

The influence of Co and Fe on the color change of diopside crystals

Soo Min Byeon and Byung-Ha Lee[†]

Dept. of Materials Science & Engineering, Myong-Ji University, Yongin 449-728, Korea

(Received August 21, 2014)

(Revised August 29, 2014)

(Accepted September 19, 2014)

Abstract This study was conducted to study the influence of Co and Fe on the color of glaze and diopside crystals in the diopside crystal glaze empirically produced and used by ceramic artists, in case of adding Co_3O_4 and Fe_2O_3 . As a result, the color of glaze was blue when Co_3O_4 was added to the diopside crystal glaze and the diopside crystals appeared pastel violet with Co included. When Fe_2O_3 was added to the diopside crystal glaze, the color of glaze appeared brown and the color of diopside crystals was goldenrod with Fe included. The crystals precipitated on the surface of diopside consisted of diopside crystals and diopside precursors. With longer retention time, the amount of diopside precursors decreased and the amount of diopside crystals increased. Also, Co was more easily included by the diopside crystals than Fe was and crystallizability of diopside was improved in case of including Co. Including Fe lowered peak intensity of properties and partially dissolved the diopside crystals.

Key words Diopside, Raman, Diopside precursor, SiO_4 , Fe_2O_3 , Co_3O_4

Co, Fe가 diopside 결정색 변화에 미치는 영향

변수민, 이병하[†]

명지대학교 공과대학 신소재공학과, 용인, 449-728

(2014년 8월 21일 접수)

(2014년 8월 29일 심사완료)

(2014년 9월 19일 게재확정)

요약 본 연구에서는 도예가들이 경험적으로 제조하여 사용하는 diopside 결정유약에 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 를 첨가하였을 경우 Co와 Fe이 유약과 diopside 결정의 발색에 미치는 영향을 연구하고자 하였다. 그 결과 diopside 결정유약에 Co_3O_4 를 넣을 경우 유약의 색상은 blue색을 띠며 결정의 색상은 diopside 결정에 Co가 고용되면서 pastel violet색을 띠었으며 diopside 결정유약에 Fe_2O_3 를 넣을 경우 유약의 색상은 brown색을, 결정의 색상은 diopside 결정에 Fe가 고용되면서 goldenrod색을 띠었다. 그리고 diopside 결정유약 표면에 석출된 결정은 diopside 결정과 diopside precursor로 이루어져 있었다. 또한 유지 시간이 길어짐에 따라 diopside precursor의 양은 줄고 diopside 결정량은 많아졌다. Diopside 결정에는 Fe보다는 Co가 더 잘 고용되었으며, Co가 고용될 경우 diopside 결정성은 더 좋아져 특성 peak의 강도가 높아졌다. 그리고 Fe이 고용되면 특성 peak의 강도는 낮아지면서 diopside 결정은 부분적으로 와해됨을 알 수 있었다.

1. 서론

결정유약은 결정의 크기에 따라 크게 2가지로 나눌 수 있다. 첫번째는 유약내에 생성되는 결정의 크기가 매우 작아 육안으로 확인할 수 없는 고령토질 매트유약이나 아벤트린유약이며, 두번째는 생성되는 결정의 크기가 커서 육안으로 쉽게 확인되는 아연결정유약, diopside 결정

유약, 티탄결정유약 등으로 구분된다[1]. 또한 결정의 크기는 형성된 결정핵의 수, 결정의 성장속도, 용액의 점도 등에 영향을 받는다[2]. 재를 사용한 동양권 유약에서는 석회를 주성분으로 하여 이미 오래전부터 diopside 결정 유약이 제조되어 왔고, 유약원료로 사용하는 재에 CaO와 MgO 성분이 함유되어 있는 것에 기인한다[3]. 이른바 메밀유라 불리는 흑갈색바탕에 노랑이나 올리브그린의 결정이 석출된 것도 diopside 유약 중의 하나이다[4]. 유약에 발색 산화물을 첨가하면, 대체로 CoO는 대부분 blue색을, FeO는 yellow나 brown색을, NiO는 green과 blue색을, CuO는 green색을, MnO는 brown 및 red wine

