

Zn-Pr-Co-Cr-Dy 산화물계 바리스터 세라믹스의 전기적 안정성

남춘우[†] · 박종아 · 김명준 · 류정선*

동의대학교 전기공학과

*동의대학교 전자세라믹스센터

(2003년 8월 30일 접수; 2003년 10월 9일 승인)

Electrical Stability of Zn-Pr-Co-Cr-Dy Oxides-based Varistor Ceramics

Choon-Woo Nahm,[†] Jong-Ah Park, Myung-Jun Kim, and Jung-Sun Ryu*

Department of Electrical Engineering, Donggeui University, Busanjin-Gu, Busan 614-714, Korea

*Electronic Ceramics Center, Donggeui University, Busanjin-Gu, Busan 614-714, Korea

(Received August 30, 2003; Accepted October 9, 2003)

초 록

Zn-Pr-Co-Cr-Dy 산화물계로 구성된 바리스터 세라믹스의 전기적 안정성을 몇 가지 DC 가속열화 스트레스 조건하에서 0.0~2.0 mol% Dy₂O₃ 첨가량의 변화에 따라 조사하였다. 바리스터 세라믹스의 밀도는 Dy₂O₃ 첨가량이 0.5 mol%까지 증가 하였으며, 보다 많이 첨가하면 감소하는 것으로 나타났다. 밀도는 전도경로와 밀접한 관계로 인해서 안정성에 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다. Dy₂O₃ 첨가는 바리스터 세라믹스의 비직선 지수를 45 이상, 누설전류를 대략 1.0 μA 이하로 비직선성을 크게 개선시켰다. DC 스트레스 조건 0.95 V_{1mA}/150°C/24 h에서 안정성을 조사한 결과, 0.5 mol% 첨가시 상대적으로 가장 높은 안정성을 나타내었다. 전압-전류특성에 있어서 바리스터 전압, 비직선 지수, 누설전류의 변화율은 각각 -0.9%, -14.4%, +483.3%이었으며, 유전특성에 있어서 비유전을 및 손실계수의 변화는 각각 +7.1%, +315.4%이었다. 그 외의 바리스터 세라믹스는 낮은 밀도 때문에 열폭주 현상을 나타내는 매우 불안정한 특성을 나타내었다.

ABSTRACT

The electrical stability of the varistor ceramics composed of Zn-Pr-Co-Cr-Dy oxides-based varistors was investigated at 0.0 ~ 2.0 mol% Dy₂O₃ content under DC accelerated aging stress. The ceramic density was increased up to 0.5 mol% Dy₂O₃, whereas further addition of Dy₂O₃ decreased sintered ceramic density. The density sailently affected the stability due to the variation of conduction path. The nonlinearity of varistor ceramics was greatly improved above 45 in the nonlinear exponent and below nearly 1.0 μA by incorporating Dy₂O₃. Under 0.95 V_{1mA}/150°C/24 h stress state, the varistor ceramics doped with 0.5 mol% Dy₂O₃ exhibited the highest electrical stability, in which the variation rates of varistor voltage, nonlinear exponent, and leakage current were -0.9%, -14.4%, and +483.3%, respectively. The variation rates of relative permittivity and dissipation factor were +7.1% and +315.4%, respectively. The varistors with further addition of Dy₂O₃ exhibited very unstable state resulting in the thermal runaway due to low density.

Key words : Varistor ceramics, Zn-Pr-Co-Cr-Dy oxides-based varistors, Nonlinearity, DC accelerated aging stress, Stability

1. 서 론

ZnO 바리스터 세라믹스는 주성분인 ZnO에 비직선성 유발 산화물과 성능 개선용 산화물 등을 첨가함으로써 발생하는 세라믹스 입계의 비선형적인 전류-전압 특성을 이용한 반도체 저항소자이다. 정특성은 대항성 체너 다이오드와 흡사하지만 3차원적인 다접합 구조 때문에 에너지 흡수성이 훨씬 뛰어나며 응답속도 또한 빠르다. 보통 회로에 병렬로 연결되어 상규전압 인가시에는 미소 누설전

류만 흐르는 절연체로 동작하지만 과도이상전압이 인가 시에는 매우 높은 도전성으로 스위칭되어 높은 전류를 대지로 방전시키고, 다시 정상상태로 스위칭되는 일종의 써지 스위칭 소자이다. 이와 같은 ZnO 바리스터 세라믹스는 각종 써지로부터 전자기기를 보호하는 써지 흡수기에서 전력설비를 보호하는 피뢰기까지 광범위하게 응용되고 있다.¹⁻⁴⁾

