



소성실험을 통한 청자의 물리적 특성 변화 연구

한민수, 홍종욱, 박지희

소성실험을 통한 청자의 물리적 특성 변화 연구

A Scientific Study for Physical Properties of Celadon in Firing Experiment

한 민 수, 홍 종 옥, 박 지 희
Han Min-su, Hong Jong-ouk, Park Ji-hee

〈ABSTRACT〉

This study is to be investigated through firing experiment in studio in order to reveal a physical properties of celadon according to change firing temperature.

The results can be briefly summarized as below;

Firstly, in measurement of color chromaticity, samples of first firing in body were effective in differentiating of changed color in samples from each other but there of second firing were not. The color of the glaze was more effective change than that of the body.

Secondly, bulk density of body was increased with temperature and it was attained highest point in 1200°C. Additionally, water absorption ratio was most rapidly changed between 1000°C and 1200°C.

Thirdly, in the microstructural analysis, body of samples in first firing have not specific characteristics in the changed patterns of microstructure. body and glaze of samples in second firing have many that.

Consequently, we knew that this experiment can be provided researcher with physical properties and firing mechanisms of celadon.

I. 머리말

불을 사용하기 시작하면서 인류는 토기(clay ware), 도기(earthen ware), 석기(stone ware), 자기(porcelain) 등을 구워 일상생활에 사용하여 왔다¹⁾. 이러한 흙을 이용한 기물의 제작은 역사학·미

1) 金元龍, 「韓國 古美術의 理解」, 서울大學校 出版部, p.204, 1982

술학적 관점에서 뿐만 아니라 과학적 관점에서도 매우 중요하다.

열을 이용한 물리·화학적 공정 발전에서 본다면 토기는 점토질의 태토를 사용하여 700~800℃ 정도에서 소성하고 유약(釉藥)을 시유하지 않은 것이며, 청동기시대로 넘어오면서 800~1000℃ 정도에서 소성한 비교적 단단한 도기가 제작되었다. 이후 1100℃ 이상의 높은 소성온도를 가지고 장석(長石)이 일부 녹아 유리질로 변하는 석기를 삼국시대와 통일신라시대에 주로 제작되었으며, 자기는 1200~1400℃ 정도의 매우 높은 온도에서 구워 태토의 유리질화가 더욱 촉진되어 강도가 매우 높고 표면에 유리질막이 씌워진 그릇을 말하며, 이러한 자기는 고려시대에 접어들면서 발달하게 된다²⁾. 이 중에서도 자기의 출현은 흙을 이용한 인류의 기술발달사에서 매우 중요한 부분이며, 그 중심에 위치하고 있는 것이 청자이다.

이러한 청자에 대한 제작 기법에서 중요한 것이 바로 소성이며, 소성과정에서 기물에 내포된 다양한 변수들은 복잡한 공정에 의해 매우 특이한 물리·화학적 변화가 일어난다³⁾. 그러므로 생산 당시에 사용되었던 제작기술을 규명하기 위해서는 과학적이고 체계적인 실험과 다양한 장비를 이용하여 역추적하는 것이 필요하다.

청자에 대한 소성 특성연구는 기존 외국에서 진행된 과학적 연구⁵⁾와는 다른 고려청자의 제조 시험⁶⁾ 등의 실험적 연구에서 먼저 진행되었다. 이후 청자 등 도자기 원료의 소성특성을 점토광물학적 변화라는 새로운 측면에서 접근하는 연구⁷⁾가 뒤를 이었으며, 고려청자의 주산지인 강진 용운리, 계율리, 사당리 고려청자 파편을 이용한 열분석과 재현시편의 제작을 통한 고려청자의 소성기법을 밝히는 연구⁸⁾도 이루어졌으나 보완할 점이 많다.

그러므로 본 연구에서는 현대 청자 제작에 사용되는 재료를 이용하여 공방에서 소성실험을 실시하고, 소성 과정에서 일어나는 물리적 특성 변화를 과학적이고 체계적으로 연구하여 청자 유물의 소성 연구에 활용하고자 한다.

2) 강경숙, 한국 도자기, 일지사, p.1~2, 1989

3) Kingery, W. D., Bowen, H. K. and Uhlmann, D. R., Introduction to Ceramic, Wiley, 1976

4) 都珍英, 「高麗靑磁의 微細構造에 관한 研究」, 中央大學校 碩士學位論文, p.1, 1993

5) P. P. Budnikov, translation by Scripta Technica, The Technology of Ceramics and Refractories, The M.I.T Press, p.505, 1964

6) 국립공업표준시험소, 고려청자 제조 시험, 연구보고, 제 23집, p.67~75, 1973

7) 皮在盛, 도자기 원료의 특성연구, 명지대학교 석사학위논문, 2003

8) 김경진, 강진 고려청자의 특성분석 및 재현에 관한 연구, 호남대학교 석사학위논문, 2004

II. 연구대상 시료 및 방법

1. 연구 대상시료



Photo 1. Samples formed with modern material and fired in gas furnace

* FF(초벌소성 시편), SF(재벌소성 시편)

1. FF-1 : 유약을 시유하지 않고 500℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 FF-2 : 유약을 시유하지 않고 600℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 FF-3 : 유약을 시유하지 않고 700℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 FF-4 : 유약을 시유하지 않고 800℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 FF-5 : 유약을 시유하지 않고 870℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 FF-6 : 유약을 시유하지 않고 500℃까지 소성한 후 가마 내부에서 실온까지 냉각시킨 후 꺼낸 시편
2. SF-1 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 870℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-2 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 950℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-3 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1000℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-4 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1050℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-5 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1100℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-6 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1150℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-7 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1200℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-8 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1250℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-9 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1300℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-10 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1350℃까지 소성한 후 즉시 꺼낸 시편
 SF-11 : 초벌 소성편에 유약을 시유하고 1350℃까지 소성한 후 가마 내부에서 실온까지 냉각시킨 후 꺼낸 시편

연구 대상 시료는 현재 공방에서 청자의 재현에 사용되는 원료를 이용하였으며, 소성 실험은 도예가를 통해 실시하였다.

실험은 먼저 태토를 수비한 후 3cm×5cm 크기의 시편을 제작하고, 이를 가마에서 소성하는 과정 중에 온도구간별로 반출하였다. 소성은 초벌편과 재벌편으로 나누어 가스가마에서 번조하였다. 초벌편은 산화분위기에서 청자의 초벌소성온도인 870℃를 포함하여 400℃~870℃ 구간까지 100℃간격으로 총 6편을 제작하였으며, 재벌편은 초벌편에 유약을 시유한 후 1350℃까지 50℃간격으로 총 11편을 제작하였다(Photo 1).