[†]Corresponding author

Tel: +82-31-330-6461

Fax: +82-31-330-6469

E-mail: creditqus@naver.com

색을 띠며, 이러한 색은 대부분 산화소성 분위기에서 발색된다[5]. 최근 이와 같은 천이금속 산화물의 발색효과를 이용하여 많은 도예가들이 diopside 결정유약에 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 를 넣어 밤하늘의 은하수를 연상케하는 작품을 만들고 있다[6]. 본 연구에서는 도예가들이 경험적으로 제조하여 사용하는 diopside 결정유약에서 Co와 Fe의 고용이 유약과 diopside 결정의 발색에 미치는 영향을 연구하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. Diopside 결정유약 제조

Diopside 결정에서 Co와 Fe의 고용에 따른 색변화를 관찰하기 위하여 Table 1과 같은 원료를 사용하여 Table 2의 조합비에 맞추어 유약을 제조하였다.

Table 2의 조성으로 제조한 유약을 초벌구이한 백자시 험편에 시유하여 건조한 다음 전기로에 넣어 1280°C 에

서 2시간 유지한 후 1100°C 까지 냉각하여 산화소성 분위기에서 3시간 유지하였다.

2.2. Diopside 결정유약에 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 첨가

유약실험 결과 7번 유약(부여장석 60% 금산석회석 20% Magnesite 20%)이 diopside 표면에 고르게 생성되었다. 본 연구에서는 7번 유약 조성에 Co와 Fe를 고용시키기 위하여 Table 3과 같이 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 를 첨가 실험하였다. 이때 소성조건은 전과 동일하게 유지하였다.

2.3. 분석

유약내에 생성된 결정상을 확인하기 위하여 X선 회절 분석을(XRD-7000, shimadzu, japan), 원자간 결합관계와 고용관계를 알아보기 위해 Raman Spectroscopy (Lambda solutions, Inc, USA)를 이용하였다. 또한 유약 및 결정의 색상은 UV-vis spectrophotometer(2401-PC, shimadzu, Japan)를 이용하여 측정하였다. 색상분석은

Table 1
Chemical composition of raw materials

	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2
Albite	77.867	12.551	0.021	0.001	0.425	5.196	3.705	.
Limestone	5.872	1.180	0.353	0.025	48.413	0.345	0.169	2.098
Magnesite				47.6				

Table 2
Glaze composition

Sample No.	Albite	Limestone	Magnesite	Sample No.	Albite	Limestone	Magnesite
1	80	10	10	9	40	40	20
2	70	20	10	10	60	10	30
3	60	30	10	11	50	20	30
4	50	40	10	12	40	30	30
5	40	50	10	13	50	10	40
6	70	10	20	14	40	20	40
7	60	20	20	15	40	10	50
8	50	30	20				

Table 3
Added amount of Co_3O_4 and Fe_2O_3 in the diopside crystal glaze

Sample name	Albite	Limestone	Magnesite	Additive		Sample name	Albite	Limestone	Magnesite	Additive	
				Fe_2O_3	Co_3O_4					Fe_2O_3	Co_3O_4
S_0				0	0	C_2					2
F_1				1		C_3					3
F_2				2		C_4					4
F_3	60	20	20	3		C_5	60	20	20		5
F_4				4		F_1C_2				1	
F_5				5		F_2C_2				2	2
C_1					1	F_3C_2				3	

Munsell의 색표시인 Hue(H), Value(V), Chroma(C)을 이용하여 나타내었고, Applied color system Inc. CIE coordinates to Muncell notation conversion을 이용하여 표시하였다. 생성된 결정의 형상과 크기는 광학현미경(X200, LV100, Nikon, Japan) 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Diopside의 결정유약

장석, 석회석, Magnesite계 유약에서 diopside 결정이 생성되는 조성범위를 결정하기 위하여 Table 2의 15가지 조성유약을 1000°C로 초벌한 백자시험편에 시유하고 1280°C에서 2시간 유지한 후 1100°C로 냉각하여 3시간 유지 후 로냉 시켰다. 그 결과 유약에 diopside 결정이 생성된 조성은 장석이 60% 이하, 석회석이 20~40%, Magnesite가 10~20%(Fig. 1의 3, 4, 5, 7, 8, 9번)으로 나타났다. 이는 투명유약 조성(Fig. 1의 1, 2번) 비하여 SiO₂, Al₂O₃의 양이 적고, 이온반경이 작은, 알카리토류의 양이 많은 유약조성에서 육안으로 볼 수 있는 결정을 얻을 수 있다는 기존의 연구와 잘 일치하는 결과이다[7]. Fig. 1의 6가지 조성에서 7번 조성유약에서 diopside 결정이 가장 고르게 석출되었다. 결정의 크기는 3, 4, 5, 8, 9번 유약이 7번 유약보다 컸지만 유면이 고르지 않았으며 또한 한쪽으로 치우쳐 결정이 석출되었다. 본 연구



Fig. 1. Photos of test samples fired.