고도 정보화 사회로 진입함에 따라 전기전자 시스템 및 각종 부품은 경박단소화되었다. 그로 인해 전기전자 시스템은 기존의 써지에 매우 취약한 상태로 노출되어 보다 높은 신뢰성을 얻기 위해 고품질 ZnO 바리스터 세라믹스의 개발이 요구되고 있다. 바리스터가 개발된 이래 지금까지 실계통에서는 Bi₂O₃가 첨가된 바리스터 세라믹스

[†]Corresponding author : Choon-Woo Nahm
E-mail : cwnahm@donggeui.ac.kr
Tel : +82-51-890-1669 Fax : +82-51-890-1664

가 주류를 이루고 있다. 하지만 Bi_2O_3 자체의 높은 반응성과 휘발성 등으로 인한 몇 가지 문제점을 보완하기 위해 최근에는 Pr_6O_{11} 이 첨가된 바리스터 세라믹스에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다.⁵⁻¹⁴ 실용가능성 측면에서 바리스터 세라믹스는 높은 비직선성과 다양한 스트레스에 대한 안정성을 갖는 것이 매우 중요하다.

본 연구에서는 Zn-Pr-Co-Cr-Dy 산화물계 바리스터에서 Dy_2O_3 첨가가 비직선성 및 DC 가속열화 특성에 미치는 영향을 조사하여 응용가능성을 고찰하였다.

2. 실험방법

2.1. 시편 제작

(97.0-x) mol% ZnO, 0.5 mol% Pr_6O_{11} , 2.0 mol% CoO, 0.5 mol% Cr_2O_3 , x mol% Dy_2O_3 (x=0.0~2.0) 조성식에 따라 순도 99.9% 시료를 10 μg 의 오차범위까지 칭량한 다음, 지르코니아 불과 아세톤이 든 폴리프로필렌 용기에 넣어 24시간동안 불밀하였다. 120°C에서 12시간동안 건조시킨 후, 750°C에서 2시간 하소시켰다. 시편 양만큼의 시료를 마노유발로 재분쇄한 다음, 성형조제 PVA를 시료 무게의 2 wt% 첨가시켜 균일하게 혼합하여 200 mesh 체로 조립하였다. 800 kg/cm^2 압력하에서 직경이 10 mm, 두께가 1.8 mm가 되게 원판형으로 성형한 후, 같은 조성의 분위기 분말과 함께 도가니에 넣어 4°C/min의 상승·하강율로 1350°C에서 1시간 소결하였다. 소결된 시편을 1.0 mm 두께로 연마하여 초음파 세척 후, 직경이 5 mm되게 양면에 은전극을 도포한 다음, 600°C에서 10분간 열처리하여 오염성 접촉이 되게 하였다.

2.2. 미세구조 관찰

시편의 한면을 SiC 연마지로 래핑하여 0.3 μm Al_2O_3 분말로 경면가공한 다음, 1100°C에서 20분간 열적 에칭한 후, 표면을 Au로 코팅하여 SEM(S2400, Hitachi)으로 미세구조를 관찰하였다. 평균 결정립 크기(d)는 선형교차기법에 의한 식 (1)로부터 구하였다.¹⁵⁾

$$d = 1.56 \cdot \frac{C_{eff}}{MN_{eff}} \quad (1)$$

여기서 C_{eff} 는 test-line의 유효길이, M 은 SEM의 배율, N_{eff} 은 입계와 test-line과의 유효교차수로 결정되었다.¹⁹⁾ 세라믹스의 밀도(ρ)는 밀도측정용 소프트웨어가 장착된 전자천평기를 이용하여, 아르키메데스원리에 의한 식 (2)로써 계산하였다.

$$\rho = \rho_o \cdot \frac{W}{W - W_o} \quad (2)$$

여기서 ρ_o 는 물의 밀도, W 는 공기속에서 시편의 무게,

W_o 는 물속에서 시편의 무게이다.

2.3. 전기적 특성 측정

전압-전류($V-I$) 특성은 High Voltage Source-Measure Unit (Keithley 237)을 사용하여 전류밀도 50 mA/cm^2 까지 측정하였다. 바리스터 전압($V_{1\text{mA}}$)은 전류밀도가 1 mA/cm^2 일 때의 전압으로, 누설전류(I_l)는 0.80 $V_{1\text{mA}}$ 에서의 전류로 정의되었으며, 비직선 지수(α)는 식 (3)으로 계산하였다.

$$\alpha = \frac{1}{\log(V_{10\text{mA}}/V_{1\text{mA}})} \quad (3)$$

여기서 $V_{1\text{mA}}$ 와 $V_{10\text{mA}}$ 는 전류밀도 1 mA/cm^2 와 10 mA/cm^2 에 각각 대응되는 전압이다.

