

## Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO의 복합 첨가가 BaTiO<sub>3</sub> 유전특성의 온도안정성에 미치는 효과

최광휘 · 황진현 · 한영호  
성균관대학교 재료공학과  
(1998년 5월 18일 접수)

### Temperature Dependence of Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub> doped with Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and CoO

K. H. Choi, J. H. Hwang and Y. H. Han

Department of Materials Engineering, Sung Kyun Kwan University, Suwon, Korea  
(Received May 18, 1998)

#### 요 약

BaTiO<sub>3</sub>-based ceramic capacitor에서 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO의 복합첨가가 유전특성의 온도안정성에 미치는 영향에 대하여 연구하였다. X7R 특성의 온도 안정성은 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-CoO의 전체 첨가량이 2 mol% 이내로서 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/CoO ratio가 조절된 첨가계에서 관찰되었으며, 3500이상의 유전상수와 1.5% 이하의 유전손실율이 관찰되었다. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 큐리 온도 이동과 함께 큐리 온도에서의 유전상수가 감소되었으며, 과량 첨가되었을 경우 유전상수 곡선은 single peak으로 나타나 온도안정성이 사라졌다. 또한 첨가량이 조절된 CoO의 복합 첨가로 유전체의 온도안정성을 향상시킬 수 있었다.

#### ABSTRACT

The effect of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and CoO addition on the temperature dependence of the BaTiO<sub>3</sub>-based ceramic capacitor has been studied. X7R with moderate temperature dependence has been developed by means of precisely controlled Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/CoO ratio. Dielectric constant(K) and dissipation factor(DF) were 3500 and 1.5%, respectively. As the content of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> was increased, the curie temperature(T<sub>c</sub>) was shifted to lower temperature and the dielectric constant at T<sub>c</sub> was decreased. The proper addition of CoO with Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> improved the temperature dependence of dielectric properties of the BaTiO<sub>3</sub>-based ceramic capacitor.

**Key words :** BaTiO<sub>3</sub>, X7R, Capacitor

#### 1. 서 론

BaTiO<sub>3</sub>은 페로브스카이트 구조를 가지는 대표적인 강유전체이며, 현재 상용화되고 있는 대부분의 디스크형 세라믹 콘덴서나 MLCC(multilayer ceramic capacitor)의 기본 재질이다. 세라믹 콘덴서는 기본적으로 높은 유전 용량과 낮은 유전손실 값을 가져야 하며, 유전 특성의 온도안정성이 요구된다. 순수 BaTiO<sub>3</sub>는 -90°C, 0°C, 125°C에서 상전이와 관련된 유전상수의 큰 변화를 동반하므로 그 자체를 콘덴서로 사용하기는 어려우며, 적절한 산화물을 첨가함으로써 원하는 유전특성을 갖는 세라믹 콘덴서로 사용할 수 있다. EIA(Electronic Industries Association)에서는 capacitor에 대한 규격으로서 유전상수(K), 유전손실율(DF), 그리고 온도에 대

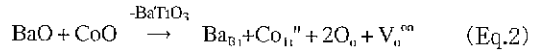
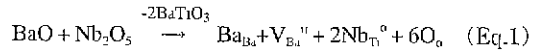
한 유전율의 변화(Temperature Coefficient of Capacitance, 이하 TCC)를 기준으로 하여 대표적 강유전체 재질로 X7R(온도범위: -55°C~125°C, TCC: ±15%), Y5V(온도범위: -30°C~85°C, TCC: +22%~82%)등으로 분류하고 있다. 이러한 조건을 충족시키기 위하여 다양한 산화물 첨가제가 선택되며 첨가되는 산화물의 금속이온은 이온반경을 기준으로 Ba 자리나 Ti 자리를 치환함으로써 유전특성에 영향을 미치게 된다.

EIA 규격의 X7R capacitor는 -55°C~125°C의 온도 범위에서 K는 3000이상, DF는 1.5%미만, TCC의 변화가 ±15% 이내인 재질로 정의된다. 이러한 X7R 유전특성은 미세조직상의 grain-core와 grain-shell 구조로서 구성되어 있으며, Rawal 등은 TEM을 이용하여 grain 내의 core-shell 구조의 존재를 확인하였다.<sup>1)</sup> grain-

