정수 슬러지를 혼합한 계룡산 철화 분청사기 고강도 소지 개발

임성호 · 이병하[†]

명지대학교 공과대학 신소재공학과

Study on High- Strength Body of Chulwha Buncheong Ware from Geryong Mountain with the Addition of Purified Sludge

Seong-Ho Lim and Byung-Ha Lee[†]

Department of Materials Science & Engineering, Myongji University

(2013년 5월 26일 접수: 2013년 6월 17일 최종수정: 2013년 6월 13일 채택)

Abstract First, a purified sludge was calcined at various temperatures viz. 800, 900, 1000, 1100 and 1200°C per hour. Subsequently 100 wt% of ware from Geryong mountain was mixed with 5~25 wt% of a purified sludge. Then the ware was treated at 1250°C in an electric kiln to test a bending strength. The physicochemical property of the prepared ware was characterized by XRD, Raman and SEM analysis. Among the different percentage, 25 wt% of a ware in a purified sludge calcined at 1000°C showed 689 kg/cm² strength. Also the purified sludge calcined at 1000°C was adequate physical properties than the other composites. Further to enhance the physical strength, 3 wt % TiO₂ (a mineralizer) was added into the ware and the strength was increased up to 731 kg/cm². The composites exhibit absorption and porosity rates of 0.17% and 0.39% respectively.

Key words Geryong Mountain Chulwha Buncheong Ware, mullite, purified sludge.

1. 서 론

“계룡산 철화 분청사기”는 조선15세기 후반에서 16세기 전반에 걸쳐 공주 계룡산일대의 학봉리 분청사기 가마터에서 제작된 분청사기로서 백토분장 위에 철화 안료로 그림을 그린 독특한 기법의 도자기이다.¹⁾ 소지의 색상은 주로 어두운 갈색이나 흑 회색을 띠는 것으로 나타나 있어 철화 분청사기의 특징인 분장토(engobe)로 사용된 백토의 대비가 되는 색상인 흑갈색소지는 좋은 색상 적합성을 가지고 있다.²⁾ 이는 다른(용수리)지역의 분청사기 소지보다 계룡산 철화 분청 소지가 철(Fe₂O₃)의 함유량이 높은 것으로 많은 연구에 나타나 있다.^{1,3)} 이와 같은 Fe의 성분이 6.85 wt%,의 양이 들어있는 흑갈색 소지를 나타낸 계룡산부근에서 채취한 단미점토의 소성온도는 일반 청자소지보다 알카리 용융제의 양이 많고 알루미늄 양이 청자소지에 비해 적어 고화도 소성 시

흡수율도 크며 강도도 좋지 않음을 알 수 있다.³⁾ 이와 같은 저온 소지의 기계적 강도를 향상시키기 위해 일반 자기소지인 고령토를 많이 사용하고 있으며 최근 고령토를 납석으로 대체하여 Mullite 생성촉진에 관한 연구가 진행되었다.⁴⁾ 또한 이들 자원의 활용을 목적으로 1972년부터 많은 연구자들에 의해 Mullite 합성연구가 수행되었으며 출발원료로는 kaolin과 secondly Mullite 생성에 관여하는 부족분의 알루미늄을 사용하거나, 여기에 광화제를 첨가하여 Mullite 를 합성하였다.⁵⁾ 순수 Mullite의 소결을 위해서 1600~1700 °C 의 고온이 필요하므로 보다 낮은 온도에서 소결하기 위하여 다양한 합성방법들에 대한 연구가 많이 이루어져 왔다.⁶⁻⁹⁾ 그러나 Mullite를 합성하는데 있어 고비용이 들기 때문에 즉Al₂O₃와 SiO₂의 고온반응으로부터 Mullite를 합성 하고자 할 때 무엇보다도 고순도 및 미립의 출발원료가 요구되기 때문에 결과적으로 가격이 비싸지게 된다.¹⁰⁾ 따라서, 많은

[†]Corresponding author

E-Mail : ibh@mju.ac.kr (B. H. Lee, Myongji Univ.)

© Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

연구자들은 천연원료를 사용하여 Mullite를 제조하기 위해 많은 연구를 진행하여왔다.¹¹⁾ 본 연구에서는 높은 강도를 가지는 계룡산 철화 분청용 소지를 제작하기 위해서 대체물질로 사용이 가능한 정수장에서 처리된 정수Sludge의 활용가능성에 대해 연구하였다. 이러한 정수Sludge는 수도물 정수장에서 발생하는 폐기물인 정수Sludge의 구성 성분 중 Al_2O_3 의 함량이 53.568 wt%로 Ceramic 제품 제조에 사용하기에 좋은 재료이다.¹²⁾ 이와 같이 Mullite가 많이 생성되어지는 정수Sludge는 정수처리공정에서 침전지 및 역 세척수의 침전물을 탈수, 건조한 슬러지로서 Al_2O_3 : SiO_2 의비가 1.0이하이고 실리카와(SiO_2) 알루미늄(Al_2O_3)가 상당량 함유된 정수슬러지이다.¹³⁾ 이러한 정수Sludge와 계룡산에서 채취한 점토를 혼합하여 계룡산 철화 분청사기용 고강도 소지를 개발하고자 하였으며, 자원의 재활용에 따른 비용절감과 환경문제를 해결 할 수 있을 것으로 판단된다.¹⁴⁾

2. 실험 방법

2.1 출발원료 및 분말제조

계룡산점토와 정수 슬러지는 fast mill과 ball mill로 분쇄하여 270 mesh 표준체에 전통시켜 미 분체로 제조하여 계룡산점토는 단미로 사용하였고, 정수 Sludge는 강열감량이 41.4 wt%로 높게 나타나 800, 900, 1000, 1100, 1200 °C/1h 유지한 후 하소하여 사용하였다.

Fig. 1. X-Ray diffraction patterns of geryong mountain body.

2.2 계룡산 소지 특성분석

계룡산점토(논산시 상월면 계룡산부근)의 주 결정상은 Quartz(SiO_2)로 부결정상은 Orthoclase($KAlSi_3O_8$)와 Chlorite ($(Mg,Fe,Al)_{12}(Si,Al)_8O_{20}(OH)_{16}$)가 공존하는 것으로 나타났다. 이와 같이 계룡산 점토는 Fe가 6.85 wt%로써 짙은 갈색의 점토 광물임을 알 수 있으며, 알루미늄이 19.47 wt%로 일반 점토의 33.58 wt% 광물에 비해 적은 양으로 나타나 있다. 또한, 알칼리 용융제의 양이 많아 고온 소성 시 열을 견디지 못하고 형태가 변형되어, 계룡산 점토만으로는 고강도의 소지를 제작 하기가 어려운 것으로 나타났다. 성분분석 결과를 Table 1에 XRD 분석 결과를 Fig. 1에 나타내었다.

2.3 정수 슬러지의 특성분석

정수 슬러지의 XRD분석 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 정수 슬러지는 주로 Quartz가 존재하였다. 이러한 결과는 수도물을 정수 시 응집제로 사용한 Poly Aluminum Chloride의 분해된 후 Quartz의 반응 때문이다. 800, 900 °C에서는 하소한 정수 Sludge에서는 Mullite가 존재하지 않았으며, 1000 °C로 하소한 정수 Sludge에서부터 소량의 Mullite가 존재하였다. 또한 1100 °C로 하소한 정수 슬러지의 경우는 Mullite 결정이 완전히 이루어져 Quartz와 같이 공존하였다. 따라서 고강도 계룡산소지 제조 시 계룡산 점토와 정수 Sludge를 함께 사용하면 계룡산 점토에 부족한 Al_2O_3 성분을 정수 Sludge로 공급할 수 있다. 정수 Sludge에 대한 소성온도에 따른 분해, 전이, 새로운 결정상의 생성 등의 열간 변화를 분석하기 위

Fig. 2. X-Ray diffraction patterns of purified sludge.

Table 1. Chemical Compositions (wt.%).

Materials	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	CaO	Na_2O	K_2O	TiO_2	MnO	Ig.loss
Geryong Mountain body	58.350	19.470	6.850	1.630	0.290	0.310	2.430	0.910	0.120	7.02
Purified Sludge	33.152	53.568	4.901	0.899	1.073	0.196	1.262	0.832	0.321	41.392

Fig. 3. DT-TGA curve of purified sludge.

Fig. 4. Particle diameter of geryong mountain body and purified sludge samples.

해 DSC-TGA(STA-MS-Skimmer, Netzsch, Deutschland) 분석을 1000 °C 까지 행하였다.¹⁵⁾ 그 결과 정수 Sludge는 359 °C와 598 °C에서 PAC의 분해에 의한 큰 폭의 발열 peak가 존재하며 941 °C에서 Mullite 생성에 따른 발열 peak가 존재하였다.¹²⁾(Fig. 3) 이와 같은 강도나 소성 온도에서 좋은 결과를 얻는 정수 Sludge를 혼합원료로서 적합하였다.