유전특성은 100 Hz~2 MHz 범위의 주파수를 갖는 1 V_{rms} 소신호를 사용하여 RLC 미터(QuadTech 7600)로 조사하였다.

2.4. DC 가속열화 시험

안정성을 평가하기 위해서 스트레스 인가전 V-I 특성을 측정한 시편에 다음과 같은 각각의 DC 가속열화 스트레스를 인가하였으며, 각 스트레스 인가시 1분 간격으로 전류가 측정, 기록되도록 하였다.

1차 스트레스-0.85 $V_{1\text{mA}}/115^\circ\text{C}/24$ h

2차 스트레스-0.90 $V_{1\text{mA}}/120^\circ\text{C}/24$ h

3차 스트레스-0.95 $V_{1\text{mA}}/125^\circ\text{C}/24$ h

4차 스트레스-0.95 $V_{1\text{mA}}/150^\circ\text{C}/24$ h

1차 DC 스트레스가 완료된 다음, 전기적 특성을 측정하였으며, 계속적으로 2, 3, 4차 스트레스를 바리스터에 인가하여 1차 스트레스와 동일하게 전기적 특성을 측정하였다. 스트레스 인가동안 스트레스 시간에 따른 누설전류의 변화인 열화율 계수(K_T)는 식 (4)로 계산하였다.¹⁶⁾

$$I_l = I_{l0} + K_T \cdot \sqrt{t} \quad (4)$$

여기서 I_l 은 시간 t 에서 누설전류, I_{l0} 는 $t=0$ 에서 I_l 이다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 Dy_2O_3 첨가량에 따른 바리스터 세라믹스의 미세구조를 나타낸 것이다. Dy_2O_3 첨가량이 증가할수록 기공의 양이 전반적으로 증가하였고, 밀도(ρ)는 5.49~4.64 g/cm^3 범위로 나타났다. Dy_2O_3 첨가량이 0.5 mol%인 바리스터에서 약간 증가하였으나 그 이상 첨가된 바리스터는 첨가되지 않은 바리스터에 비해 오히려 낮게 나타났다. 평균 결정립 크기(d)는 Dy_2O_3 첨가량이 증가할수록 18.2~4.6 μm 로 감소하였다. 따라서 Dy_2O_3 는 ZnO의 평균 결정립을 작게 하고, 치밀성을 저하시키는 첨가제였다. Dy_2O_3 첨가에 따른 밀도 및 평균 결정립의 크기는 Table

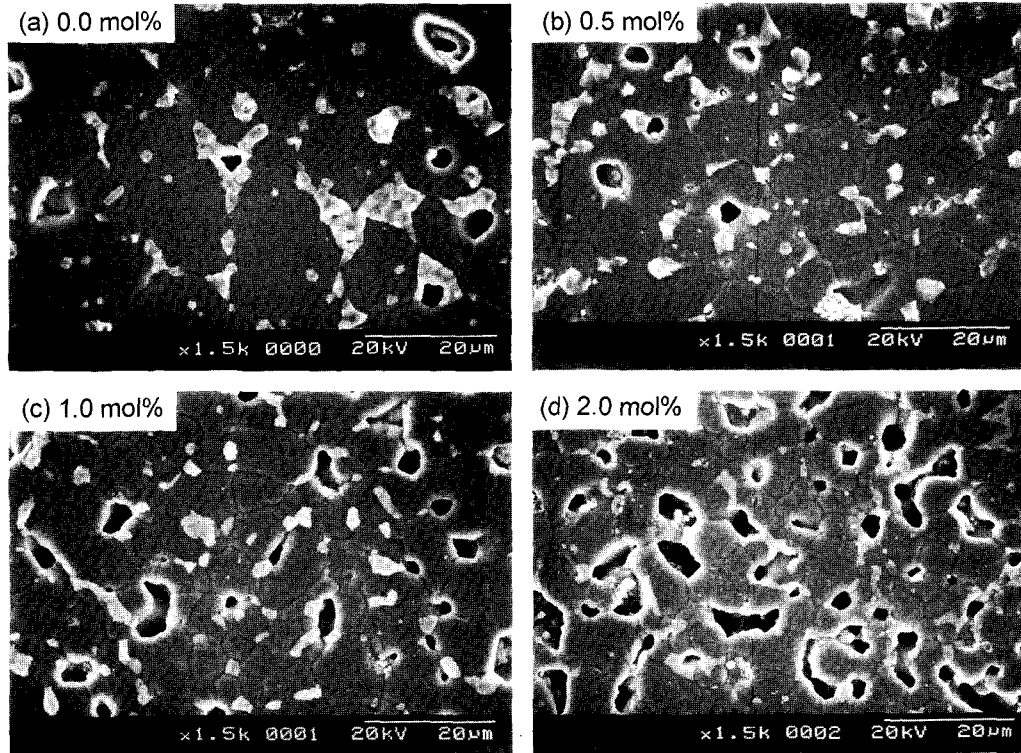


Fig. 1. SEM micrographs of varistor ceramics with various Dy₂O₃ contents.