core 영역은 강유전체 분역으로 구성된 undoped BaTiO<sub>3</sub>의 영역이다. grain shell 영역은 첨가제 확산에 의하여 BaTiO<sub>3</sub> grain에 첨가제의 농도구배가 존재하는 영역으로서 농도구배에 따른 조성의 차이로서 큐리온도 (이하 T<sub>c</sub>)가 다양한 온도로 존재할 수 있다. Fig. 1에 X7R 재질의 core-shell 구조와 이로 인해 나타나는 상대적으로 온도의존성이 작은 유전특성을 도식적으로 나타내었다. X7R의 평평한 유전특성은 그림에서 보듯이 서로 다른 T<sub>c</sub>를 가지는 core 영역과 shell 영역의 상호 보완적인 증첩 효과로 나타난다. 산화물의 과량 첨가시 온도에 대한 유전상수의 변화가 단일 peak으로 나타나 유전율의 온도안정성은 사라지게 된다. core-shell 구조는 산화물 첨가제와 소성 조건 등과 같은 제조 공정에 의하여 민감하게 변화하는 준안정한 에너지 상태를 가진다고 보고되고 있다.<sup>2,3)</sup>

BaTiO<sub>3</sub>의 X7R 유전특성을 나타내는 대표적인 산화물 첨가제로서 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO등이 있다. 이들은 사용된 첨가량 범위에서 BaTiO<sub>3</sub> 격자내에 다음식으로 용해되

어 격자결함을 만들게 된다.



Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>는 BaTiO<sub>3</sub>내에서의 느린 확산속도로 인하여 core-shell 구조 형성을 용이하게 하는 첨가제이며, T<sub>c</sub>를 낮추고 K vs. T curve를 넓고 평탄하게 하는 첨가물로서 알려져 있다.<sup>6,7)</sup> Burn 등은 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>의 온도안정성에 대하여, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 5 mol%까지는 1 mol% 이하의 Co, Mg, Mn 등과 같은 acceptor 산화물을 함께 첨가함으로써 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 분포를 조절할 수 있으며 이로 인해 TCC 특성이 향상된다고 보고하였다.<sup>9)</sup> 그러나 이 경우 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 과량 첨가로 인한 유전특성의 저하가 나타날 수 있다. Co 이온은 BaTiO<sub>3</sub>에서 Nb 이온과 함께 T<sub>1</sub> 자리를 치환하며, 소결시 입계로부터 grain내로 확산하는 Nb<sup>5+</sup> 이온의 확산속도를 제어하여 core-shell 분포를 효과적으로 조

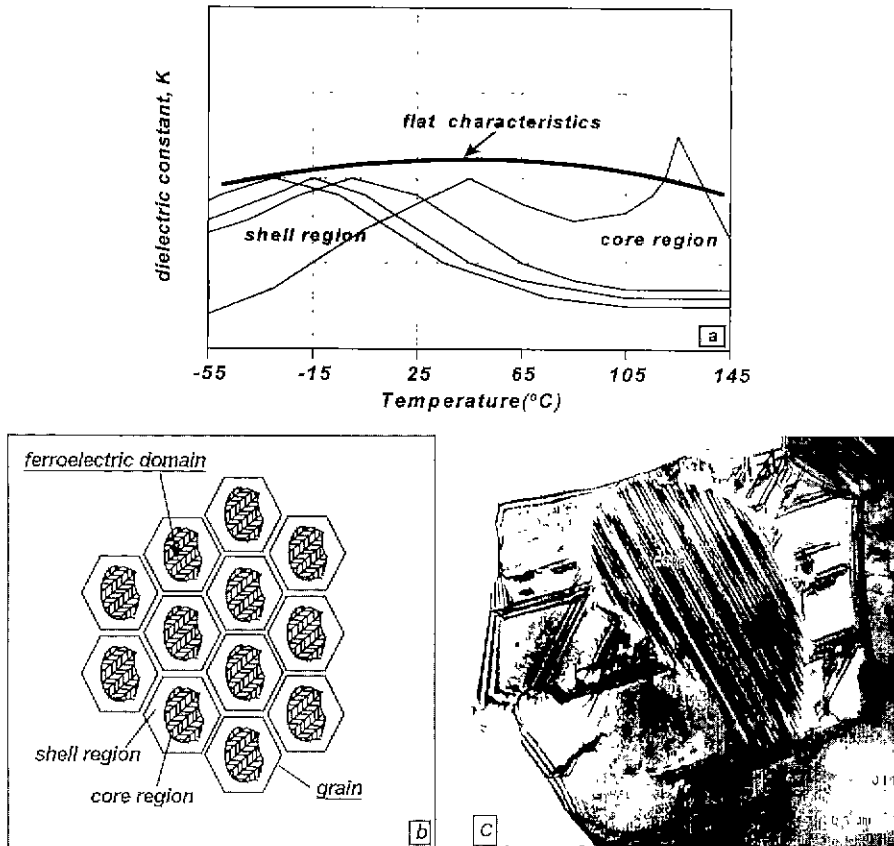


Fig. 1. Schematic diagrams of characteristic X7R. (a) flat dielectric properties of K vs. T curve and (b),(c)<sup>2)</sup> core-shell structure in doped BaTiO<sub>3</sub>