초벌편의 소성 시 가마온도의 상승 속도는 평균 3℃/min이었으며, 총 2시간 40분이 소요되었다. 재벌편은 970℃에서 5시간 소성한 다음 환원상태로 8시간을 소성하였으며, 총 13시간 40분이 소요되었다. 초벌 후 재벌소성 시 가마온도의 상승 속도는 평균 1℃/min이었다. 이에 대한 온도 상승 곡선은 Fig. 1, 2와 같다.

초벌과 재벌 소성이 끝난 후 최종편은 가마가 식기 전에 반출한 편[초벌-870℃, 재벌-1350℃]과 가마 안에서 완전히 냉각시킨 후 반출한 시편[초벌-870℃(inside), 재벌-1350℃(inside)]으로 구별하였으며, 가마의 번조온도는 상부에 설치된 열전대(thermocouple)를 이용하여 측정하였다. 제작된 시편은 각 번조온도 구간별로 태토와 유약의 색도 등 물리적 특성을 과학적으로 분석하였다.

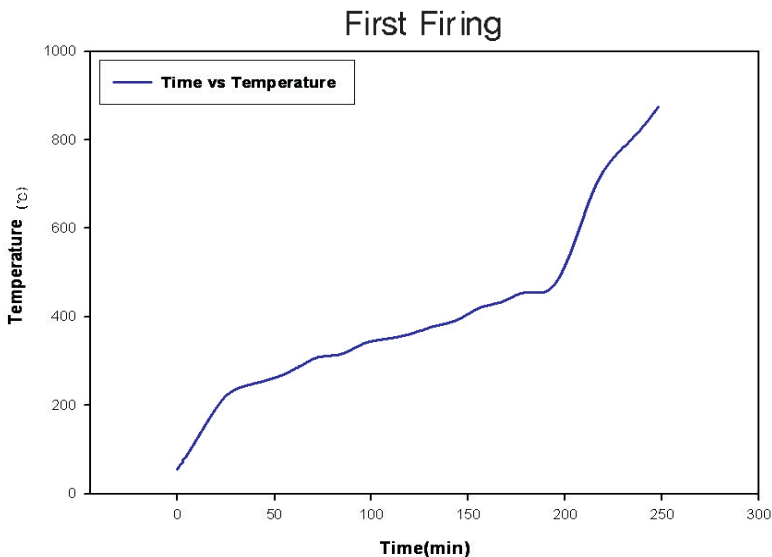


Fig. 1. The temperature rising curve of furnace in first firing experiment

9) 경기도 이천의 안정환 도예공방에서 가스가마를 이용하여 소성실험을 실시하였음

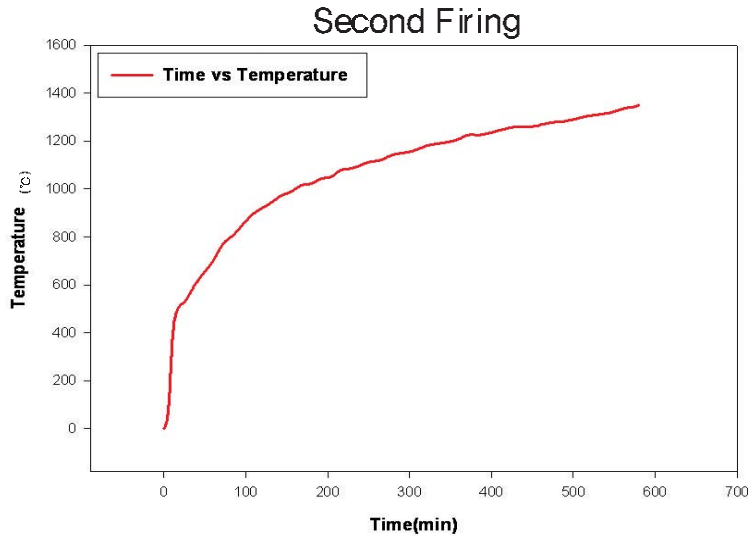


Fig. 2. The temperature rising curve of furnace in second firing experiment

2. 연구방법

1) 색도측정

색도는 초벌소성편은 태토면, 재벌소성편은 유약면과 태토면에 대해 각각의 색차를 측정하였으며, 태토면은 소성 시 외부와의 반응과 표면 이물질 부착을 고려하여 연마기로 표면을 최대한 평평하게 가공하여 초음파세척기에서 세척 후 $110 \pm 5^\circ\text{C}$ 의 Oven에서 24시간 건조하여 측정하였다.

색도계(Chroma Meter, Minolta, CR-200, Japan)는 표준광원 D65, 측정면적은 Φ 20mm로 하여 서로 다른 3곳을 측정하여 평균을 구하였으며, 색상차는 KS A 0089의 규정에 의거하여 L^* , a^* , b^* 표색계의 색차(ΔE)로 표시하였다¹⁰⁾.

L^* , a^* , b^* 표색계는 국제조명위원회(Commission Internationale de l'Éclairage, 약칭 CIE)가 1976년에 권장한 규격으로 지각적으로 거의 균등한 보도를 가진 색공간의 하나로서, 국제조명위원회에서는 CIE 1976($L^* a^* b^*$) 색공간이라 부르며, CIE LAB로 표시한다¹¹⁾.

L^* , a^* , b^* 표색계에 의한 색차(ΔE^*_{ab})계산 방법은 다음과 같다.

$$\Delta E^*_{ab} = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{\frac{1}{2}}$$

10) 한국표준협회, "KS A 0089 -백색도 표시 방법-", 「한국산업규격」, 2005

11) Commission Internationale de l'Éclairage, "Colorimetry -Second Edition-", Publication CIE No.15.2, 1986

ΔL^* , Δa^* , Δb^* 는 각각 KS A 0067에 규정되어 있는 L^* , a^* , b^* 표색계에서 2개의 물체색의 명도지수 L^* , Chromachekness 지수 a^* 및 b^* 의 차이이다¹²⁾.

2) 겉보기비중 및 부피비중, 흡수율, 겉보기기공률 측정

청자 소성편의 비중 및 흡수율, 기공률은 태토에 대해서만 측정하였으며, 측정장치는 분석용 저울(Weighing Machine, 202A, Precisa, Switzerland)과 비중측정장치(Density Kit)를 이용하였다. 측정방법은 KS L 4008에서 규정하는 방법을 이용하였다¹³⁾.