Table 1. Microstructural and the *V-I* Characteristic Parameters of Varistor Ceramics with Various Dy₂O₃ Contents

Dy ₂ O ₃ content (mol%)	<i>d</i> (µm)	ρ (g/cm ³)	<i>V</i> _{1mA} (V/mm)	<i>V</i> _{gb} (V/gb)	α	<i>I</i> _l (µA)
0.0	18.2	5.45	45.0	0.8	5.0	85.5
0.5	14.5	5.49	181.9	2.6	55.3	0.1
1.0	8.4	5.16	338.3	2.9	58.6	0.7
2.0	4.6	4.64	481.0	2.2	48.8	1.1

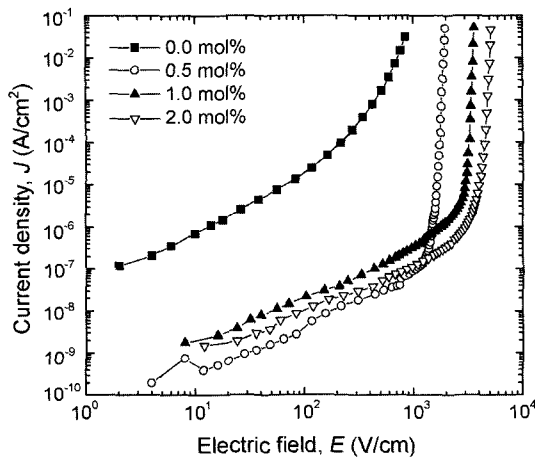


Fig. 2. *J-E* characteristics of varistor ceramics with various Dy₂O₃ contents.

1에 요약하여 나타내었다.

Fig. 2는 바리스터 세라믹스의 Dy₂O₃ 첨가량에 따른 *J-E* 특성을 나타낸 것이다. Dy₂O₃가 첨가되지 않은 바리스터 세라믹스는 측정범위 내에서 완만한 곡선형태를 나타내지만 Dy₂O₃가 첨가된 바리스터 세라믹스의 곡선은 현저한 꺾임성을 나타내었다. 이러한 꺾임성의 증가는 비직선성이 향상되었음을 나타내는데, Dy₂O₃를 첨가함으로써 비직선지수(α)가 5.0에서 48.8~58.6 범위로 증가하였다. 또한 Dy₂O₃의 첨가는 바리스터 세라믹스의 누설전류(*I*_l)를 85.5 µA에서 0.1~1.1 µA 범위로 현저히 감소시켰다. 바리스터 전압(*V*_{1mA})은 유효입계수의 증가에 기인하며, Dy₂O₃ 첨가량에 따라 45.0~481.0 V/mm 범위로 증가하였다. 입계당 바리스터 전압(*V*_{gb})은 Dy₂O₃가 첨가된 바리스터 세라믹스에서 2.6~2.9 V 범위로 나타나 활성입계임이 확인되었다. 상세한 *V-I* 특성 파라미터를 Table 1에 요약하여 나타내었다.

Fig. 3은 Dy₂O₃ 첨가량에 따른 바리스터 세라믹스의 DC 가속열화 스트레스 동안의 누설전류 변화를 나타낸 것이다. 스트레스 시간에 따른 누설전류의 변화로부터 바리스터의 열화 정도를 예측할 수 있는데 이 때 사용되는 정량적인 파라미터가 열화를 계수(*K*_T)이다. DC 가속열화에 대한 저항력은 소자에서 일어나는 누설전류에 의한 주열과 관계가 있다. Dy₂O₃가 1.0 mol%와 2.0 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스는 1차 스트레스를 견디지 못하고 단