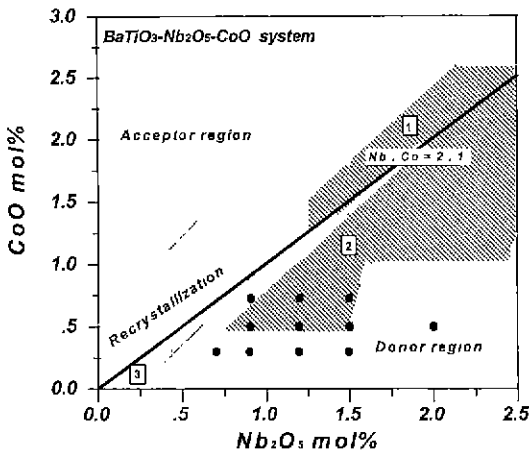


Fig. 2. Composition diagram of  $\text{BaTiO}_3\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-CoO}$  system fired 2 hr at  $1300^\circ\text{C}$  in air<sup>9)</sup> (1,2: X7R region, 3: semiconduction region, ●: selected composition).

절하는 첨가제로 알려져 있다.<sup>9)</sup> Hennings 등은 Nb/Co 비를 기준으로 한 체계적인 접근을 시도하였으며, X7R 유전특성에서 Nb/Co ratio는 유전특성을 지배하는 중요한 변수라 보고하였다. Fig. 2에 Hennings 등이 보고한 Nb/Co 비에 따른  $\text{BaTiO}_3$ 의 유전 특성 변화를 나타내었다.<sup>10)</sup> 첨가된 원자비 Nb:Co=2:1인 line을 기준으로 acceptor 영역과 donor 영역으로 나뉘어지고 있으며, 이 line은 전하 보상이 이루어지는 것을 나타낸다. Nb:Co=2:1에 근접한 조성으로 첨가제가 소량인 경우에는 반도체 특성이 나타나는 반면, X7R 특성은 Nb:Co=2:1 line을 기준으로 donor가 우세한 영역에서 주로 나타난다.

본 실험에서는  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 와 CoO를 첨가제로 선택하여 Nb/Co ratio와 전체 첨가량 조절이  $\text{BaTiO}_3$ 의 유전을 온도안정성에 미치는 영향을 고찰하였으며, 적절한 비와 첨가량을 결정하기 위하여 Fig. 2에 나타난 조성을 선택하여 실험하였다. 각 조성의 K, DF 등의 유전 특성을 측정하여 온도안정성에 미치는 영향을 고찰하였고, 미세조직을 관찰하였다.

## 2. 실험방법

기본 원료로서 고상법으로 제조한 고순도  $\text{BaTiO}_3$  ( $\text{BaO}/\text{TiO}_2=0.995$ )를 사용하였다. 첨가제인  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 은 Johnson-Matthey사의 99.99%, CoO는 Aldrich사의 99.9+% 순도 분말을 사용하였으며, premilling하여  $1\ \mu\text{m}$  이하로 입도를 조절하였다. 칭량한 분말은 YSZ(yttria stabilized zirconia) ball과 함께 EP-jar에 넣고 planetary type의 mill을 이용하여 2시간 동안 습식 혼합 및

요업학회지

분쇄를 수행하였다. 건조 후 PVA 액상을 1 wt% 첨가하여 과립화시킨 후  $1.5\ \text{ton}/\text{cm}^2$ 의 압력으로 지름 12.7 mm, 높이 1 mm를 가지는 disk type으로 성형하였다. 소결은 tube furnace를 이용하여  $1300^\circ\text{C}$ 에서 2시간 유지시키며 대기 중에서 수행하였다. 유전 특성을 측정하기 위하여 silver paste를 도포한 후  $790^\circ\text{C}$ 에서 30분 소부하였으며 전극 소부가 끝난 시편은 Saunders사의 4220 test chamber에서 HP-4284A LCR meter를 사용하여 1 kHz,  $1V_{\text{rms}}$ 의 조건으로  $-55^\circ\text{C}\sim 125^\circ\text{C}$ 의 온도범위 내에서 capacitance, Cp와 dissipation factor, DF를 측정하였다. 미세조직 관찰은 micropolishing 후  $1200^\circ\text{C}$ 에서 1시간 thermal etching을 수행한 뒤 주사 전자 현미경으로 관찰하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. $\text{Nb}_2\text{O}_5\text{-CoO}$ 첨가계 효과