에서는 유면이 매끄럽고 고르게 결정이 석출된 7번 조성의 유약을 선택하여 Co₃O₄와 Fe₂O₃를 첨가하였을 경우 유약과 결정의 색상 및 diopside 결정형성에 미치는 영향을 연구하였다.

3.2. Diopside의 결정유약에 Co₃O₄와 Fe₂O₃의 색 발현

7번 조성유약에 Co₃O₄와 Fe₂O₃의 첨가량을 결정하기 위하여 Table 3과 같이 실험하였다. Co₃O₄를 1 wt% 첨가한 유약의 색상은 sky blue이고 결정의 색상은 light pink를 나타내었다. 2 wt% 첨가 유약의 색상은 blue이고 결정의 색상은 pastel violet으로 나타났다. 3 wt% 첨가한 유약의 색상은 ultramarine의 진한 blue 색상이었고 결정의 색상은 gray pink였다. 4 wt%, 5 wt% 첨가시 유약의 색상은 prussian blue의 어두운 청색이었고 결정의 색상은 gray pink이다. 즉, diopside 결정유약에 Co₃O₄가 첨가됨에 따라 유약의 색상은 푸른색에서 검푸른색으로 변화하였다. 그러나 유약내에 생성된 diopside 결정의 색상은 pink색에서 gray pink색으로 변화하였다. 많은 도예가들이 구현하기 원하는 색상은 탁하지 않은 밝은 pastel violet 색상(L*62.64, a*20.32, b*-18.99)으로, Co₃O₄를 2 wt% 첨가한 diopside 결정에서 나타났다(Fig. 2의 C₂ 참조).

Fe₂O₃ 첨가실험은 1 wt%에서 5 wt%까지 실시하였다. 1 wt% 첨가하였을 때 유약과 결정이 모두 ivory색을 띠었으며, 2 wt%에서는 ivory색의 유약에 dark yellow색 결정이 만들어졌다. 또한, 3 wt% 첨가시 brown색 유약에 goldenrod색의 결정이 석출되었고, 4 wt%, 5 wt% 첨가한 시편에서는 reddish brown색 유약에 light brown색 결정이 석출되었다. Fe₂O₃의 첨가량이 증가할수록 유약과 결정의 색이 순차적으로 진해지는 것을 알 수 있었다. 본 연구에서 얻고자 한 goldenrod색의(L*68.24, a*2.06, b*38.65) 결정은 Fe₂O₃를 3 wt% 첨가에서 발현되었다(Fig. 2 F₃ 참조). Co₃O₄와 Fe₂O₃을 각각 첨가하여 발현한 색을 기반으로, Co₃O₄와 Fe₂O₃을 동시에 첨가하였을 때 나타나는 유약과 결정의 색상을 관찰하였다. Co₃O₄의 첨가량을 2 wt%로 고정된 후 Fe₂O₃를 1 wt%~3 wt%까지 변화시켜 보았다. 그 결과 유약의 색상은 Fe₂O₃의 첨가량에 관계없이 blue색을 나타내었으며, 결정의 색상은 Fe₂O₃를 1 wt% 첨가된 경우는 dull cosmos purple(L*67.97, a*12.98, b*-4.55)이고 2 wt% 첨가 시는 jaune brilliant, 3 wt% 첨가 시는 pale camel색(L*58.70, a*4.60, b*15.15)으로 결정의 색상만 변화하였다(Fig. 2 F₁C₂, F₃C₂ 참조). 이러한 결과로 부터, 유약의 색상은 유약 내에 분포되어있는 Co₃O₄의 푸른색 때문에 Fe₂O₃의 첨가가 색상변화를 일으키지 않는 것을 알 수 있었다. 그러나 diopside 결정의 경우는, Co에 의한