2.4 계룡산 소지와 정수 Sludge의 입도분석

계룡산점토와 하소된 정수 Sludge의 입도분포(SALD-7101, Shimadzu, Japan)를 확인한 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 계룡산점토와 정수Sludge 분쇄분의 평균입도는 10 μm으로 나타났으며, 2가지 원료 모두 0.2~50 μm로 넓은 입도분포를 나타나 있어 분청사기용 소지에 적합하였다.

2.5 시험편 성형

각 혼합 소지에 대한 물리, 화학적 특성을 측정하기 위하여 석고형을 사용하여 시험편을 제작하였다. 강도 측정용으로 6×45×8 mm의 bar type, 흡수율 측정용으로 φ25×4 mm의 disc type의 시험편을 하중연화 측정용으로 30×130×8 mm bar type의 시험편을 1축 가압 성형하였다. 이때 성형 압은 1.5 ton/cm²으로 하였다

2.6 건조 및 소성

성형한 시험편이 휨이나 갈라짐, 부분건조가 되는 것을 방지하기 위하여 4h 간격으로 뒤집으며, 6일 동안 자연

건조시킨 후 dry oven에서 완전 건조하였다. 소성조건은 전기로를 사용하여 600 °C까지는 2 °C/min, 600 °C에서 최고온도인 1250 °C 5 °C/min로 승온 시켰다. 이후 1시간 동안 유지시키고 자연 냉각 하였다.

2.7 물성 측정

소성된 시험편의 흡수율, 기공율, 측정은 KS L3114에 의해 행하였고, 수축율은 KS L4004 측정법을 기준으로 측정 하였다. 하중연화 측정은 소성 시 시험편의 휨 정도를 측정하여 계산하였으며, 강도 측정은 UTM(MKS Type-PP-650-D, Scientific Instrument, JAPAN)으로서 3점 압축 시험법으로 측정하였다

2.8 가소성 실험

가소성은 제품의 성형성과 밀접한 관계가 있는 특성으로서 매우 중요하나, 가소성 측정방법은 현재까지 규격화된 객관적 측정 방법이 확립되어 있지 않기 때문에 일반 도자기 제조업체에서 시행하고 있는 방법에 의거¹⁵⁾하여 측정하였다. 이에 소지를 일정한 굵기의 긴 bar형으로 만든 후 이를 손가락에 감았을 때 균열이 생기는 정도를 보고 가소성을 판단하는 방법인 coiling법으로서 측정하여 와목점토를 10이라는 기준으로 하였을 때의 각 조성의 소지의 값을 평가하였다.¹⁵⁾

2.9 SEM관찰

Table 2의 GP-5, Table 3의 GPH-5 시험편의 미세 조직의 차이를 분석하고자 하였으며, Table 2의 GP-5에 TiO₂가 1%와 3%가 혼합된 시험편의 파단면을 HF40%의 용액에 50초간 담가 etching을 행한 다음 SEM(SS-550,

Table 2. Compositions of GP-1~ GP-5 Samples (wt%).

Material Sample	Geryong Mountain body	Purified Sludge calcinated(1000 °C)
GP-1		5
GP-2		10
GP-3	100	15
GP-4		20
GP-5		25

Table 3. Compositions of GPH-1~ GP5-5 Samples (wt%).

Material Sample	Geryong Mountain body	Purified Sludge calcinated(1100 °C)
GPH-1		5
GPH-2		10
GPH-3	100	15
GPH-4		20
GPH-5		25

[illegible]

Fig. 5. Bendign sterngth, water absorptivity and porosity and of samples.

아지는 경향을 보였다. 이는 소성 시험편을 Mullite 정량한 결과 1000 °C로 하소한 정수 Sludge를 25 wt% 첨가된 조성의 소지에서는 80 %로 많이 나타났다. 또한, 1100 °C로 하소한 정수 Sludge를 25 wt% 첨가된 조성의 소지에서는 55 %로 분석 되어 Mullite생성에 기인한 것을 알 수 있다. Fig. 14 에 나타내었다. 또한, 흡수율과 기공율 또한 높아지는 것으로 나타났다. 이렇게 서로 다른 물성 값을 나타낸 1000 °C와 1100 °C의 하중연화 측정결과에서도 1000 °C로 하소한 정수 Sludge를 25 wt% 첨가된 조성의 소지에서는 3.2 mm까지 낮아 있어 소성 시 변형이 일어나지 않은 것으로 확인 되었다. 반면 1100 °C로 하소한 정수 Sludge를 첨가한 소지에서는 정수 Sludge 25 wt%로 양이 증가하였을때 11.2 mm로 높게 나타나 있어 소성 시 변형이 많이 일어나는 것을 확인 하였다. 이를 Fig. 6에 나타내었다.