Fig. 3에는  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 와 CoO의 mol% 비에 따른 유전상수의 온도곡선을 나타내었다. 측정된 온도범위 내에서  $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{CoO}$ 의 첨가비에 따른 유전상수 변화의 두드러진 경향은 관찰할 수 없었으나 선택한 첨가비 중  $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{CoO}$ 가 0.9/0.5, 1.2/0.5인 조합에서 X7R 재질에 적합한 유전상수의 온도특성이 관찰되었다. 이러한 현상은 어느 일정한 첨가량과 첨가비에서 미세조직상의 core/shell이 적정 분율 형성됨으로서 유전특성이 core와 shell에 의하여 상호 보완적으로 이루어져 안정하게 나타난 것으로 사료된다. X7R 유전체의 온도 안정성은 산화물 첨가제의 비율 뿐만 아니라 첨가총량과 밀접한 관계를 갖고 있으며 소량 또는 과량 첨가된 경우 온도안정

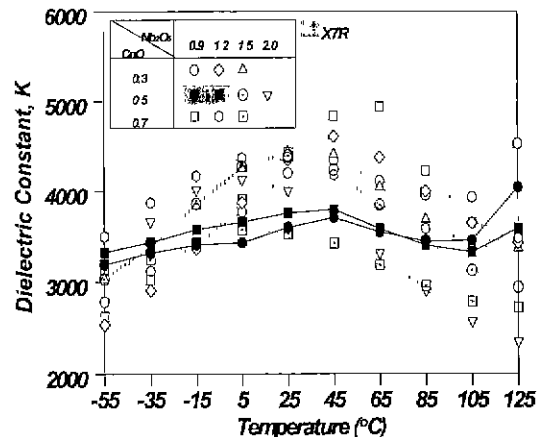


Fig. 3. Effect of  $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{CoO}$  mol% ratio on dielectric constant of  $\text{BaTiO}_3$  doped with  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  and CoO ( $1300^\circ\text{C}$  sintering).

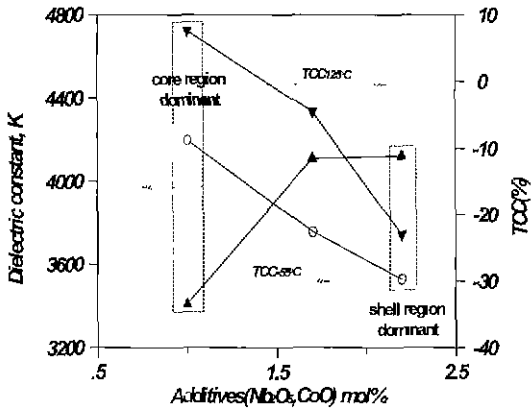


Fig. 4. Dielectric constant and TCC variance with total (Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, CoO) additives content (1300 °C sintering).

성은 사라진다.

Fig. 4는 보다 안정한 유전특성을 나타낸 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/CoO=1.2/0.5 첨가비를 선택하여 이 Nb/Co 비를 유지하는 조건에서 전체 첨가량 변화에 따른 상온 K와 -55°C와 125°C에서의 TCC를 나타낸 것이다. 전체 산화