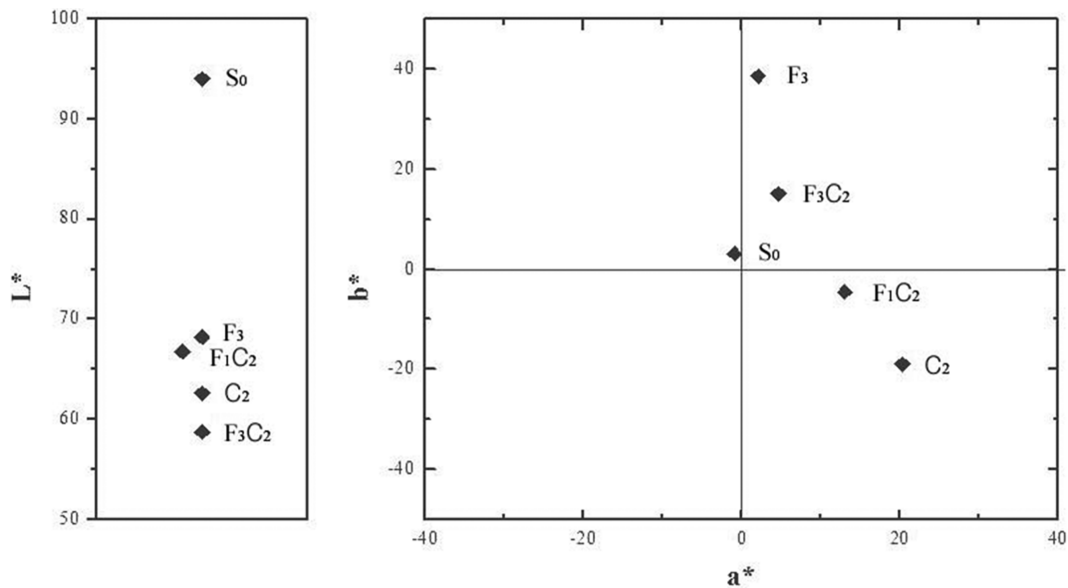


Fig. 2. Result of U.V. analysis of crystal phase within a test sample. S_0 : No. 7 glaze, F_3 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 3 wt%, C_2 : No. 7 glaze + Co_3O_4 2 wt%, F_1C_2 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 1 wt% + Co_3O_4 2 wt%, F_3C_2 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 3 wt% + Co_3O_4 2 wt%.

pink색에 Fe에 의한 yellow색이 첨가되면서 pale camel 색으로 변화하여 전체적인 결정의 색상은 첨가된 Fe_2O_3 에 의해 더 큰 영향을 받았음을 알 수 있다.

Fe_2O_3 나 Co_3O_4 가 첨가됨에 따라 유약과 Diopside 결정색상이 서로 다르게 나타나고 있으며, 이러한 색 차이를 일으키는 원인을 알아보기 위하여 시험편의 결정부분 유약부분을 Raman 분석하여 그 결과를 Fig. 3과 Fig. 9에 나타내었다.

7번 유약에서 diopside 결정부분만을 Raman 분석한

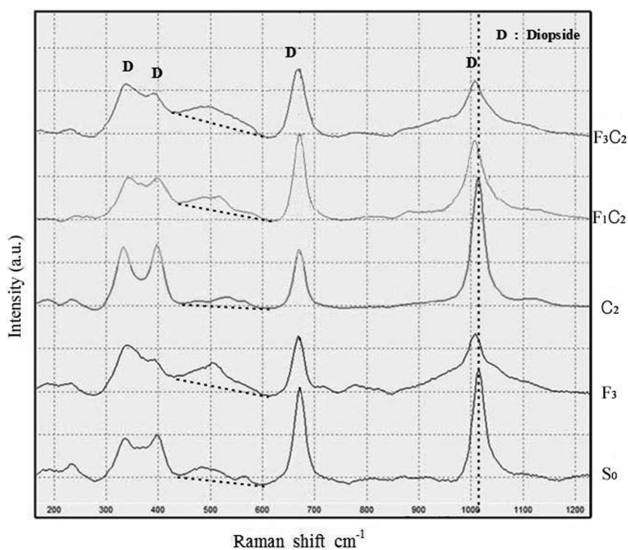


Fig. 3. Result of Raman analysis of crystal phase. S_0 : No. 7 glaze, F_3 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 3 wt%, C_2 : No. 7 glaze + Co_3O_4 2 wt%, F_1C_2 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 1 wt% + Co_3O_4 2 wt%, F_3C_2 : No. 7 glaze + Fe_2O_3 3 wt% + Co_3O_4 2 wt%.