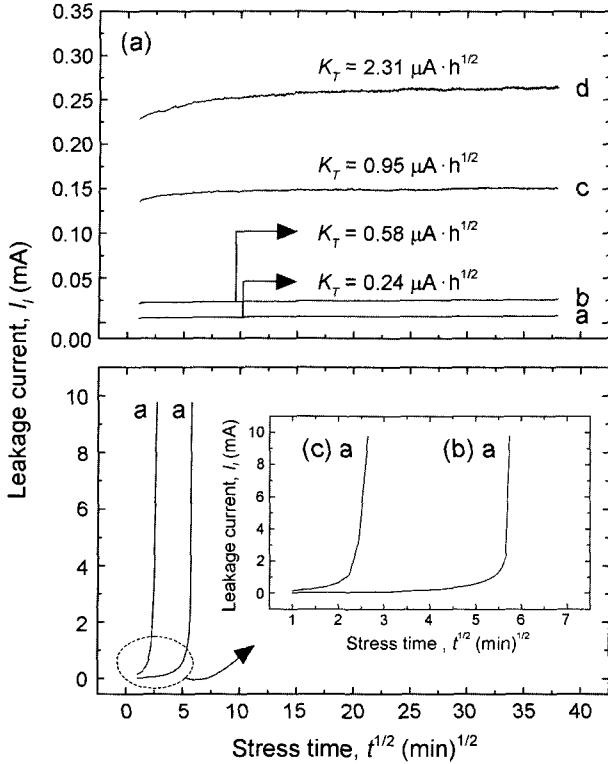


Fig. 3. Leakage current of varistor ceramics with various Dy₂O₃ contents during DC accelerated aging stress; (a) 0.5 mol%, (b) 1.0 mol%, and (c) 2.0 mol%, a: 1st, b: 2nd, c: 3rd, and d: 4th.

시간에 열폭주 현상이 발생하였다. 이것은 상기 바리스터 세라믹스가 낮은 누설전류에도 불구하고, 열폭주 현상이 일어나는 것은 Dy₂O₃의 첨가에 의한 기공의 증가로 전도 경로가 감소함으로써 누설전류가 집중됨에 따라 입계당 누설전류밀도의 증가 때문인 것으로 판단된다. 반면에 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스는 스트레스 강도가 세어짐에 따라 누설전류가 증가하나 각 스트레스에서 누설전류 증가율이 완만하게 증가하는 낮은 PCLC(Positive Creep of Leakage Current)를 보이고 있다. 4차 스트레스 동안 누설전류가 0.3 mA 이하로 나타났고, K_T 도 $2.31 \mu A \cdot h^{-1/2}$ 정도로 비교적 작은 것으로 나타났다.

Fig. 4는 Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스의 DC 가속열화 스트레스 전·후의 $J-E$ 특성을 나타낸다. 예비항복영역에서 스트레스에 따른 특성곡선들 간의 변화폭은 안정성과 직접적으로 관련이 있으며, 바리스터의 안정성에 대한 상대적 평가척도가 된다. 스트레스 차수가 증가함에 따라 곡선이 위쪽으로 이동하는 것을 볼 수가 있다. 이것은 누설전류의 증가를 나타내며 점차적으로 열화가 진행됨을 의미한다. 스트레스를 가했을 때 나타나는 곡선들간의 폭이 3차까지는 미세하여 안정성이 우수하였으나, 스트레스가 가혹해진 4차에서는 상대적으로 변화의 폭이 커졌음을 확인할 수가 있다.

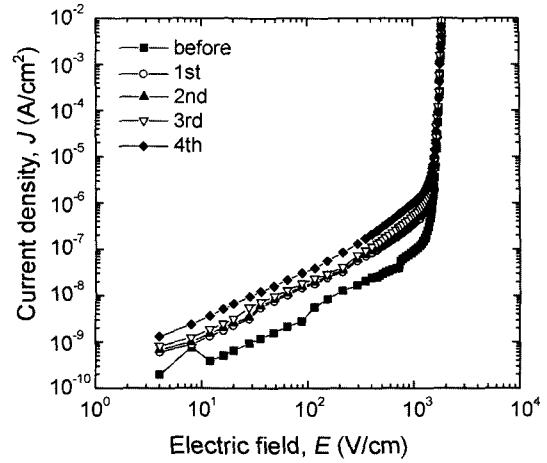


Fig. 4. $J-E$ characteristics of varistor ceramics with 0.5 mol% Dy₂O₃ before and after DC accelerated aging stress.

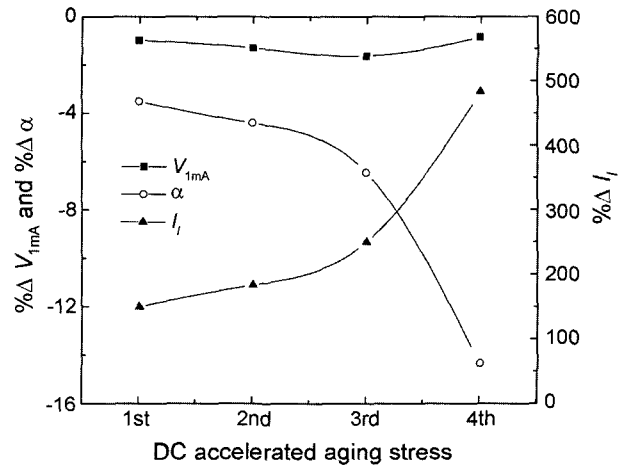


Fig. 5. Variation rate of $V-I$ characteristic parameters of varistor ceramics with 0.5 mol% Dy₂O₃ before and after DC accelerated aging stress.