실험 방법상 시편의 건조무게를 먼저 측정하도록 되어 있으나 시료의 상태에 따라 일부 초음파 세척과 가열을 통한 침적과정에서 미세한 용해와 분해로 시편이 미량 소실될 우려가 있으므로 포수시료의 무게를 먼저 측정하였다. 포수시료의 준비는 시편을 3회 초음파 세척한 후 증류수에 담가 24시간 동안 침적시켰다. 이후 물의 비점을 유지할 수 있는 가열장치에서 계속 시료가 물 속에 잠긴 것을 살피며 5시간 동안 끓인 다음 가열을 중지하고, 24 시간 동안 그대로 담가 서서히 냉각시켰다. 측정은 침적된 시료를 꺼내어 물 속에서의 포수시료 무게(W_2)와 표면의 물기를 닦아내고 공기 중에서의 포수시료 무게(W_3)를 측정한 후 건조기에서 $110 \pm 5^\circ\text{C}$ 로 48시간 동안 항량이 될 때까지 건조하였다. 건조된 시료는 흡습을 방지하기 위해 데시케이터 속에서 냉각시킨 후 시료의 건조 무게(W_1)을 측정하였다. 각 측정값을 이용하여 비중 등의 계산은 다음 식을 이용하였다.

$$\begin{aligned} \text{겉보기 비중} &= W_1 / (W_1 - W_2) \dots\dots\dots (1) \\ \text{부피 비중} &= W_1 / (W_3 - W_2) \dots\dots\dots (2) \\ \text{흡수율}(\%) &= (W_3 - W_1) / W_1 \times 100 \dots\dots\dots (3) \\ \text{겉보기 기공률}(\%) &= (W_3 - W_1) / (W_3 - W_2) \times 100 \dots\dots\dots (4) \end{aligned}$$

3) 미세구조관찰

소성된 청자자 시편을 다이아몬드 절단기(Diamond Cutting Wheel, Minitom, Struers co., Denmark)로 일정한 크기가 되게 자른 후 초음파세척기로 표면에 부착된 이물질을 제거하고, 예폭시수지에 마운팅 하였다. 고착된 시료를 연마지 #120, #320, #500, #800, #1000, #1200, #2400, #4000을 순서대로 사용하여 단면의 유약층에 스크래치가 없을 때까지 연마하고, $3\mu\text{m}$ 와 $1\mu\text{m}$ 의 광택 천을 이용하여 관찰면을 경면과 같이 가공하였다. 그다음 에틸알코올(Ethyl Alcohol, 순도 99.99%)

12) 한국표준협회, "KS A 0067 - L^* a^* b^* 표색계 및 $L^*u^*v^*$ 표색계에 의한 물체색의 표시방법", 「한국산업규격」, 1996

13) 한국표준협회, "KS L 4008 - 도자기의 흡수율, 부피비중, 겉보기비중 및 겉기공률의 측정방법-", 「한국산업규격」, 1996

로 세척하여 건조시키고, 불산(HF 5ml, Deionized water 25ml)으로 도편에 따라 약 5~30초간 에칭(Etching)시켰다.

가공된 시편의 단면을 광학현미경(Optical Microscope, Axiotech 100HD/Progress 3012, Carl Zeiss, Germany)으로 관찰하였으며, 영상분석기(Image Analyzer, KS 300 System, Carl Zeiss, Germany)를 이용하여 태토와 유약 층의 상태를 분석하였다.

IV. 분석결과 및 고찰

1. 색도

도자기는 입자, 입계, 기공, 이상(異相) 등이 들어간 복잡한 미세구조를 하고 있다. 특히 유약은 태토와 같은 석영, 장석, 점토 등으로 구성되어 있으나 장석의 양을 상대적으로 많이 포함하고 있어 이들이 소성과정에서 자화됨에 따라 유리화가 진행되고, 번조 분위기나 번조 온도, 냉각 속도의 변화에 따라 다양한 상태도를 형성하게 된다¹⁴⁾¹⁵⁾. 일단 유리화 된 유약 층은 외부에서 유입되는 빛에 의해 Fig. 3과 같이 반사와 산란 등이 일어나게 된다.

청자의 유약 층에 입사된 빛은 먼저 표면의 요철에서 일부 난반사가 일어나고, 투과된 빛은 내부에 존재하는 크고 작은 기포나 빙렬들에 의해 흡수와 산란이 일어난다. 또한 태토와 유약의 경계면에 새로 생성될 수 있는 회장석(anorthite, $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$)이나 물라이트(mullite $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$), 규회석(wollastonite, CaSiO_3) 등은 난반사와 굴절을 일으킨다. 일부 태토의 내부까지 투과된 빛은 태토 내에 존재하는 결정입자의 입계나 기공, 불균질 구조부에 도달하여 광학적 작용을 일으키며, 이들 또한 청자의 색도에 영향을 미치게 된다¹⁶⁾¹⁷⁾¹⁸⁾.

따라서 청자의 태토나 유약층의 색도는 소성과정 중 일어나는 다양한 물리·화학적 작용이 동시에 작용하여 나타나는 것이므로 도자기의 소성과정을 이해하는데 중요한 연구 방법의 하나로 판단된다.

색도 값이 지시하는 L^* , a^* , b^* 명도(L^*)는 색의 밝고 어두운 정도를 나타내고, 측정 범위는

14) 柳田博明, 정현생·김종오 공역, 「세라믹스화학」, 반도출판사, p.81~82, 114~119, 246~248, 1996

15) 이영은, 「조선분청의 성분 및 미세구조연구」, 중앙대학교 박사학위논문, p.44~47, 73~77, 91, 1998

16) Vandiver, P. B., "Ancient Glaze", Scientific American, p.80~84, 1990

17) Kingery, W. D. and Vandiver, P. B., Ceramic Masterpieces: Art, Structure, Technology, The Free Press, p.211~217, 1988

18) 오영우 편저, 「세라믹스의 분석과 계산」, 경남대학교 출판부, p.3~35, 84~106, 166~173

0~100으로 표시된다. 여기에서 50을 기준으로 측정값이 높을수록 흰색(white), 낮을수록 검정색(black)에 가깝다는 것을 의미한다. 또한 a^* 와 b^* 값은 채도이며, 수치 표시는 a^* 가 (+)일수록 적색(red), (-)일수록 녹색(green)에 가깝고, b^* 가 (+)일수록 황색(yellow), (-)일수록 청색(blue)에 가깝다는 것을 의미한다. 색도의 평가는 측정결과 값을 기준으로 ΔE^*ab 값(색차)으로 판단할 수 있는데, 0~0.5(전문가도 식별불가), 0.5~1.5(비전문가는 식별불가), 1.5~3.0(비전문가도 식별가능), 3.0~6.0(현저한 색차), 6.0~12.0(극히 현저한 색차), 12.0 이상(다른 계통의 색)으로 나눌 수 있다¹⁹⁾. 소성 시편에 대한 색도 측정값의 분석은 명도(L^*)값에 대한 차이를 알아보고, a^* 와 b^* 값을 이용한 X-Y좌표의 2차원 평면상에 도시하여 소성온도의 변화에 따라 색도 값이 어떠한 경향으로 변화되는지를 알아보았으며, 태토와 유약의 측정값은 Table 1와 같다.