결과 Fig. 3에서와 같이 diopside 결정의 특성 peak만 존재하였다(S_0). 즉, 1010 cm^{-1} 에서 Si-O stretching에 의한 peak이, 660 cm^{-1} 에서 Si-O-Si stretching에 의한 특성 peak이, 500 cm^{-1} 대에서 O-Si-O deformation에 의한 특성 peak이 존재하였고 $300\sim 400\text{ cm}^{-1}$ 에서 SiO_4 tetrahedra의 진동에 의한 특성 peak이 존재하였다[8]. 그러나 500 cm^{-1} 내의 peak은 broad 한 것으로 보아 비정질 형태에 의한 peak임을 알 수 있다[9].

7번 유약에 Fe_2O_3 를 3 wt% 넣은 경우(F_3) diopside에 Fe가 고용되면서 원자간의 결합이 약해져 모든 peak이 왼쪽으로 shift 되었다. 특히 diopside에 Fe가 고용되어 원자간의 결합이 약해지면서 일부의 결정이 와해되고 이로 인하여 비정질량이 증가하여 500 cm^{-1} 대의 broad한 peak의 area가 증가되었다. 그것으로 인하여 400 cm^{-1} 대의 peak와 1000 cm^{-1} 대의 peak의 intensity가 감소하였다. 즉, diopside 결정내에 Fe이 고용되면서 SiO_4 tetrahedra의 진동에 의한 특성운동 mode가 장애를 받아 두 peak의 강도가 낮아졌다. 이와 같이 diopside 결정에 Fe가 고용되면서 결정의 색상은 goldenrod색을 띠게 된 것으로 판단된다.

7번 유약에 Co_3O_4 를 2 wt% 넣은 경우(C_2), Raman 분석 결과 peak의 위치는 7번 유약 분석결과(Fig. 3의 S_0)와 거의 같게 나타났고 강도는 더 sharp하게 나타나 diopside 결정에 Co가 고용되면 결정성은 더 좋아짐을 알 수 있다. 또한 500 cm^{-1} 대에서 나타나는 비정질의 양도 거의 같게 나타났다. 특히 diopside 결정에 Co가 고용되면서 SiO_4 사면체구조가 더 규칙적으로 되면서 운동 mode가 적어져 400 cm^{-1} 대의 peak와 1000 cm^{-1} 대

의 peak이 더 sharp해 졌다. 이러한 결과로부터 diopside 결정에는 Fe보다 Co가 더 잘 고용됨을 알 수 있다. 이와 같이 diopside 결정의 색상은 Co가 고용되면서 diopside 결정의 색상은 pink색으로 변화하였다. 한편, diopside 결정유약에 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 를 함께 넣었을 경우의 고용관계를 알아보기 위하여 diopside 유약에 Co_3O_4 2 wt% Fe_2O_3 1 wt% 및 Co_3O_4 2 wt% Fe_2O_3 3 wt%를 첨가하여 Raman 분석하였다. 그 결과(Fig. 3의 F_1C_2 , F_3C_2) Fe의 양이 증가 할수록 모든 peak가 왼쪽으로 shift 되면서 500 cm^{-1} 대의 비정질량도 증가하고 400 cm^{-1} 의 특성 peak와 1000 cm^{-1} 대의 특성 peak은 감소하였다. 이것으로 7번 유약에 Co_3O_4 와 Fe_2O_3 를 동시에 첨가하였을 경우 diopside에 Co와 Fe가 함께 고용되면서 diopside 결정구조는 Fe의 고용량의 증가에 따라 더 와해 되면서 비정질량도 증가함을 알 수 있다. 이와 같이 diopside 결정에 Co와 Fe가 함께 고용되면서 결정의 색상도 dull cosmos purple색과 pale camel색을 띠었다.

Diopside 결정유약에서 생성된 결정을 확인하기 위하여 XRD 분석을 하였다. 이때 peak 위치의 정확성을 위하여 CaF_2 를 10 wt% 혼합하여 분석하였다. 이 경우 CaF_2 의 (220)면을 기준으로 보정해 주었다. Fig. 4에서 Fe_2O_3 , Co_3O_4 의 첨가와 관계없이 모든 7번 유약에서 Diopside peak와 Quartz peak이 공존한 것으로 나타났다. 특히, XRD의 Quartz peak은 유약내에 존재하는 Quartz로서 Fig. 9의 Raman 분석한 결과와 잘 일치함을 알 수 있다.