1000 °C로 하소한 정수 Sludge를 사용한 소지가 물성

(a) 25 <<< 5

(b) 25 <<< 5

Geryong Mountain body	Purified Sludge calcinated (wt%)	Results of load testing (mm)	
		(a) 1000°C	(b) 1100°C
	5	9.6	9.4
100	10	8.4	7.1
	15	6.2	9.4
	20	4.6	10.3
	25	3.2	11.2

Fig. 6. Results of load testing of each (a) 1000 °C, (b) 1100 °C addition at temperature.

Fig. 7. X-ray diffraction of samples.

Fig. 8. Analysis of d value.

의 좋은 이유를 밝히고자 XRD와 Raman으로 분석하여 Fig. 7, 8, 9에 나타내었다. 그 결과 XRD에 나타나는

Fig. 9. Raman spectroscopy spectrum of samples.

Mullite의 (001) 면의 d 값 비교를 위해 CaF_2 를 표준 시료로 사용하였다. 1000 °C로 정수 Sludge를 하소한 것을 사용한 소지의 d 값은 2.90146 이며 1100 °C로 하소한 정수 Sludge를 사용한 소지의 d 값은 2.89985로 JCPDS (15-0776) Card상의 d 값 2.886에 근접하게 나타난 소지는 1100 °C로 하소한 정수 Sludge를 사용한 소지이다. 따라서 1100 °C로 하소한 정수 Sludge Mullite화가 더 잘 이루어진 것을 알 수 있다. 이것을 좀더 확인하기 위하여 Raman 측정결과 1000 °C로 정수 Sludge를 하소한 것을 사용한 소지는 408 cm^{-1} 에서만 나타났으며, 1100 °C로 하소한 정수 Sludge 소지는 408 cm^{-1} 와 304 cm^{-1} 에서 Mullite의 특성 peak가 나타났다. 이로써 1100 °C로 하소한 정수 Sludge 소지의 경우 Mullite가 잘 이루어져 Crystal 화가 된 것을 알 수 있다. 이로써 1000 °C로 하소한 정수 Sludge가 반응성이 좋아져 물성측정에서 좋은 결과를 나타내었다.

Fig. 11. X-ray diffraction of samples (a) TiO_2 1~3 wt%, (b) MnO_2 1~3 wt% and (c) CaF_2 1~3 wt%.

3.3 GP-5, GPH-5의 SEM 분석

Mullite 의 결정 상태를 확인하기 위하여 1000 °C와 1100 °C로 하소한 정수 Sludge를 혼합하여 소성한 각 소지를 Diamond Cutter로 자른 후 시험편의 파 단면을 HF(불산) 40 %의 용액에 50초간 담가 etching을 행한 다음 SEM분석을 하였다. 그 결과 Fig. 10의 1000 °C로

GP-5,1000°C

GPH-5,1100°C

Fig. 10. SEM image of the GPH sample (a) 1000 °C and (b) 1100 °C.

하소한 정수Sludge를 사용한 소지 GP-5의 경우 Mullite의 형태가 Mullite 결정의 굵기도 커진 것으로 관찰되었다. 이는 앞서 밝혔듯이 소지내에 1000 °C로 하소한 정수 Sludge의 반응성이 좋아져 나타난 현상임을 알수있다. 1100 °C로 하소한 소지 GPH-5의 경우 정수 Sludge 하소시 이미 Mullite 결정의 크기가 그대로 존재하여 길고 작은 것으로 관찰되었다.

3.4 광화제가 첨가된 XRD분석

정수 Sludge를 1000 °C로 하소한 것을 사용한 소지에 좀더 고강도 소지를 개발 하기 위하여 광화제로 TiO_2 와 CaF_2 , MnO_2 를 각각 1, 2, 3 wt% 첨가한 후 1250 °C로 소성하여 XRD 분석을 하였다. 그 결과 광화제가 첨가된 조성인 Fig. 11의 (a), (b), (c)에서 TiO_2 와 CaF_2 , MnO_2 광화제의 양이 1 wt%일 때 보다 3 wt%일 때가 Quartz의 intensity가 감소하며 Mullite상의 intensity가 증가하는 것으로 나타났다. 이 중 TiO_2 가 첨가된 Fig. 11의 (a)에서 3 wt% 일때가 Quartz의 intensity가 가장 많이 감

소하였으며, 상대적으로 Mullite의 상도 가장 높게 증가한 것으로 나타났다.