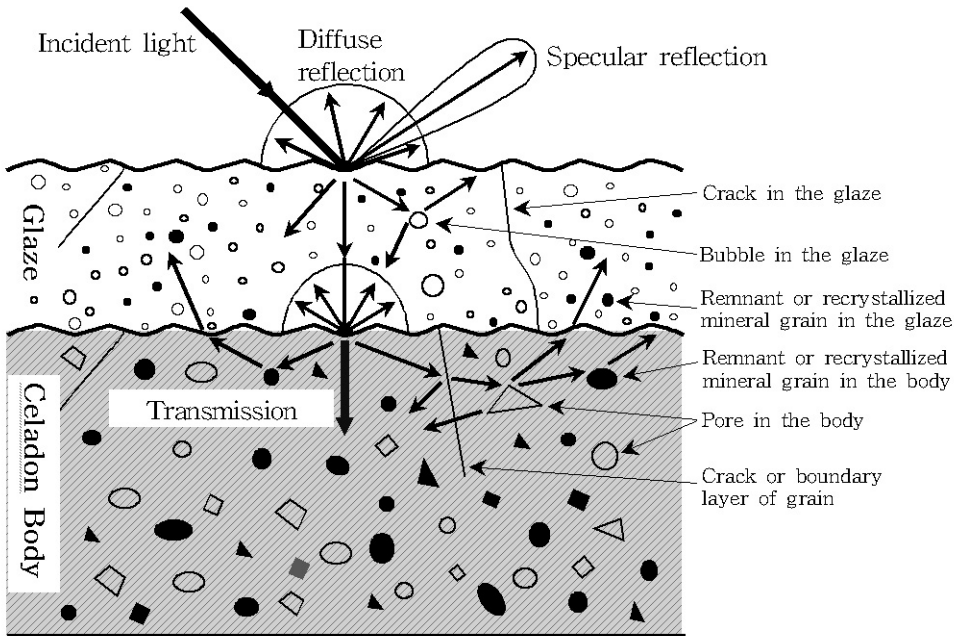


Fig. 3. Diagram of interaction of light with glaze and body in celadon^a

^a : Drawn from the following reference

1. 柳田博明 저, 정헌성, 김종오 공역, 「세라믹스화학」, 반도출판사, 1996, p.81, 247
2. Vandiver, P. B., Ancient Glaze, Scientific American, 1990, p.82
3. Kingery, W. D., Vandiver, P.B., Ceramic Masterpieces : Art, Structure, Technology, The Free Press, 1988, p.215

19) Commission Internationale de l'Éclairage, "Colorimetry -Second Edition-", Publication CIE No.15.2, 1986

Table 1. Chromaticity values of the bodies and glaze of the samples made in studio and fired

Symbol	Fired temperature	Body				temperature				Condition
		L*	a*	b*	ΔE^*_{ab}	L*	a*	b*	ΔE^*_{ab}	
-	Raw material	58.22	10.12	20.02	62.39					Fired the first time before glazing
FF-1	500℃	64.00	10.84	21.54	68.39					
FF-2	600℃	65.20	13.00	24.44	70.83					
FF-3	700℃	65.77	12.67	24.04	71.17					
FF-4	800℃	66.04	12.49	24.00	71.37					
FF-5	870℃	66.67	13.30	24.52	72.27					
FF-6	870℃ (inside)	68.01	14.17	25.22	73.90					
SF-1	870℃	68.64	-0.26	1.58	68.66	76.25	12.00	19.56	31.03	Fired the second time after glazing
SF-2	900℃	68.46	0.21	1.72	68.48	77.51	12.47	18.89	29.92	
SF-3	950℃	65.38	-0.32	1.00	65.39	86.94	0.73	11.00	14.99	
SF-4	1000℃	74.44	-0.09	1.34	74.45	84.77	2.32	9.80	16.26	
SF-5	1050℃	68.06	-0.85	1.76	68.08	83.14	2.95	10.43	18.06	
SF-6	1100℃	67.37	0.16	2.09	67.40	79.92	2.27	10.58	20.90	
SF-7	1150℃	67.57	0.06	1.36	67.58	63.40	-8.81	7.20	36.88	
SF-8	1200℃	67.53	0.11	0.23	67.53	62.10	-10.25	6.09	38.36	
SF-9	1250℃	70.72	-0.30	1.72	70.74	62.15	-11.11	5.81	38.52	
SF-10	1350℃	67.79	0.03	-0.15	67.79	62.90	-9.62	7.27	37.57	
SF-11	1350℃ (inside)	69.39	0.04	0.96	69.40	61.21	-8.96	8.61	39.24	

1) 태토

소성된 초벌과 재벌시편의 태토에 대한 색도 값을 측정한 결과, Fig. 4에서와 같이 초벌시편과 재벌시편 모두 온도의 증가에 따라 명도가 증가하는 양상을 보였으며, 다음과 같은 특징을 가졌다. 첫째, 초벌편과 재벌편은 서로 높은 색차 값을 가지고 잘 분리됨을 알 수 있으며, 초벌편 자체에서도 온도구간별로 상이한 차이를 보인다. 반면 재벌편은 상대적으로 큰 색차를 갖지 않는다. 둘째, 도편의 색상이 소성온도가 상승함에 따라 red-yellow 방향으로 정(+)의 상관관계를 가지고 증가하다가 환원소성을 시작하는 970℃부터 green-blue 방향으로 급격히 선회함을 알 수 있다. 이는 번조환경과 온도가 태토의 색상에 많은 영향을 준다는 것과 원료가 특정 온도까지 급격한 물질 변화를 겪은 후 색상의 변화를 가져오다가 일정 온도에서는 거의 변화하지 않고 유지된다는 의미이다.