Diopside 결정유약의 경우 Fig. 5에서와 같이 생성된 diopside 결정에서 결정중심의 색상은 더 짙게 나타났다. 이와 같은 현상이 나타나는 이유를 알아보기 위하여 생성된 diopside 결정의 중심과 그 주위를 Raman 분석하였다. 그 결과 Fig. 6에서와 같이 결정중심이나 그 주위는 같은 diopside 결정으로 이루어져 있었다. 그러나 이

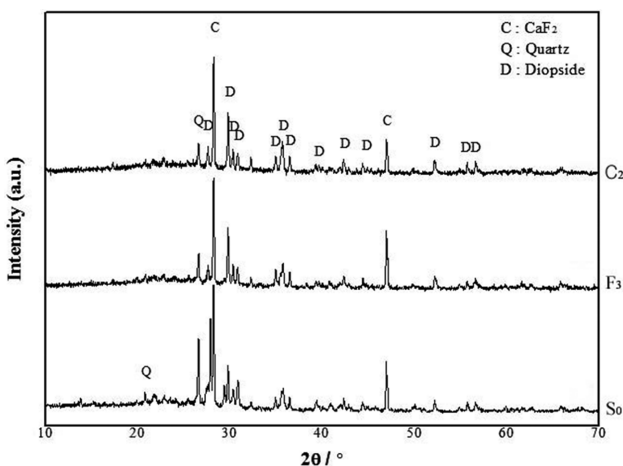


Fig. 4. XRD patterns of glaze. S₀: No. 7 glaze, F₃: No. 7 glaze + Fe_2O_3 3 wt%, C₂: No. 7 glaze + Co_3O_4 2 wt%.

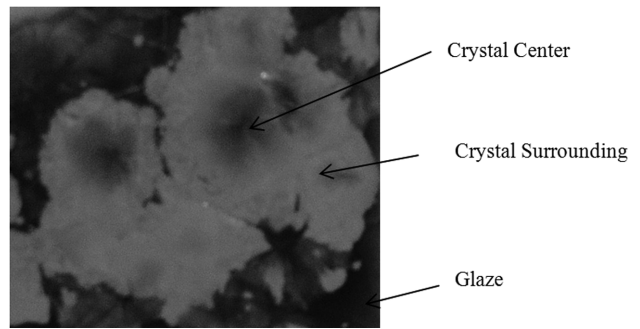


Fig. 5. Diopside crystal glaze.

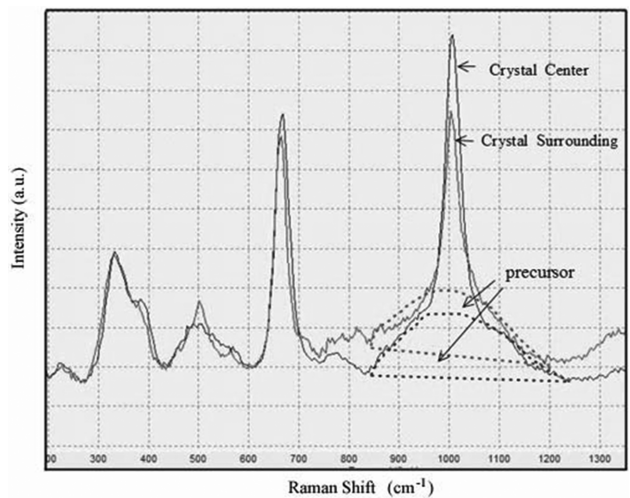


Fig. 6. Raman spectra of glaze from different positions. Crystal Center is for the center position and Crystal Surrounding is for the peripheral position of the crystal.

들 결정에는 diopside 결정과 비정질이 함께 존재하였다. 이 경우 존재하는 비정질의 위치가 diopside 결정의 위치와 같아 이 비정질은 diopside precursor임을 알 수 있다. 결정의 중심과 그 주위는 같은 diopside의 결정으로 이루어져있는데 색상차이가 나타나는 이유를 알아보기 위하여 결정중심과 주위 결정으로부터 나오는 특성 peak 반가폭을 비교하였다. 특성 peak는 1000 cm^{-1} 대에서 나타났으며 peak의 반가폭은 측정위치에 관계없이 비슷하게 측정되었다. 특성 peak의 반가폭이 비슷한 결과는 결정 중심과 주위는 동일한 결정이고 결정 size만의 변화가 있음을 나타낸다.