물 첨가량을 1.0, 1.7, 2.2 mol%로 증가시키에 따라 유전상수(K)는 순차적으로 감소하였다. -55°C의 TCC는 1 mol% 첨가시 -33.5%의 큰 변화율에서 1.7 mol% 이상 첨가시 -11.5%로 안정한 값을 나타내었다. 125°C에서의 TCC는 첨가량 증가에 따라 감소하는 경향을 나타내었다. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO가 1 mol% 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>는 4000 이상의 높은 유전상수를 나타내었지만 -55°C에서 TCC가 온도범위를 벗어났으며, 2.2 mol% 첨가된 계는 -11.5%로 비교적 안정적인 반면 125°C에서의 TCC가 -23%로 급격한 변화를 보였다. 첨가량이 1 mol%로 낮은 경우 선택된 첨가량만으로는 core-shell 구조를 효과적으로 생성시킬 수 없는 것으로 생각되며, 2.2 mol%로 첨가된 경우 과량의 첨가제와 반응하여 생성된 shell 영역이 증가하여 상대적으로 순수한 BaTiO<sub>3</sub>의 core 영역은 감소하기 때문에 나타난 결과라 사료된다. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO가 1.7 mol% 첨가된 경우 3700 정도의 높은 유전상수와 함께 TCC 특성도 ±15% 이내로 안정하게 나타났다. Hennings 등은 2 mol% 이상의 높은 첨가량에서도 X 7R 온도특성이 나타난다고 하였으나 본 실험에서는 2 mol% 이상 첨가된 경우에는 이러한 특성을 관찰할

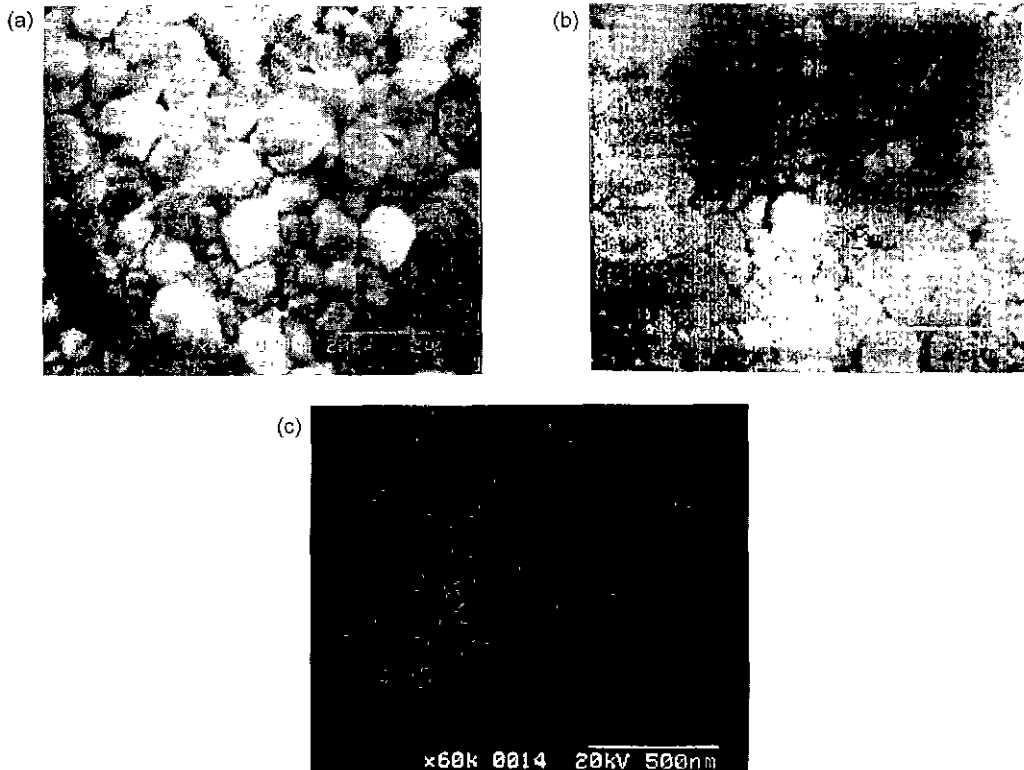


Fig. 5. Microstructure of BaTiO<sub>3</sub>-1.2Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-0.5CoO system (1300°C sintering). a) fractured (×20,000), b) polished surface (×20,000) and c) magnification of b) (×60,000)

수 없었다.<sup>10)</sup>

Fig. 5에 1.2Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-0.5CoO가 첨가된 X7R 특성을 나타낸 BaTiO<sub>3</sub>의 미세조직 사진을 나타내었다. 2 μm 이내의 균일한 grain size가 관찰되었다. grain size의 작고 균일한 분포는 M. Kahn이 보고한 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 grain refiner 효과라 사료된다.<sup>7)</sup> 또한 Fig. 5 c)에는 grain 내부에 빗살무늬 모양의 순수 BaTiO<sub>3</sub>의 강유전 domain이 형성되어 있으며, core-shell 구조를 확인할 수 있었다. 따라서 앞에서 언급한 안정한 유전특성은 여러 연구자들에 의해 보고되었듯이 미세조직상의 core-shell 구조로서 해석할 수 있다고 사료된다. X7R 특성을 나타내는 미세조직상의 적정 core/shell 부피분율이 존재할 것으로 생각되나, 부피분율에 대한 정확한 계산은 어려웠다.