Fig. 5는 Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스의 DC 가속열화 스트레스 전·후의 $V-I$ 특성 파라미터 변화를 나타내었다. $V-I$ 특성 파라미터의 변화율은 스트레스에 따른 안정성 평가척도에 중요한 요소이다. 특히 바리스터 전압 변화율($\% \Delta V_{1mA}$)은 바로 열화로 이어지기 때문에 $\% \Delta V_{1mA}$ 이 작은 것이 안정성이 좋은 바리스터 세라믹스라 할 수 있다. 실용화된 바리스터 세라믹스의 통상적인 $\% \Delta V_{1mA}$ 은 $0.85 V_{1mA}/85^\circ C/1000 h$ 조건의 스트레스 동안 10% 이내로 규정하고 있다. Table 2에 기록한 바와 같이 Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터의 경우 스트레스가 진행되는 동안 $\% \Delta V_{1mA}$ 은 $-0.9 \sim -1.6\%$ 로 거의 변화가 없었다. 비직선 지수는 4차 스트레스 후 55.3~47.4로 14.4% 감소하였으며, 반대로 누설전류는 0.1 μA 에서 0.7 μA 로 483.3% 증가하였다. 하지만 비직선 지수는 47.7로 여전히 높은 값을 유지하고 있으며, 누설전류 또한 0.7 μA

Table 2. Variation of V-I Characteristic Parameters of Varistor Ceramics with Various Dy₂O₃ before and after DC Accelerated Aging Stress

Dy ₂ O ₃ content	Stress condition	V _{1mA} (V/mm)	%ΔV _{1mA}	α	%Δα	I _l (μA)	%ΔI _l
0.0	before	50.0	0	5.0	0	85.6	0
	1st	33.4	-25.8	3.8	-23.2	100.0	17.0
	2nd	32.2	-28.5	3.7	-24.8	100.0	17.0
	3rd	32.1	-28.7	3.7	-24.8	100.0	17.0
	4th	37.2	-17.3	4.2	-15.5	93.8	9.8
0.5	before	181.9	0	55.3	0	0.1	0
	1st	180.1	-1.0	53.4	-3.5	0.3	150.0
	2nd	179.6	-1.3	52.9	-4.4	0.3	183.3
	3rd	179.0	-1.6	51.8	-6.5	0.4	250.0
	4th	180.4	-0.9	47.4	-14.4	0.7	483.3
1.0	before	338.3	0	58.6	0	0.7	0
	1st	Thermal runaway					
2.0	before	481.0	0	48.8	0	1.1	0
	1st	Thermal runaway					

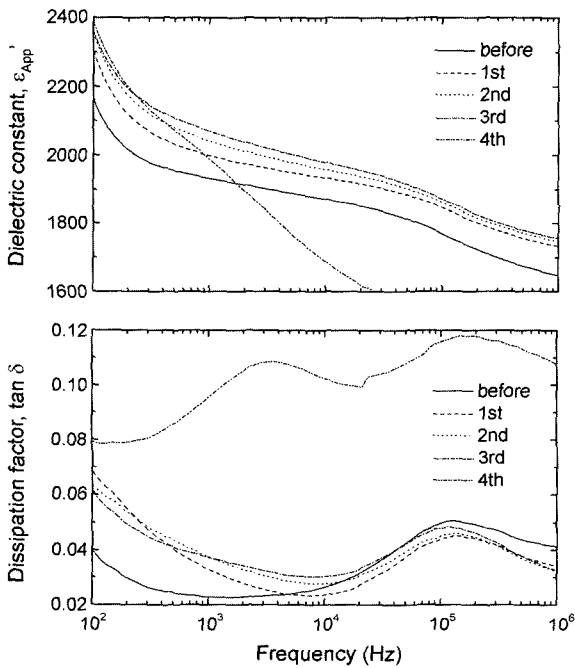


Fig. 6. Dielectric characteristics of varistor ceramics with 0.5 mol% Dy₂O₃ before and after DC accelerated aging stress.