3.5 광화제가 첨가된 굽힘강도 및 흡수율·기공율

광화제를 첨가한 각 소지의 굽힘 강도 및 흡수율 기공율을 측정하여 Fig. 12에 나타내었다. 광화제를 첨가하지 않은 Table 2의 GP-5의 측정 결과보다 광화제를 첨가한 Table 4의 모든 조성에서 보다 좋은 값을 얻을 수 있었다. 광화제를 첨가된 Table 4의 모든 조성에서는 1 wt%일 때 보다 3 wt% 일 때가 굽힘 강도 값이 증가하였으며, 기공율은 0.50 wt%-0.39 wt%이고 흡수율은 0.23~0.17로 낮아 졌다. 이중 Fig. 11의 XRD 분석 결과에서 Mullite의 intensity가 가장 증가한 TiO_2 3 wt%가 첨가된 GPT-5 소지에서 청자 소지보다 높은 731 kg/cm^2 으로 측정되었다. 이는 Fig. 14와 같이 Mullite정량 결과 94 %의 Mullite가 생성된 결과이다. 따라서 광화제 첨가 양은 TiO_2 가 3 wt%일 때 흡수율이나 기공율에서 가장 양호하였다.

Fig. 12. Bending strength, water absorption and porosity of samples with addition of TiO_2 , MnO_2 and CaF_2 .

Fig. 13. SEM image of samples fired at 1250 °C/1h (a) TiO₂ 1 wt% and (b) TiO₂ 3 wt% addition.

Fig. 14. The result of quantitative analysis of synthesized mullite.

TiO₂가 3 wt%일 때 굽힘 강도 값이 가장 최적임을 알아보기 위해 GPT-5조성에 TiO₂의 4 wt%와 5 wt%로 첨가하여 굽힘 강도값을 측정하였다. 그 결과 TiO₂를 4 wt% 첨가 하였을때 721 kg/cm² 와 TiO₂를 5 wt% 첨가 하였을때 705 kg/cm²으로 나타났다. 이로써 TiO₂첨가량 3 wt%에서 일반 청자소지보다 높은 굽힘 강도 값을 나타낸 것을 알 수 있다.

3.6 SEM 분석

높은 물성 값을 나타낸 TiO₂가 3 wt% 첨가된 소지의 미세 조직 및 Mullite 결정형태를 분석하고자 소지의 파 단면을 HF(불산) 40 %의 용액에 50초간 담가 etching한 다음 SEM분석을 하였다. 그 결과 TiO₂ 1 wt%, 일 때 보다 3 wt%로 첨가한 소지에서 Mullite의 생성양도 증가하여 치밀하였으며, 동시에 Mullite 결정의 굵기도 커진 것으로 관찰되었다. 이를 Fig. 13에 나타내었다.

4. 결 론

계룡산점토에 정수 Sludge를 사용하여 계룡산 철화분 청용 고강도 소지의 개발에 대해 다음과 같은 결과를 얻

었다.

1) 계룡산 점토는 알루미나가 19.47 wt%으로 일반 점토에 비해 적으며 알카리의 양이 많아 1200 °C이상의 고온에서는 사용 할 수 없었다. 이를 보완하기 위해 계룡산 점토 100에 1000 °C로 하소한 정수 Sludge 25 wt%을 첨가 하였을 때 소지가 가장 양호한 강도 값을 보였다.

2) 1000 °C로 하소한 정수 Sludge는 Mullite화가 완전하게 이루어지지 않아 계룡산 점토와의 반응성이 좋았다. 이로 인하여 기공율은 0.53 % 흡수율은 0.23 %으로 낮아지면서 굽힘 강도는 689 kg/cm²으로 높은 강도 값을 나타내었다. 그러나 1100 °C로 하소한 정수 Sludge는 Chamotte화가 되어 계룡산 점토와의 반응성이 좋지 않았다.