Fig. 6에 0.5 mol% CoO가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub> 첨가체에 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 첨가량에 따른 유전상수의 변화를 온도의 함수로 나타내었으며 Table 1에 유전특성 결과를 정리하였다. 0.9, 1.2 mol%의 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 첨가시 상온 이상에 존재하던 유전상수 최대값(K<sub>max</sub>)은 첨가량이 1.5, 2.0 mol%로 증가함에 따라 점차 음의 온도로 이동하고 있으며, 이 경우 single peak 모양을 보이며 유전율의 온도안정성이 감소

됨을 알 수 있다. 이는 과량의 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 첨가로 인하여 상대적으로 CoO 효과가 상쇄될 뿐만아니라 첨가체의 전체 첨가량이 2 mol% 이상일 경우 grain 내의 shell 영역이 증가함으로써 core/shell 부피분율이 감소하는데 기인한 효과라 사료된다. 125°C에서의 T<sub>c</sub> peak이 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 심하게 depress되어 1.5 mol% 이상으로 첨가될 때 사라지는 것은 core/shell의 부피분율이 감소한다는 사실을 뒷받침해 주며 유사한 실험을 한 Kahn의 보고와 잘 일치하는 결과이다.<sup>7)</sup> 유전손실인 DF의 변화는 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 첨가량에 따라 두드러진 경향을 관찰할 수 없었으나 측정온도 전반에 걸쳐 1.5% 이내로 안정하게 나타났다. 0.9, 1.2 mol%의 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 0.5 mol%의 CoO가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>는 3500 이상의 상온 유전상수를 가지며 TCC 특성이 ±15% 이내로 안정한 X7R 유전특성을 나타내었다.

CoO 첨가효과를 관찰하기 위하여 1.2 mol% Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>에 CoO를 0.0~0.7 mol%까지 변화시켰다. 이에 따른 TCC 특성을 Fig. 7과 Table 2에 각각 나타내었다. CoO의 첨가량이 0.5 mol%로 증가함에 따라 유전율의 온도안정성은 향상되고 있으며 0.7 mol%에서

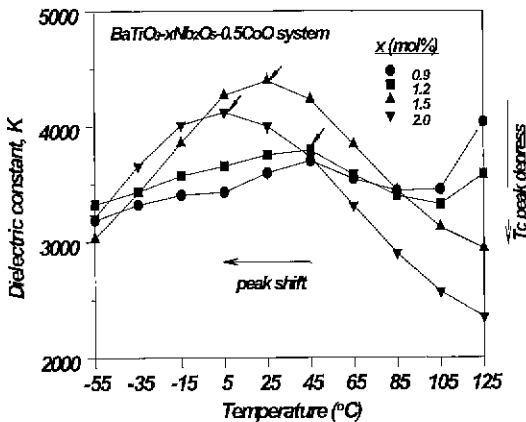


Fig. 6. Effect of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> content on K vs. T curve of BaTiO<sub>3</sub> doped with 0.5 mol% CoO (1300°C sintering).

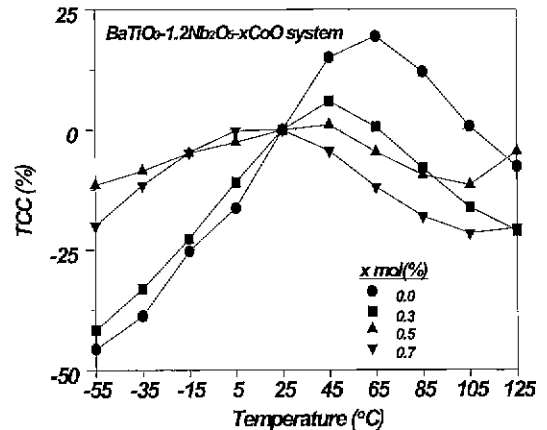


Fig. 7. Effect of CoO content on TCC vs. T curve of BaTiO<sub>3</sub> doped with 1.2 mol% Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (1300°C sintering).