로 수 μA대의 낮은 전류를 나타냄으로서 응용가능성이 충분하다고 판단된다. Dy₂O₃가 0.0 mol% 첨가된 바리스터는 초기 누설전류가 85.6 μA로 상당히 높았으나 4차 스트레스까지 열폭주 현상은 일어나지 않았다. 이것은 상대적으로 나쁜 비직선성으로 인해 이미 노화가 된 상태라고 판단할 수 있다. 하지만 바리스터 세라믹스의 대표적

인 특징이 비음성에 있다고 볼 때 이것은 음성에 가깝고, 낮은 비직선 지수와 높은 누설전류는 에너지 흡수능력과 응답속도 등이 상당히 떨어질 것이며, 실용 가능성 측면에서 볼 때 응용이 어려울 것으로 판단된다.

Fig. 6은 Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스의 DC 가속열화 스트레스 전·후의 유전 특성을 나타낸 것이다. 비유전율(ε_{APP})은 3차 스트레스까지는 스트레스가 진행함에 따라 점차 증가하였다. 이것은 노화가 진행됨에 따라 식 (5)에서 알 수 있는 바와 같이 바리스터의 입계에서 공핍층 폭(*t*)의 감소에 의한 결과로 해석할 수 있다, 그러나 4차 스트레스 후의 경우 200 Hz 부근에서 비유전율은 급격히 감소하였다. 손실계수(tan δ)는 1~3차 스트레스까지는 큰 변화를 보이지 않았으나, 4차 스트레스에서는 현저히 증가하였다. 또한 4차 스트레스에서는 100 kHz 부근에서 나타나는 배향분극에 의한 손실피크 이외에 4 kHz 부근에서도 추가적인 피크가 나타났다.

$$\epsilon_{APP}' = \epsilon_g \cdot \frac{d}{t} \tag{5}$$

Fig. 7은 Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스의 DC 가속열화 스트레스 전·후의 유전 특성 파라미터 변화를 나타낸 것이다. 전체적으로 4차 스트레스 후의 유전곡선은 3차 스트레스 이전과는 달리 이탈하였음을 알 수 있다. 이것은 앞서 설명한 전도특성에서와 같이 유전 특성에서도 4차 스트레스에서 특성의 변화가 큼을 보여주는 것이다. 스트레스가 증가함에 따라 1 kHz에서의 비유전율의 변화율은 3차 스트레스까지는 증가하였으며 그때의 최대변화율은 7.1%를 나타내었다. 그러나 4차 스트레스에서는 오히려 감소하는 이상현상을 나타내었다. 이것은 공핍층내의 공간전하의 불균일 분포에 의한 것으로

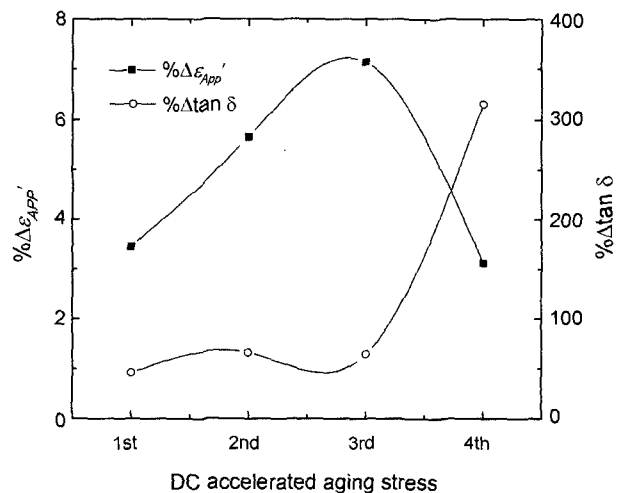


Fig. 7. Variation rate of dielectric characteristic parameters of varistor ceramics with 0.5 mol% Dy₂O₃ before and after DC accelerated aging stress.

Table 3. Variation of Dielectric Characteristic Parameters of Varistor Ceramics with 0.5 mol% Dy₂O₃ before and after DC Accelerated Aging Stress

Stress condition	ϵ_{APP}'	$\% \Delta \epsilon_{APP}'$	$\tan \delta$	$\% \Delta \tan \delta$
before	1933.9	0	0.0228	0
1st	2000.6	3.5	0.0332	45.6
2nd	2043.2	5.7	0.0378	65.8
3rd	2071.9	7.1	0.0374	64.1
4th	1994.1	3.1	0.0947	315.4

사료된다. 손실계수의 변화율은 3차 스트레스까지는 큰 변화없이 65.8% 이하로 유지 후, 4차 스트레스에서 315.4%로 급격히 증가하였다. 스트레스가 진행될수록 손실계수의 증가는 누설전류 증가의 영향으로 판단된다. 자세한 유전 특성 파라미터 변화를 Table 3에 요약하여 나타내었다.