3) 계룡산 점토 전체 양에 1000 °C로 하소한 정수 Sludge 25 wt%을 넣은 소지에 TiO₂ 3 wt% 를 첨가한 소지의 색상은 짙은 암갈색이었으며, 굽힘 강도 값이 731 kg/cm²로 증가하였고 흡수율은 0.17 % 와 기공율이 0.39 %으로 일반 청자보다도 높은 강도를 나타내어 계룡산 철화 분청사기 고강도 소지를 개발 할 수 있었다.

References

1. Y. E. Lee and K. S. Koh, Compositional and Microstructural Study of Punchong from Hakbongni, Kongju, J. Kor. Soc., **6**(1), 3-14 (1997) (in Korean).
2. J. H. Jung and B. H. Lee, Development of Body for Temmoku Tea Bowl Using Hwangto, J. Kor. Ceram. Soc., **47**(4), 296-301 (2010) (in Korean).
3. S. H. Lim, Y. B. Kim and B. H. Lee, Image Cut Raman Microscope Study of the Geryong Mountain Chulwha Buncheon Ware, J. Kor. Ceram. Soc., **47**(4), 312-318 (2010) (in Korean).
4. A. N. Kwak, G. H. Kim, J. H. Pee, J. Y. Kim, W. S. Cho, K. J. Kim and J. K. Lee, Mullite Formation and Effect in Porcelain Body by Replacing Kaolinite with

- Pyrophyllite, J. Kor. Ceram. Soc., **49**(3), 216-220 (2012) (in Korean).
5. B. S. Lim, K. I. Kang, Y. Y. So, S. Park, and B. H. Lee, The Effect of Mineralizer Addition on Synthesis of Mullite using Kaolin, J. Kor. Ceram. Soc., **36**(1), 82-88 (1999) (in Korean).
 6. L. Montanaro, J. M. Tulliani, C. Perrot and A. Nergo, Sintering of Industrial Mullites, J. Eur. Ceram. Soc., **17**, 1715-1723 (1997).
 7. D. A. Rani, D. D. Jayaseelan and F. D. Gnanam, Densification Behavior and Microstructure of Gel-derived Phasepure Mullite in the Presence of Sinter Additives, J. Eur. Ceram. Soc., **21**, 2253-2257 (2001).
 8. V. Viswabaskaran, F. D. Gnanam and M. Balasubramanian, Effect of MgO, Y₂O₃ and Boehmite Additives on the Sintering Behavior of Mullite Formed from Kaolinite-reactive Alumina, J. Mater. Proc. Technol., **142**, 275-281 (2003).
 9. C. B. Lim, D. H. Yeo, H. S. Shin and Y. S. Cho, Low Temperature Sintering Additives for Mullite Ceramics, J. Kor. Ceram. Soc., **48**(6), 604-609 (2011) (in Korean).
 10. Y. T. Mun, in Proceedings of the Zero Waste Seminar (Myongji University Zero Waste Center, 2013) 43-62 (in Korean).
 11. I. S. Kim, D. H. Kim, K. B. Shim, M. W. Lee, and B. H. Lee Synthesis of Mullite from Kaolin and Industrial By-Products, J. Kor. Ceram. Soc., **36**(1), 1~6(1999) (in Korean).
 12. J. I. Lee, J. S. Park, Y. S. Lee, and B. H. Lee, Development of Ceramic Body using Waste Celadon, J. Kor. Ceram. Soc., **46**(6), 602-608 (2009) (in Korean).
 13. Y. J. Kwon and B. H. Lee Recycling of the Wasted Bottom Ash for Roadbase Application, J. Kor Soc. **30**(1), 34-39 (2013) (in Korean).
 14. B. S. Han, Test and Characterization of Porcelain Body, 14th Pottery Symposium in Korea, **14**, 47-58 (2001).
 15. J. I. Lee, Y. S. Lee, and B. H. Lee, Ceramics Body Development using Waste Whiteware, J. Kor. Ceram. Soc., **43**(10), 626-634 (2006) (in Korean).
 16. Y. H. Baik, S. H. Choi, C. J. Chung and H. S. Park, Influence of Mixtures Composed of Fe₂O₃, MnO₂, CaF₂ and TiO₂ as Mineralizers on Mullitization, J. Kor. Ceram. Soc., **15**(1), 9-15 (1978) (in Korean).
 17. I. S. Kim, S. H. Kim, J. S. Park, J. Y. Kang and K. H. Lee, Effect of Mullite on High Alumina Refractory, J. Kor. Ceram. Soc., **38**(2), 128-136 (2001) (in Korean).