료

부안 유천리 출토 최고급 비색청자 7편과 11-12세기 지방청자가마터인 용인 보정리에서 출토된 16편을 분석하였다. 보정리의 도편은 유색을 기준으로 녹색과 갈색, 담청색그룹으로 나누어 분류하였으며, 불투명한 푸른색 유조의 도편을 포함시켰다.

2. 분석방법

색도와 반사도는 분광측색기(MINOLTA, CM-2600d)를 이용하여 유약면의 세 곳 이상을 측정한 후 평균치를 구하였다. 유약의 주성분 분석은 전자 현미 분석장치(EPMA, Electron Probe Microanalyzer)를 이용하여 분석하였으며, 조건은 15kV, 5nA였다. 광학현미경을 통한 미세구조 관찰은 도편을 에폭시 수지에 정착시킨 뒤 연마과정을 거친 후 HF용액(HF:H₂O=1:5)에 5-7초 에칭시킨 후 관찰하였다.

III. 결과 및 고찰

반사도에서 최고의 반사율을 갖는 가시영역과장범위는 유색과도 밀접한 관계가 있는데, 유천리 도편의 경우 대체로 530-580nm의 범위에서 최고반사율을 나타내며, 400-420nm에서도 약간 높아지는 경향을 보이고 있어 녹색과 함께 푸른색의 영향을 감지할 수 있었다. 이러한 현상은 보정리의 불투명한 푸른색 유조를 갖는 도편에서 더욱 뚜렷하게 나타났다. 반면, 보정리의 녹색 그룹은 580-600nm의 범위에서 최고 반사율을 보였다. 담청색 그룹은 가장 급경사의 반사도 곡선을 보이고 있으며, 반사율 역시 가장 우수하였다. 또한 L*a*b* 측정결과 L* 값이 다른 것들과 비교하여 높게 나타나 유색에 백색의 태토색이 반영된 것을 알 수 있었다.

Table 1은 각 도편의 유약성분 분석 결과를 그룹의 평균으로 정리한 것이다. 유천리 청자의 유약은 Al₂O₃ 13.6wt.%, CaO 19.3wt.%, K₂O와 Na₂O가 각각 3.14wt.%와 0.14wt.%로 높은 라임계열 (high-lime type glaze)에 속하였다. 보정리의 경우 이보다 약간 낮은 16.8wt.%의 CaO함량을 갖는 것으로 조사되어 라임계열 유약(lime-type glaze)으로 분류할 수 있다. 한편, 착색 산화물 중 Fe₂O₃의 함량은 1.3wt.%의 유천리 청자가 다소 낮았고, 보정리의 청자는 약 2wt.% 내외였으며, TiO₂와 MnO의 함량은 두 지역에서 큰 차이를 보이지 않았다. 유천리 도편들 중 세편에 대한 철산화상태의 비를 구한 결과는 이미 발표된 바 있는데, YC-2와 YC-3는 각각 72.0%, 81.5%로 매우 높은 환원분위기에서, YC-5는 65.4%로 약간 낮은 환원의 번조환경에서 번조된 것으로 조사되었다.

이와 같이 성분분석결과에서는 유천리의 비색과 보정리의 조질청자, 그리고 보정리의 유색에 따라 분류한 각 그룹들이 유약성분에 있어서는 큰 차이를 보이고 있지 않는다는 것을 알 수 있었다. 즉, 이들의 가시적인 특징은 다른 요인들이 함께 작용한 결과로 볼 수 있다. 본 연구에서는 유색과 투명도, 반사도 차이와 연관된 요인들을 미세구조의 관찰을 통하여 찾아보고자 하였다.

유천리 비색청자들은 $400\mu\text{m}$ 이상으로 유약의 두께가 매우 두꺼운 편이었다. Fig. 1에서 볼 수 있는 바와 같이 유약층에는 석영 등의 원료입자들이 거의 녹아 유리질화되어 있으며, 큰 기포가 고루 분포하고 있다. 회장석 결정은 거의 관찰되지 않는다. 이러한 미세구조와 용융제함량이 높은 성분상의 특징을 연관시켜 볼 때, 번조온도가 높지 않은 편이었고, 번조속도가 비교적 빠르게 진행되었을 것으로 추정된다. 미세구조에서 가장 주목할 만한 특징은 유약층이 균일하지 않고, 성분상의 불균일함으로 인해 반사전자상에서 다른 명암으로 나타나 마치 물결의 흐름과 같이 보이는 현상(schlieren effect)이다. 이러한 이유는 결국 원료의 배합이 고르지 않아서 생기는 현상으로 이해할 수 있다. 따라서 비색의 깊고 풍부한 유조는 유약층의 기포, 그리고 균일하지 않은 성분배에 의해 형성된 불완전한 경계면 등에 의한 빛의 산란과 굴절, 그리고 일부 태토색에 의한 반사가 어우러져 보이게 되는 결과임을 알 수 있다.

보정리 대부분의 도편은 불투명할 정도로 탁하게 보였는데, 이 경우에는 $200\mu\text{m}$ 내외로 비교적 유약의 두께가 얇은 편이었으며, 태토와 유약경계면에 회장석이 자라 있었고, 유약층 내부에 고르게 분포하고 있는 녹지 않은 석영과 기포 등이 다수 관찰되었다. 한편, 녹색그룹의 BJ-2와 BJ-6, 갈색그룹의 BJ-12에서는 결정물이 거의 없고 석영도 거의 녹아 유천리의 경우처럼 유약층이 비교적 깨끗하였는데, 이 도편들은 실제 육안으로 관찰하였을 때 유약면이 반투명하고 반짝이게 보였다.