2) 유약

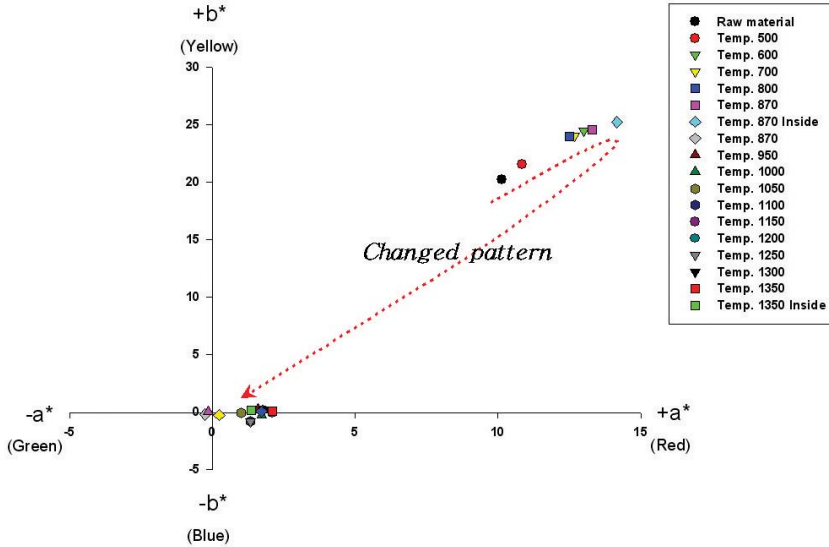


Fig. 4. Chromaticity graph for the bodies of studio samples

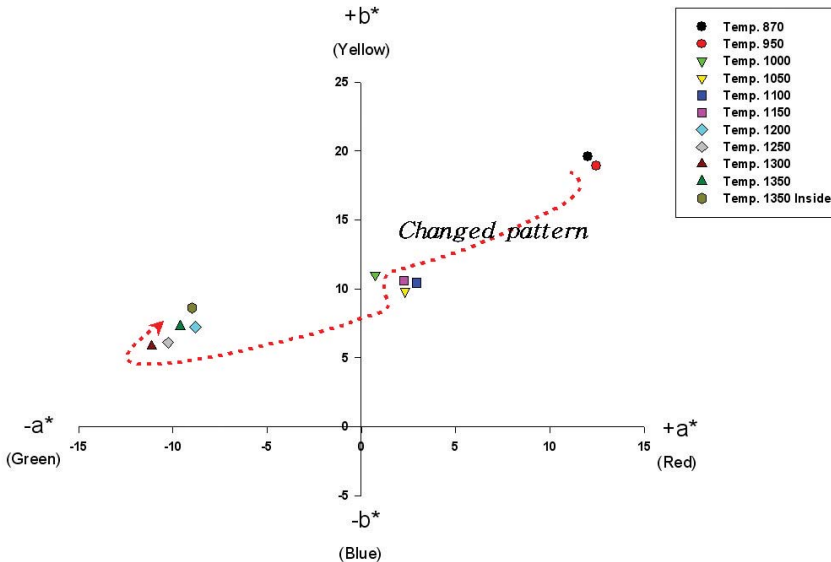


Fig. 5. Chromaticity graph for the glaze of studio samples

Fig. 5는 재벌편의 유약 층에 대한 색도 값을 도시한 그림이다. 여기에서 유약 층의 색도 변화는 높은 온도에서 소성된 시편일수록 green-blue 쪽으로 치우치게 된다. 특히 온도 구간별로 특이하게 세

집단으로 분류되는데 이는 유약 자체의 성분조성과 태토의 색상 때문일 것이며, 온도에 따라 유리질화가 진행되면서 명도가 더 높아져 보다 밝은 색으로 진행되어감을 간접적으로 나타내는 것이다. 즉, 태토와 유약의 성분이 동일하다고 가정할 때, 소성과정에서 유약이 완전 용융되어 흘러내리지 않는 한 상대적으로 높은 온도에서 소성될수록 밝은 색을 형성할 것이며, 청자의 색상이 비색일수록 red-blue 쪽으로 치우치게 될 것이다.

2. 겉보기비중 및 부피비중, 흡수율, 겉보기기공률

Table 2. Apparent density, bulk density, absorption and apparent porosity values of the studio samples

Symbol	Fired temperature	Value	Apparent density	Bulk density	Absorption (%)	Apparent porosity(%)	Condition
-	Raw material	Average	-	-	-	-	Fired the first time before glazing
FF-1	500℃ a	Average	-	-	-	-	
FF-2	600℃	Average	2,49	1,80	15,41	27,72	
FF-3	700℃	Average	2,46	1,75	16,30	28,60	
FF-4	800℃	Average	2,48	1,76	16,39	28,89	
FF-5	870℃	Average	2,47	1,78	15,78	28,05	
FF-6	870℃ (Inside)	Average	2,46	1,75	16,50	28,85	Second firing
SF-1	870℃	Average	2,44	1,74	16,56	28,77	
SF-2	900℃	Average	2,46	1,73	17,16	29,66	
SF-3	950℃	Average	2,53	1,76	17,30	30,45	
SF-4	1000℃	Average	2,56	1,81	16,00	29,03	
SF-5	1050℃	Average	2,51	1,93	12,08	23,29	
SF-6	1100℃	Average	2,38	2,12	5,10	10,84	
SF-7	1150℃	Average	2,31	2,27	0,65	1,48	
SF-8	1200℃	Average	2,32	2,30	0,38	0,88	
SF-9	1250℃	Average	2,31	2,29	0,33	0,76	
SF-10	1350℃	Average	2,27	2,25	0,28	0,64	
SF-11	1350℃(Inside)	Average	2,27	2,24	0,48	1,09	

* Not analyzed because soluble sample

비중은 부피에 대한 상대적 질량을 수치로 표현한 값으로 물질이 지닌 가장 기본적인 물리적 특성 중의 하나이다. 도자기의 비중은 소성 과정에서 원료광물인 점토가 변화되고, 이들 변화에서 흡착수나 결정수, 이온수 등의 탈수반응과 유리질화 되는 과정에서 기공률이 감소되고 치밀화되어 비중이 증가하게 된다²⁰⁾. 즉, 자화 정도와 치밀도, 사용원료의 특성 등에 따라 달라진다는 것이다. 이러한 특징은 고려청자에서도 각 도요지나 시대별 생산기술의 차이와 사용원료의 상이함에 따라 물성이 다르게 나타날 것이며, 이를 이용한 간접적인 산지추정이 가능할 것이다.

이러한 비중은 겉보기비중과 부피비중으로 나누어지며, 겉보기비중은 물질 표면에 존재하는 기공만을 고려하여 측정된 값이고, 부피비중은 표면 및 내부에 존재하는 기공까지를 모두 고려한 측정값이다^{21) 22)}. 또한 부피비중은 흡수율과 기공률에 대해 상대적으로 반비례 관계를 가지고 있으므로 흡수율도 서로 비교하였다.