결정의 중심과 주변을 관찰한 광학사진을 Fig. 7에 나타내었다. 결정의 중심은 굵은 나무뿌리와 같이 큰 결정으로 이루어져 있고, 그 주위는 가는 나무뿌리와 같은 작은 결정으로 이루어져 있어 결정의 중심과 그 주위는 결정크기가 다를 수 있다.

Fig. 6의 Raman분석결과에서 유약표면의 diopside 결정은 diopside 결정과 precursor가 공존하고 있었다. 유지시간 변화에 따른 precursor량의 변화를 알아보기 위



Fig. 7. Optical micrograph of diopside crystal ($\times 50$).

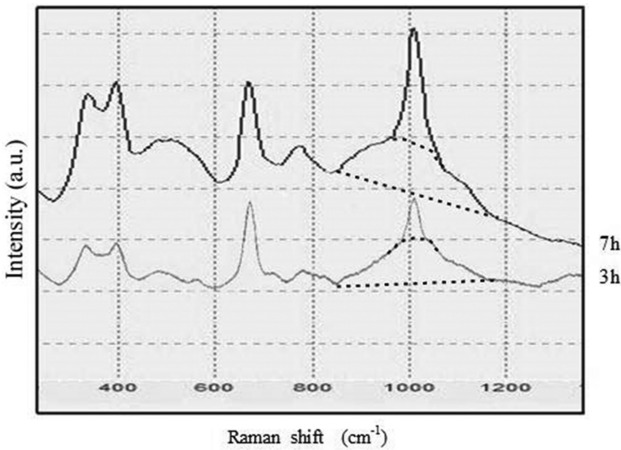


Fig. 8. Variation of the amount of precursor depending on the change of holding time.

하여 1100°C에서 유지시간을 3시간과 7시간으로 변화시켜 Raman 분석을 하였다. Fig. 8에서와 같이, 열처리 유지시간이 길어짐에 따라 precursor가 diopside로 결정화되고 있음을 알 수 있다.

Diopside 결정유약에서 diopside 결정이 생성되지 않는 유약부분을 Raman 분석하였다. 그 결과 Fig. 9에서와 같이 유약내의 발색산화물을 첨가하지 않은 S₀(B)의 경우는 Quartz의 특성 peak만 존재하였다. 그러나 유약에 Fe₂O₃를 첨가한 경우 Quartz 내에 Fe가 고용되면서 Quartz 구조의 일부와해로 특성 peak은 감소하였다. Co₃O₄를 첨가한 경우에도 Quartz에 Co가 고용되면서 Quartz의 구조가 와해되어 Quartz의 특성 peak은 나타나지 않고 비정질 Peak만 존재하였다. 이것을 확인하기 위하여 유약부분을 XRD 분석하였다. 그 결과 Fe₂O₃를 첨가한 유약과 Co₃O₄를 첨가한 유약의 경우 Quartz 내에 Fe 또는 Co의 고용으로 Quartz(101)면의 peak이 왼쪽으로 shift가 되어 Quartz 내에 Fe 또는 Co가 고용됨

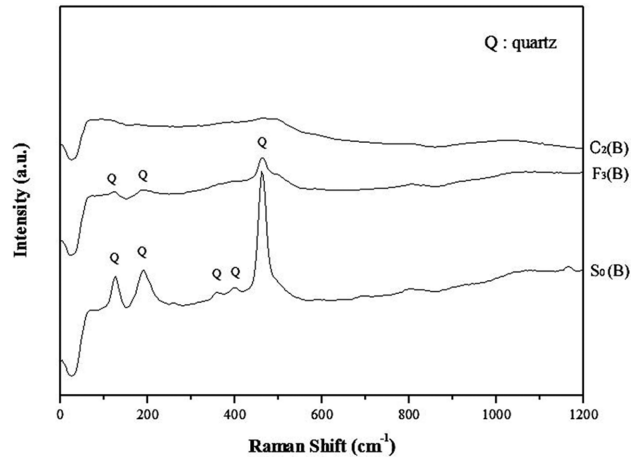


Fig. 9. Raman spectra of a glaze without diopside. S₀(B): No. 7 glaze, F₃(B): No. 7 glaze + Fe₂O₃ 3 wt%, C₂(B): No. 7 glaze + Co₃O₄ 2 wt%.