4. 결 론

Zn-Pr-Co-Cr-Dy 산화물계 바리스터 세라믹스를 1350°C에서 1 h 소결한 후 Dy₂O₃ 첨가량에 따른 비직선성 및 유전특성의 DC 가속열화 특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Dy₂O₃가 첨가된 바리스터는 비직선성이 크게 개선되었으나 소정의 첨가 이상되면 세라믹스의 밀도가 현저히 감소하는 것으로 나타났다.
2. 세라믹스의 밀도는 전기적 전도경로와의 밀접한 관계로 전기적 안정성에 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다.
3. Dy₂O₃가 0.5 mol% 이상 첨가된 바리스터 세라믹스는 낮은 밀도 때문에 안정성이 현저히 낮은 것으로 나타났다.
4. Dy₂O₃가 0.5 mol% 첨가된 바리스터 세라믹스는 0.95 V_{1mA}/150°C/24 h 스트레스 상태에서 바리스터 전압 변화율이 -0.9%로 높은 안정성을 나타내었다.

감사의 글

본 결과물은 과학기술부 · 한국과학재단에서 지정한 지역협력연구센터(RRC) 및 산업자원부 · 한국산업기술평가원에서 지정한 지역기술혁신센터(TIC)인 동의대학교 전자세라믹스센터의 지원을 받았습니다.

REFERENCES

1. L. M. Levinson and H. R. Pilipp, "Zinc Oxide Varistor-a Review," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **65** [4] 639-46 (1986).
2. T. K. Gupta, "Application of Zinc Oxide Varistor," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73** [7] 1817-40 (1990).
3. D. R. Clarke, "Varistors Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **82** [3] 485-502 (1999).
4. Y.-S. Lee and T.-Y. Tseng, "Phase Identification and Electrical Properties in ZnO-glass Varistors," *J. Am. Ceram. Soc.*, **75** [6] 1636-40 (1992).
5. A. B. Alles and L. Burdick, "The Effect of Liquid-phase Sintering on the Properties of Pr₆O₁₁-based ZnO Varistors," *J. Appl. Phys.*, **70** [11] 6883-90 (1991).
6. A. B. Alles, R. G. Puskas, Callahan, and V. L. Burdick, "Compositional Effect on the Liquid-phase Sintering of Praseodymium Oxides-based ZnO Varistors," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** 2098-102 (1993).
7. Y.-S. Lee, K.-S. Liao, and T.-Y. Tseng, "Microstructure and Crystal Phases of Praseodymium Oxides in Zinc Oxide Varistor Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **79** [9] 2379-84 (1996).
8. H. H. Hng and K. M. Knowles, "Microstructure and Current-voltage Characteristics of Praseodymium-doped Zinc Oxide Varistors Containing MnO₂, Sb₂O₃ and Co₃O₄," *J. Mater. Sci.*, **37** [6] 1143-54 (2002).
9. C.-W. Nahm, "ZnO-Pr₆O₁₁-CoO-Cr₂O₃-Er₂O₃ Based-ceramic Varistors with High Stability of Nonlinear Properties," *J. Mater. Sci. Lett.*, **21** [3] 201-04 (2002).
10. C.-W. Nahm and B.-C. Shin, "Effect of Sintering Temperature on Electrical Properties and Stability of Pr₆O₁₁-based ZnO Varistors," *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, **13** [2] 111-20 (2002).
11. C.-W. Nahm and H.-S. Kim, "Influence of Cooling Rate on Stability of Nonlinear Properties of ZnO-Pr₆O₁₁-based Varistor Ceramics," *Mater. Lett.*, **57** [9-10] 1544-49 (2003).
12. C.-W. Nahm and B.-C. Shin, "Highly Stable Electrical Properties of ZnO-Pr₆O₁₁-CoO-Cr₂O₃-Y₂O₃-based Varistor Ceramics," *Mater. Lett.*, **57** [7] 1322-26 (2003).
13. C.-W. Nahm, "Microstructure and Electrical Properties of Y₂O₃ Doped ZnO-Pr₆O₁₁-based Varistor," *Mater. Lett.*, **57** [7] 1317-21 (2003).
14. C.-W. Nahm, "Influence of Praseodymium Oxide/Cobalt Oxide Ratio on Electrical Properties of Zinc Oxide Varistor Ceramics," *Mater. Chem. and Phys.*, **80** [3] 746-51 (2003).
15. J. C. Wurst and J. A. Nelson, "Lineal Intercept Technique for Measuring Grain Size in Two-phase Polycrystalline Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **97** [12] 109-11 (1972).
16. J. Fan and R. Freer, "Deep Level Transient Spectroscopy of Zinc Oxide Varistors Doped with Aluminum Oxide and/or Silver Oxide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77** [10] 2663-68 (1994).