Table 1. Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub> with Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Contents

mol%		Dielectric properties (1 kHz, 1V <sub>rms</sub> )			
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	CoO	K <sub>25°C</sub>	DF <sub>25°C</sub> (%)	TCC <sub>-55°C</sub>	TCC <sub>125°C</sub>
0.9	0.5	3598	1.13	-11.5	12.3
1.2	0.5	3756	1.24	-11.5	-4.50
1.5	0.5	4399	1.61	-31.1	-33.2
2.0	0.5	4055	1.29	-20.0	-41.3

Table 2. Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub> with CoO Contents

mol%		Dielectric properties (1 kHz, 1V <sub>rms</sub> )			
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	CoO	K <sub>25°C</sub>	DF <sub>25°C</sub> (%)	TCC <sub>-55°C</sub>	TCC <sub>125°C</sub>
1.2	0	4314	2.15	-45.6	-7.6
1.2	0.3	4349	1.85	-41.7	-21.2
1.2	0.5	3756	1.24	-11.5	-4.50
1.2	0.7	4377	1.43	-20.0	-20.50

다소 감소된다. 이러한 CoO 첨가효과는 상온 이상보다는 음의 온도영역에서 보다 현저함을 알 수 있다. Burn 등은 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>에서 적절한 CoO의 첨가로 TCC 특성이 향상된다 보고하였다.<sup>10</sup> 그는 이러한 현상을 격자내 Nb 이온의 확산을 제어하는 Co 이온의 역할로 설명하였다. Nb 이온의 확산제어로 인한 적정 core/shell 형성이라는 관점에서 보면 선택된 첨가량 수준에서는 0.5 mol% CoO 첨가가 효과적임을 알 수 있으며, CoO 첨가시 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 첨가량도 함께 고려되어야 함을 알 수 있다. Hennings에 의하면 소결온도를 증가시킬 경우 첨가제의 확산 증가로 core/shell의 부피분율이 감소되어 온도안정성이 사라진다고 하였다.<sup>11</sup> 본 실험의 경우 첨가량을 조절하였기 때문에 직접적인 비교는 어려우나 첨가제가 과량 첨가된 경우 grain 내부로 확산이 증가할 수 있으며 이로 인해 core/shell 부피분율이 감소하리라 사료된다. 1.2 mol% Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 단일 첨가시 2.15% 였던 상온 유전손실율(DF)은 0.5 mol% CoO가 첨가됨에 따라 1.24%로 낮아졌으며, 그 이상의 첨가량에서는 다소 증가하였다. 측정 온도 전반에 따른 유전율의 안정적인 변화는 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/CoO의 첨가비가 0.9/0.5, 1.2/0.5의 특정 mol%를 갖는 경우에만 관찰되었으며, 이러한 현상은 Co에 의해 Nb의 격자내 확산이 효과적으로 제어됨으로써 grain내의 core/shell이 적정 분율로 형성되고, 유전특성은 이들의 상호 보완적인 중첩효과로서 해석될 수 있다.

3.2. 소결 온도 변화

유전특성의 온도안정성이 관찰된 1.2Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-0.5CoO 첨가체에 대하여 소결 온도에 따른 유전특성의 변화를 관찰하였다. Fig. 8에 상온 유전상수, 선수축율(LS), -55°C와 125°C에서의 TCC, 그리고 DF를 소결온도의 함수로 나타내었다. 유전상수는 소결온도 1300°C까지는 증가하며 그 이상에서는 일정한 값을 가진다. BaTiO<sub>3</sub>의 분말특성, 첨가제의 종류에 따라 다르겠지만, 본 실험 조건에서는 1300°C에서 이미 치밀화가 이루어졌다고 사료되며 유사한 경향을 나타내는 선수축율이 이를 뒷받침한다. 25°C를 기준으로 한 -55°C와 125°C에서의 유전율 변화는 소결 온도 증가에 따라 큰 변화폭을 가졌다. 온도안정성이 사라짐을 의미한다. 소결 온도의 증가로 첨가제의 grain 내부로의 확산이 촉진되어 core/shell 부피분율을 변화시킴으로써 나타난 결과라 사료되며, 이러한 결과는 유사한 실험을 한 Hennings의 연구 결과와 잘 일치한다.<sup>11</sup> DF 특성은 소결온도 증가에 따른 치밀화로 인하여 감소할 것이라 예측되었으나, 큰 변화없이 1.5% 이내로 관찰되었다. 따라서 온도안정성과 높은 유전상수를 만족하기 위해서는 소결온도 1300°C가 적절하다고 사료된다.