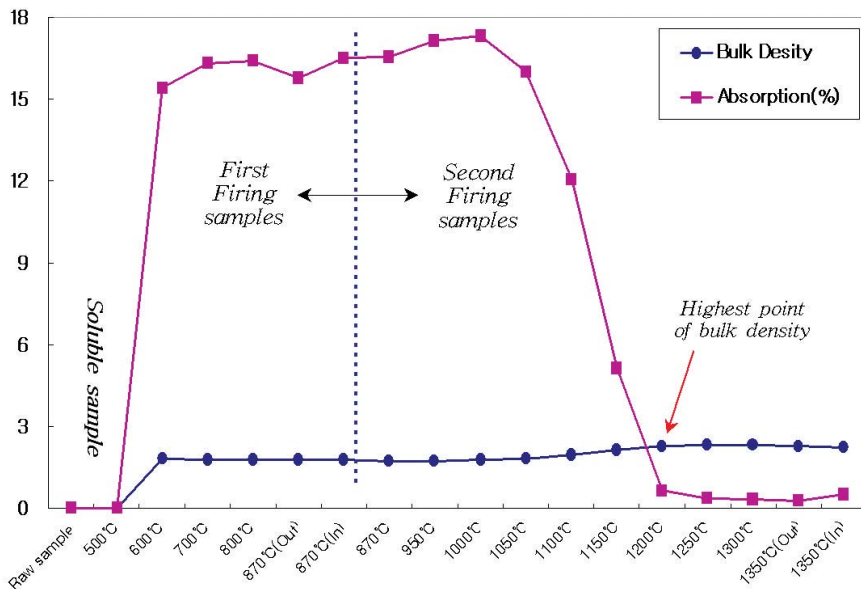


Fig. 6. Diagram of bulk density and absorption the studio samples

소성시편의 온도구간별 변화 형태를 관찰한 결과, Table 2와 Fig. 6에서 볼 수 있듯이 부피비중은 재별 950°C까지 1.73~1.80사이 값을 가지며, 거의 변화를 보이지 않지만 그 이후에 조금씩 증가하여 1200°C에서 최고값(2.30)을 나타내고, 이후 1350°C까지는 서서히 감소한다. 또한 흡수율은 소성이

20) 문중수 · 최태현, 「도자기 공학 1-기초편-」, 두양사, p.183~210, 2003

21) 한국표준협회, 「KS L 4008 -도자기의 흡수율, 부피비중, 겉보기비중 및 겉기공률의 측정방법-」, 「한국산업규격」, 1996

22) 오영우 편저, 「세라믹스의 분석과 계산」, 경남대학교 출판부, p.33~35, 84~106, 166~173

진행되면서 1000℃까지 계속 증가하다가 이후 20배 정도의 급격한 감소를 가져오는 것을 확인할 수 있고, 비중 값이 최고가 되는 1200℃에서부터 거의 변화가 없다가 1300℃가 넘어가면서 다시 약간 증가한다. 이러한 현상으로 알 수 있는 것은 태토의 자화에 따라 유리질화가 진행되어 비중이 증가하다가 1200℃ 부근을 넘어설 경우 과변조로 인하여 내부의 기공이 bloating 된다. 이로 인하여 기공률은 증가하고, 비중은 감소효과를 가져오는 것으로 판단된다.

그러나 청자의 소성에 사용된 원료가 균일하지 않거나 다를 경우, 소성과정에서 광물 입자들 주위에 기공들이 다량 존재하거나 치밀화 되지 못하는 현상이 발생할 수 있으며, 이는 곧 흡수율이나 비중의 변화 양상에 영향을 줄 것이다.

3. 미세구조관찰

도자기의 주원료로는 가소성 원료인 점토²³⁾를 비롯하여, 내화성과 점성을 조절하는 규석과 용제의 역할을 하는 장석 등 수많은 종류의 무기질 천연 원료가 사용되며²⁴⁾²⁵⁾, 이들 중 대부분을 차지하는 것이 바로 석영(quartz)과 장석류(feldspar, microcline, orthoclase, albite), 운모류(biotite, muscovite) 등의 점토광물이다. 이러한 점토광물이 도자기의 태토로 쓰이면 소성 과정에서 다양한 물리·화학적 반응을 일으키게 되며²⁶⁾, 새로운 광물의 생성이나 소멸, 전이 등이 일어나고, 이는 결정 구조의 변화나 내부에너지의 변화, 미세구조의 변화를 가져오게 된다.

이러한 소성에서 태토의 자화과정을 Fig. 7과 같이 간단히 도시할 수 있으며, 이 과정 중에는 내부 수분의 이탈과 다양한 광물의 성분 변화 등이 일어나 도자기의 미세구조를 형성시키며, 1차적으로 자화를 통해 결정된 미세구조는 다시 냉각되는 과정에서 영향을 주게 되어 2차적인 미세구조가 결정된다.

특히 청자와 같이 1000℃이상에서 고온 소성된 도자기의 경우 자화(磁化, vitrification)의 과정을 통해 치밀화(緻密化, densification)되며, 이때 태토나 유약을 구성하는 원료 물질 간의 물리·화학적 변화가 크게 일어나 기존물질과는 물성이 다른 특징을 갖게 된다²⁷⁾. 그러므로 광학현미경을 이용한 도자기의 단면 관찰은 소성 과정에서 형성된 후 태토와 유약에 존재하는 기공이나 기포, 구성광물의 결정크기와 분포양상을 확인하고, 생성된 결정 및 현상 등을 관찰하거나 소성온도의 간접적인 추

23) 素木洋一, セラミックスの技術史技, 報堂出版株式會社, p.8-10, 114~119, 1983

24) 피재성, 「도자기 원료의 특성 연구」, 명지대학교 석사학위논문, p.1~13, 2003

25) 원복자, 「도자기 용어에 관한 연구 -원료를 중심으로-」, 단국대학교 석사학위논문, p.3~37, 1991

26) Budnikov, P. P., "translation by Scripta Technica", The Technology of Ceramics and Refractories, The M.I.T. Press, p.505, 1964

27) 이영은, 「조선분청의 성분 및 미세구조연구」, 중앙대학교 박사학위논문, p.44~47, 73~77, 91, 1998

정까지 가능하게 하는 분석 방법이다.