불투명한 푸른 유조의 BJ-30의 미세구조를 관찰한 결과 유약층 내부에 불균일한 성분조성에 의한 물결효과(schlieren effect)가 비색청자보다 심하게 나타났으며, 유리질화된 후 식는 과정에서 생성된 것으로 추정되는 아주 미세한 결정들이 균집하고 있는 특이한 현상을 볼 수 있었다. 따라서 이 도편의 불투명함과 푸른색상은 착색산화물의 성분조성보다는 $800\mu\text{m}$ 에 이르는 두꺼운 유약과 유약 내부의 이러한 특징적인 미세구조에 의해 더 많은 영향을 받는 것으로 해석할 수 있다. 이러한 현상들이 발색에 미치는 보다 구체적인 영향은 앞으로 연구가 더 이루어져야 부분이다.

한편, 담청색 그룹과 녹색그룹 간에는 발색제 성분 상의 차이가 거의 없음에도 불구하고, 담청색 그룹이 더 밝게 보이는 이유는 태토의 영향에 의한 것으로 파악된다. 두께가 $200\mu\text{m}$ 이하로 얇고 투명한 유약으로 입사된 빛이 백색도가 우수한 태토면에 닿아 반사된 효과가 유약 발색에 영향을 주었기 때문이다. 이와 같이 두께가 얇고 투명한 경우에는 유약을 통과한 빛이 태토까지 닿아 반사되어 유약의 색과 태토의 색이 함께 작용하게 된다.

지금까지 성분분석과 습식화학분석을 통한 철산화물상태분석, 그리고 미세구조분석을 통한 번조공정의 추정 등 다양한 접근방법을 통하여 청자 유약의 발색에 영향을

미치는 여러 요인들에 대하여 구체적으로 살펴보았다. 비색청자는 1.3wt.%의 Fe_2O_3 함량과 강한 환원분위기에 의한 번조공정 이외에도 미세구조관찰을 통하여 두꺼운 유층의 불균일함과 기포에 의한 빛의 산란과 굴절 등에 의해 더욱 풍부한 깊이가 더해지는 것으로 파악되었으며, 높은 라임성분과 회장석이 발견되지 않은 점으로 미루어 볼 때, 높지 않은 온도에서 번조가 빠르게 진행되었을 것으로 추정되었다. 이해 비해, 다양한 유색의 보정리 청자들은 철함량에는 큰 차이가 나타나지 않았으며, 유약 내부의 결정과 기포의 존재양상에 따라 투명도와 반사도가 크게 좌우되었다. 얇고 투명한 유약 아래의 태토층에 의해서도 유색이 다르게 보였다. 따라서, 청자 유약 발색의 메카니즘에는 성분조성의 화학적인 성분뿐만 아니라 번조공정에 의해 결정되는 유약 내부의 미세구조, 즉 입사광과 유약층 내부에 존재하는 다양한 크기의 결정입자들, 기포, 그리고 태토와의 광학적인 반응 등 다양한 요인들이 서로 복합적으로 작용하고 있음을 알 수 있다.

Table 1. Glaze composition of the celadon sherds.

Kiln site (Number of Sherds)	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	MnO	P ₂ O ₅	Total
Buan Yucheol-ri (7)											
Average	58.73	13.59	1.33	1.92	19.33	0.42	3.14	0.23	0.44	0.63	99.77
Standard dev.	1.03	0.69	0.13	0.45	1.46	0.22	0.38	0.04	0.13	0.26	0.46
Yongin Bojeong-ri, Gorup I: Green glaze (6)											
Average	55.36	14.07	2.18	3.01	17.84	0.74	3.74	0.22	0.47	1.37	99.02
Standard dev.	1.23	0.64	0.32	0.41	1.09	0.35	0.41	0.03	0.10	0.26	0.47
Yongin Bojeong-ri, Gorup II: Brown glaze (6)											
Average	57.54	13.86	1.79	2.90	16.23	1.10	3.76	0.25	0.53	1.41	99.37
Standard dev.	1.23	1.20	0.37	0.36	2.18	0.53	0.54	0.09	0.11	0.33	0.41
Yongin Bojeong-ri, Gorup III: Light Blue glaze (3)											
Average	57.78	14.40	2.22	2.76	17.36	0.52	3.43	0.22	0.50	1.44	100.64
Standard dev.	1.80	0.54	0.14	0.31	0.79	0.12	0.39	0.08	0.09	0.27	0.17
Yongin Bojeong-ri, Gorup IV: Opaque blue glaze (1)											
Average	59.84	13.03	1.34	2.44	13.68	1.33	5.93	0.10	0.36	1.42	99.47

Fig. 1 Backscattered Electron Image of *Bisaek* Celadon from Buan Yucheol-ri.

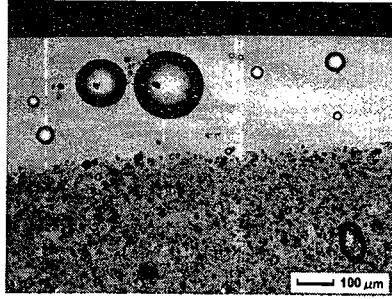


Fig. 1 Backscattered Electron Image of *Bisaeck* Celadon from Buan Yucheol-ri