4. 결 론

1. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-CoO 첨가체는 2 mol%의 전체 첨가량 내에서 1.2-0.5, 0.9-0.5 첨가비를 갖는 경우 BaTiO<sub>3</sub>의 유전율 온도안정성을 향상시켰다.
2. Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 1.5 mol% 이상 첨가는 CoO가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>의 125°C에서의 유전율을 감소시켰으며 낮은 온도로 T<sub>r</sub> 이동과 함께 유전율 온도안정성을 감소시켰다.
3. 0.9, 1.2 mol% Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 첨가된 BaTiO<sub>3</sub>의 유전율 온도안정성은 0.5 mol% CoO 첨가로 향상되었으며 그 효과는 음의 온도영역에서 보다 현저하였다.
4. 소결온도 증가로 소결체의 치밀화에 따른 상온 유전율이 증가하였으나 유전율의 온도 안정성이 감소되었다. 이는 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>와 CoO 첨가제의 확산정도 증가로 core/shell의 부피비 감소와 shell내의 상이 균일하게 됨에 따른 현상이라 사료된다.

REFERENCES

1. B. S. Rawal, M. Kahn and W. R. Buessem, "Grain Core-Shell Structures in Barium Titanate-based Dielectrics," *Advances in Ceramics*, **1**, 172-187 (1981).
2. S. K. Chiang, W. E. Lee and D. W. Readey, "Core-Shell Structure in Doped BaTiO<sub>3</sub>," *Ceramic Bulletin*, **66**(8), 1230 (1987).

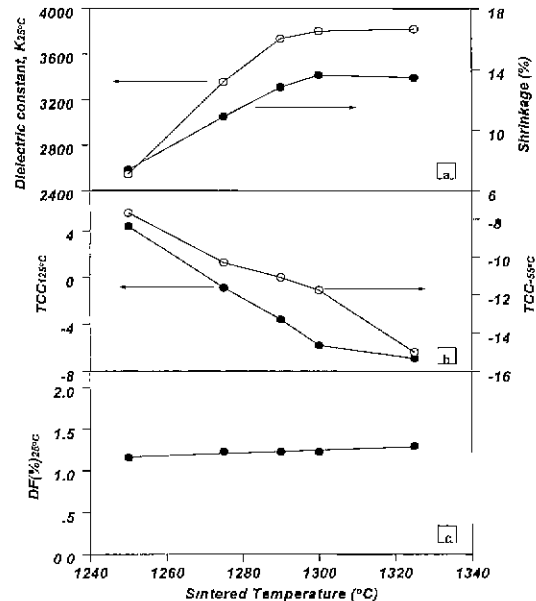


Fig. 8. Effect of sintering temperature on dielectric properties of BaTiO<sub>3</sub> doped with 1.2 mol% Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and 0.5 mol%CoO.

3. A. J. Moulson and J. M. Herbert, "Electroceramics," pp 246-247. Chapman & Hall, London, 1977.
4. M. E. Lines and A. M. Glass, Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials, pp. 285-292, Clarendon Press, Oxford, 1977.
5. H. J. Hagemann, D. Hennings and R. Wernicke, "Ceramic Multilayer Capacitor," *Philips. Tech. Rev.*, **41**(3), 89-98 (1983).
6. E. C. Subbarao and G. Shirane, "Dielectric and Structural Studies in the Systems Ba(Ti,Nb)O<sub>3</sub> and Ba(Ti, Ta)O<sub>3</sub>," *J. Am. Ceram. Soc.*, **42**(6), 279-284 (1981).
7. M. Kahn, "Influence of Grain Growth on Dielectric Properties of Nb-doped BaTiO<sub>3</sub>," *J. Am. Ceram. Soc.*, **54**(9), 455-457 (1971).
8. I. Burn., "Temperature-Stable Barium Titanate Ceramics Containing Niobium Pentaoxide," *Electrocomp. Sci. Tech.*, **2**, 241-247 (1976).
9. X. Y. Song, D. R. Chen and Z. W. Yin, "Grain Core-Grain Shell Structure in Nb doped BaTiO<sub>3</sub> Capacitor Ceramics," *Ceramic Transactions*, **41**, 129-134 (1993)
10. D. F. K. Hennings and B. S. Schreinemacher, "Temperature-stable Dielectric Materials in the system BaTiO<sub>3</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Co<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *J. Euro Ceram. Soc.*, **14**, 463-471 (1994).
11. D. Hennings and G. Resenstein. "Temperature-Stable Dielectric based on Chemically Inhomogeneous Ba-TiO<sub>3</sub>," *J. Am. Ceram. Soc.*, **67**(4), 249-254, (1984).