소성시편의 온도구간별 태토 및 유약에 대한 미세구조의 변화도를 광학현미경으로 관찰한 결과, Photo 2에서와 같이 600℃에서 태토 내 점토광물의 변질이 있을 수 있으나 확인할 수 없었으며, 단지 태토의 색상변화만 확인할 수 있었다. 더욱이 870℃에서 소성된 시편에서는 메타카올리나이트(metakaolinite, $Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$)가 분해되고, 산화물들이 거의 비정질(amorphous)이 되는 온도구간(800~900℃)²⁸⁾임에도 불구하고 광학현미경상으로는 그 변화를 관찰할 수 없었다. 이는 저온에서 물질 내부에 일어나는 화학적 변화가 매우 미세하여 광학현미경으로 관찰되지 않기 때문으로 판단되며, 소성실험에 쓰인 원료에 Al_2O_3 와 SiO_2 가 높고, CaO 등 용제 성분이 적어서 물질내부의 변화가 늦게 일어나기 때문일 수도 있다. 또한 전통 도자기처럼 오랜 시간 소성시키지 않았기 때문에 미처 물리·화학적 반응이 일어나지 않았기 때문일 수도 있다.

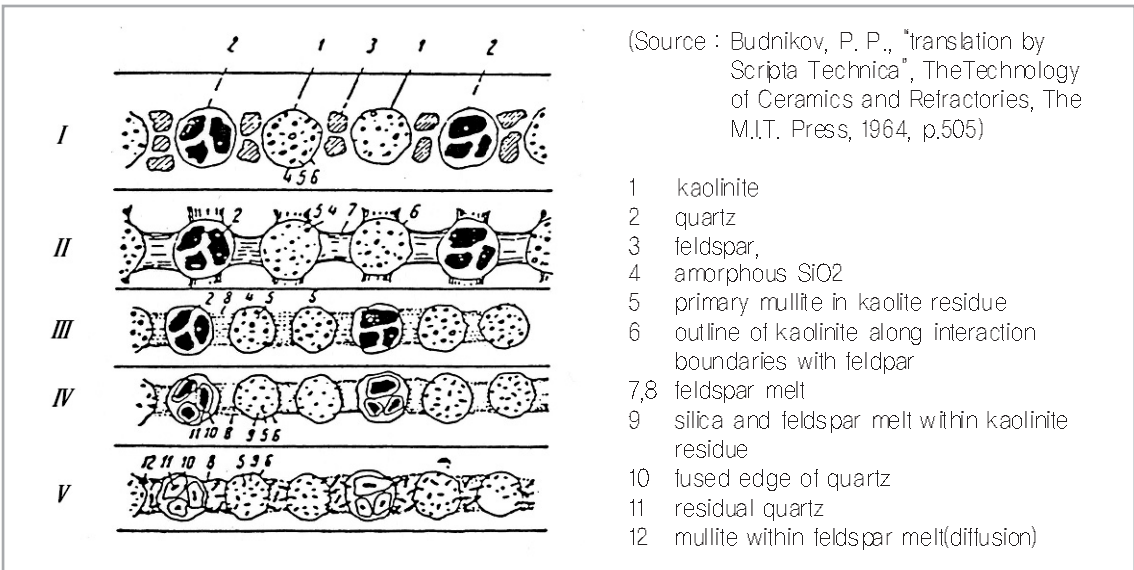


Fig. 7. Vitrification and densification process of triaxial composition body

Photo 3은 초벌소성시편에 유약을 시유한 후 온도구간별로 재벌소성한 시편의 광학현미경관찰 결과이다. 재벌소성시편은 초벌소성시편과 달리 온도가 상승함에 따라 태토와 유약에서 동시에 유리질화가 진행되는 것을 알 수 있으며, 초기에 태토와 유약에 존재하는 입자들이 점차 녹아 사라지는 것을 관찰할 수 있다. 특히 유약층의 변화는 기존에 연구에서 알려진 것과 같이 유리질화된 후에도 온도가 상승함에 따라 작은 기포가 점차 사라지고 큰 기포가 형성되면서 유약층이 투명해지는 것을 알 수 있

28) 고정신, 한국 전통도자기 문화의 과학기술적 연구, 한국과학사학회지, 제14권, 1호, p.34, 1992

었다. 즉, 높은 온도에서 소성될수록 유약층 내부에 점도(viscosity)가 낮아져 기포가 서로 합쳐지거나 제거되고, 투명해지는 것을 볼 수 있다. 그러나 변조온도가 일정 수준을 넘을 경우 태토내 잔존 기공이나 유약내 기포가 유동성이 증가된 상태에서 이동하면서 부풀어 오르게 될 것이다.

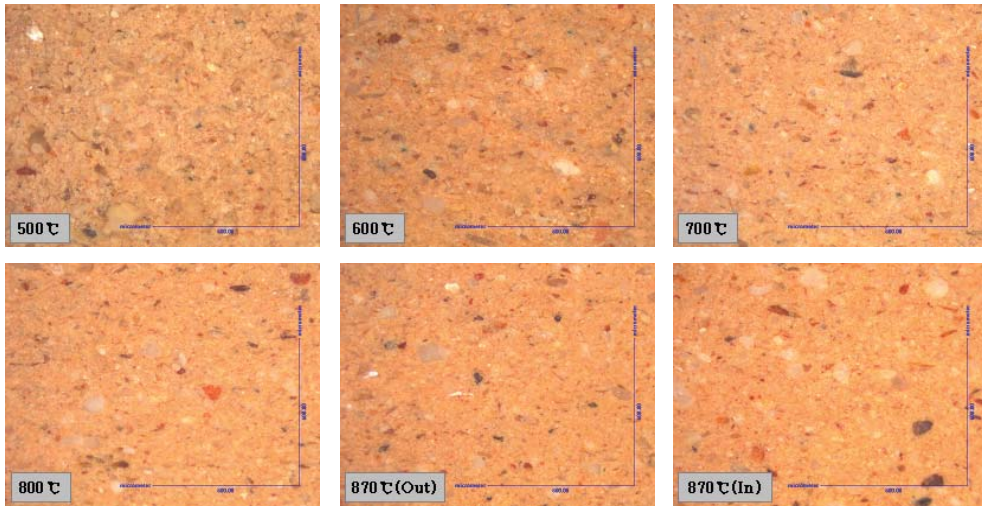


Photo 2. Microstructure of the bodies in the first firing samples by optical microscope(6 samples)