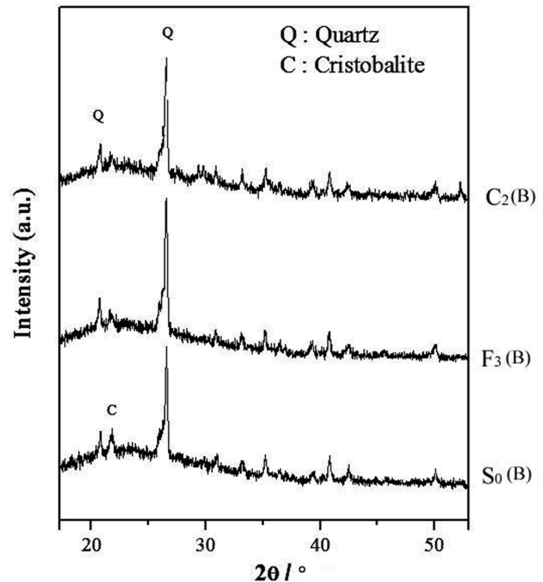


Fig. 10. XRD patterns of glaze without diopside. S₀(B): No. 7 glaze, F₃(B): No. 7 glaze + Fe₂O₃ 3 wt%, C₂(B): No. 7 glaze + Co₃O₄ 2 wt%.

을 알 수 있다.

4. 결 론

본 연구는 diopside 결정유약에서 CO₃O₄와 Fe₂O₃ 첨가가 diopside 결정의 형상 및 유약의 발색에 미치는 영향을 연구하였다.

1) Diopside 결정에는 Fe보다는 Co가 더 잘 고용되었으며, Co가 고용될 경우 diopside 결정성은 더 좋아져 특성 peak의 강도는 높아졌다. 그러나 Fe가 고용되면 diopside 결정은 부분적으로 와해되어 특성 peak의 강도

는 낮아졌다.

2) Diopside 결정유약에 Co_3O_4 를 넣을 경우 유약의 색상은 blue색을 띠며 결정의 색상은 Diopside 결정에 Co가 고용되면서 pastel violet색을 띤다.

3) Diopside 결정유약에 Fe_2O_3 를 넣을 경우 유약의 색상은 brown색을, 결정의 색상은 diopside 결정에 Fe가 고용되면서 goldenrod색을 띤다.

4) Diopside 결정유약 표면에 석출된 결정은 diopside 결정과 diopside precursor로 이루어져있다. 또한 유지시간이 길어짐에 따라 diopside precursor의량은 줄고 diopside 결정량은 증가하였다

References

- [1] C.-Y. Lee, "A Study on the crystal growth and color development mechanism in zinc crystalline glazes" (Myong-Ji University, Yongin, 2010) p. 18.
- [2] S. Youeich, "Glaze and pigment", H.-S Lee, 1 (Dae Kwang Bookstore, Seoul, 1997) p. 190.
- [3] B.-H. Lee, "Make of glaze own", B.-H. Han, 3 (Yekyong Publishing, Seoul, 2008) p. 32.
- [4] K.-J. Seo, "Monthly ceramic art", T. W. Kim, 20(5) (Monthly Ceramics, Seoul, 1997) p. 37.
- [5] S. Youeich, "Glaze and pigment", H.-S. Lee, 1 (Dae Kwang Bookstore, Seoul, 1997) p. 93.
- [6] J. Chavarria, "Glazing techniques", M. F. Canal (Watson-Guptill Public Ations, New York, 1999) p. 43.
- [7] H. Takashima, "Science of pottery glazes", U. Satoru (Uchida Rokakuho Publishing Co.Ltd, Tokyo, 1994) p. 303.
- [8] H.F. Shurvell, L. Rintoul and P.M. Fredericks, "Infrared and raman spectra of jade and jade minerals", Int. J. Vibr. Spec. [www.ijvs.com] 5 (2001) 4.
- [9] H. Takashima, "Science of pottery glazes", U. Satoru (Uchida Rokakuho Publishing Co. Ltd., Tokyo, 1994) p. 105.