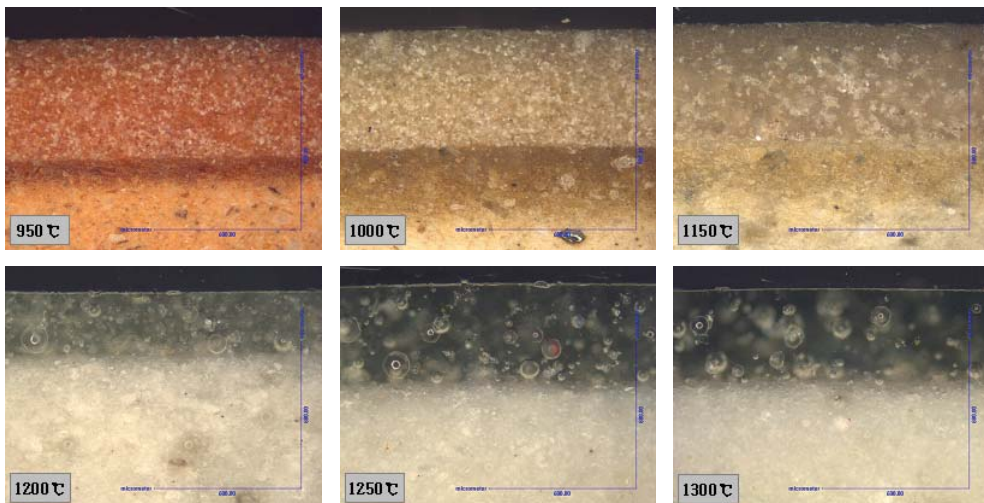


Photo 3. Optical micrographs of the studio samples fired after glazing at different temperatures

V. 맺음말

공방소성 실험을 통해 온도구간별 청자의 태토와 유약에 대한 물리적 특성을 연구한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

첫째, 태토의 색도측정 결과, 재벌 소성편에 비해 초벌 소성편에서 온도구간별로 높은 색차를 보이며, 소성온도가 상승함에 따라 red-yellow 방향으로 정(+)의 상관관계로 증가하고, 재벌편은 환원소성을 시작하는 970℃부터 green-blue 방향으로 급격히 선회하였다. 또한 유약에서는 높은 온도에서 소성된 시편일수록 green-blue쪽으로 치우치게 된다.

둘째, 소성시편의 부피비중은 재벌 950℃까지 1.73~1.80사이 값을 가지며, 1200℃에서 최고값(2.30)을 나타내고, 이후 1350℃까지는 서서히 감소한다. 또한 흡수율은 소성이 진행되면서 1000℃까지 계속 증가하다가 이후 20배 정도의 급격한 감소와 1300℃ 이상에서 다시 약간 증가한다.

셋째, 초벌소성편의 미세구조 관찰에서는 장식의 변질이나 산화물의 비정질 상태에서 오는 광물학적 변화를 육안으로 관찰할 수 없었다. 다만 재벌 소성한 시편에서는 온도가 상승함에 따라 태토와 유약에서 동시에 유리질화가 진행되는 것을 관찰할 수 있었으며, 태토와 유약사이의 기공과 기포의 변화 양상 등이 잘 관찰 되었다.

결론적으로 이러한 공방소성을 통해 도자기의 원료가 온도 구간별로 어떠한 물리적 변화를 거치는지 알 수 있었으며, 재료와 혼합비를 조절하여 다양한 조건에서 추가 실험을 진행한다면 보다 과학적이고 체계적인 연구 결과를 얻을 수 있을 것이다.

참고문헌

1. 金元龍, 「韓國 古美術의 理解」, 서울大學校出版部, p.204, 1982
2. 강경숙, 한국 도자기, 일지사, p.1~2, 1989
3. Kingery, W. D., Bowen, H. K. and Uhlmann, D. R., Introduction to Ceramic, Wiley, 1976
4. 都珍英, 「高麗靑磁의 微細構造에 관한 研究」, 中央大學校 碩士學位論文, p.1, 1993
5. P. P. Budnikov, translation by Scripta Technica, The Technology of Ceramics and Refractories, The M.I.T Press, p.505, 1964

6. 국립공업표준시험소, 고려청자 제조 시험, 연구보고, 제 23집, p.67~75, 1973
7. 皮在盛, 도자기 원료의 특성연구, 명지대학교 석사학위논문, 2003
8. 김정진, 강진 고려청자의 특성 분석 및 재현에 관한 연구, 호남대학교 석사학위논문, 2004
9. 경기도 이천의 안정환 도예공방에서 가스가마를 이용하여 소성실험을 실시하였음.
10. 한국표준협회, "KS A 0089 -백색도 표시 방법-", 「한국산업규격」, 2005
11. Commission Internationale de l' Eclairage, "Colorimetry -Second Edition-", Publication CIE No.15.2, 1986
12. 한국표준협회, "KS A 0067 - L* a* b* 표색계 및 L*u*v* 표색계에 의한 물체색의 표시방법", 「한국산업규격」, 1996
13. 한국표준협회, "KS L 4008 -도자기의 흡수율, 부피비중, 겉보기비중 및 겉기공률의 측정방법-", 「한국산업규격」, 1996
14. 柳田博明, 정현생 · 김종오 공역, 「세라믹스화학」, 반도출판사, p.81~82, 114~119, 246~248, 1996
15. 이영은, 「조선분청의 성분 및 미세구조연구」, 중앙대학교 박사학위논문, p.44~47, 73~77, 91, 1998
16. Vandiver, P. B., "Ancient Glaze", Scientific American, p.80~84, 1990
17. Kingery, W. D. and Vandiver, P. B., Ceramic Masterpieces:Art, Structure, Technology, The Free Press, p.211~217, 1988
18. 오영우 편저, 「세라믹스의 분석과 계산」, 경남대학교 출판부, p.3~35, 84~106, 166~173
19. Commission Internationale de l' Eclairage, "Colorimetry -Second Edition-", Publication CIE No.15.2, 1986
20. 문종수 · 최태현, 「도자기 공학 1 -기초편-」, 두양사, p.183~210, 2003
21. 한국표준협회, "KS L 4008 -도자기의 흡수율, 부피비중, 겉보기비중 및 겉기공률의 측정방법-", 「한국산업규격」, 1996
22. 오영우 편저, 「세라믹스의 분석과 계산」, 경남대학교 출판부, p.33~35, 84~106, 166~173
23. 素木洋一, セラミックスの技術史技, 報堂出版株式會社, p.8~10, 114~119, 1983
24. 피재성, 「도자기 원료의 특성 연구」, 명지대학교 석사학위논문, p.1~13, 2003

25. 원복자, 「도자기 용어에 관한 연구 -원료를 중심으로-」, 단국대학교 석사학위논문, p.3~37, 1991
26. Budnikov, P. P., "translation by Scripta Technica", The Technology of Ceramics and Refractories, The M.I.T. Press, p.505, 1964
27. 이영은, 「조선분청의 성분 및 미세구조연구」, 중앙대학교 박사학위논문, p.44~47, 73~77, 91, 1998
28. 고경신, 한국 전통 도자기 문화의 과학기술적 연구, 한국과학사학회지, 제14권, 1호, p.34, 1992