

## Zn-Pr-Co-Er-M(M=Ni, Mg, Cr) 산화물계 바리스터의 전기적, 유전적 특성

남춘우<sup>†</sup> · 김명준

동의대학교 전기공학과

(2004년 6월 2일 접수; 2004년 7월 1일 승인)

## Electrical and Dielectric Characteristics of Zn-Pr-Co-Er-M(M=Ni, Mg, Cr) Oxides-Based Varistors

Choon-Woo Nahm<sup>†</sup> and Myung-Jun Kim

Department of Electrical Engineering, Dongeui University, Busan 614-714, Korea

(Received June 2, 2004; Accepted July 1, 2004)

### 초 록

다양한 금속산화물(NiO, MgO, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 첨가에 따른 ZnO 바리스터의 미세구조, 전기적, 유전적 특성을 조사하였다. 평균 결정립 크기는 NiO 첨가로 증가한 반면 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가로 감소하였다. 이로 인해 바리스터 전압은 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가시 더 높게 나타났다. 바리스터 가운데서 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 바리스터가 비직선 지수가 40.5, 누설전류가 2.7 μA로 가장 우수한 비직선성을 나타내었으며, 유전손실도 0.0589로 비교적 낮게 나타났다.

### ABSTRACT

The microstructure, electrical and dielectric characteristics of ZnO varistors were investigated at various metal oxide (NiO, MgO, and Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) additives. The average grain size was increased with addition of NiO while that was decreased with addition of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Thereby, the varistor voltage was higher in Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-added composition. Among varistors, the varistor added with Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> exhibited the highest nonlinearity, with 40.5 in the nonlinear exponent and 2.7 μA in the leakage current and its dielectric dissipation factor was relatively low value of 0.0589.

**Key words :** Microstructure, Nonlinear exponent, Nonlinearity, Leakage current, Dielectric dissipation factor

### 1. 서 론

현대사회는 첨단화가 가속화되면서 대부분의 전력·전기·전자·정보통신 장치들이 소형화, 고속화, 다기능화, 저소비 전력화를 지향하고 있다. 그러나 이러한 장치에 사용되는 필수 부품인 반도체 소자 및 IC칩 등의 동작 전압이 낮음으로 인한 절연내력이 과거의 소자들에 비해 떨어지기 때문에 충전과 동일한 뇌썩이나 개폐썩이에 대해서도 시스템이 오동작 하거나 파괴되는 등의 장애가 빈번하게 발생하고 있다. 이와 같은 각종 사고로부터 시스템을 보호하기 위한 대책으로 바리스터를 사용하는 것이 소형화, 경량화, 경제성 측면을 고려할 때 효과적인 방법이다. ZnO 바리스터는 주성분인 ZnO에 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Pr<sub>6</sub>O<sub>11</sub> 등의 비직선성 유발 산화물과 특성 개선용 산화물을 미량 첨가하여 적당한 온도에서 소결시킨 반도체 세라믹스 수

동부품이다. ZnO 바리스터는 상시 전압, 전류가 인가 될 때에는 절연체로서 동작하다, 썩지 전압, 전류에 대해서는 도체로서 동작하여 비직선적인 전류-전압 특성을 나타낸다. 또한 ZnO 결정입과, 입계가 일정한 크기내에 직·병렬로 무질서하게 연결되어 있는 다접합 구조로 인해 고전류 및 에너지 흡수 능력이 뛰어나다. 이러한 ZnO 바리스터의 높은 비직선성과 고에너지 흡수성은 각종 내·외부 썩지로부터 정보통신기기, 제어기기 등의 고가이면서 높은 신뢰성이 요구되는 장치를 보호하는데 없어서는 안 될 중요한 전자부품으로 부각되고 있다.<sup>1,2)</sup>

지금까지 연구되어진 ZnO 바리스터는 마쯔오카 6성분계<sup>3)</sup>를 기초로한 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 비직선성 유발 산화물로 첨가된 ZnO 바리스터 연구의 주를 이루고 있다. 그러나 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>계 ZnO 바리스터는 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 자체의 낮은 용점에 의한 높은 휘발성 및 반응성<sup>4)</sup>으로 인해서 미세구조적으로 불필요한 상이 많이 존재하며, 이로 인해 일정 부피내의 유효 입계수의 감소를 가져와 에너지 흡수 능력이 줄어드는 문제점을 안고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 최근에는 미세구조가 단순하여 에너지 흡수 능력이 뛰어나고, 안정

<sup>†</sup>Corresponding author : Choon-Woo Nahm  
E-mail : cwnahm@deu.ac.kr  
Tel : +82-51-890-1669 Fax : +82-51-890-1664

성이 높은  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ 계 ZnO 바리스터의 연구가 활발히 진행되어지고 있다.<sup>5-13)</sup>

본 연구에서는 ZnO- $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ -CoO- $\text{Er}_2\text{O}_3$ 계 세라믹스로 구성되는 기본 조성물에  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 계 ZnO 바리스터에 통상적으로 미량 첨가되어 특성개선을 꾀하는 NiO, MgO,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  금속 산화물을  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ 계에 적용시켜 미세구조 및 전기적 특성을 탐색하고자 한다.

## 2. 실험방법

### 2.1. 시편 제작

ZnO,  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ , CoO,  $\text{Er}_2\text{O}_3$ , 선택 첨가물(NiO, MgO,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ) 조성식에 따라 시료를 10  $\mu\text{g}$ 의 오차범위까지 칭량하였다. 칭량된 시료를 아세톤이 든 폴리프로필렌 용기에 넣어 24시간 혼합 및 분쇄하였고, 120°C에서 12시간 건조 후, 750°C에서 2시간 하소하였다. 하소된 분말을 시료무게의 2 wt% PVA 수용액과 마노유발에서 재분쇄한 다음, 200 mesh 체로 조립하였다. 800 kg/cm<sup>2</sup> 압력 하에서 직경이 10 mm 가 되게 성형한 후, 도가니에 넣어 같은 조성의 분위기 분말을 적당히 덮어 승·하강율(4°C/min)로 1350°C에서 1시간동안 소결하였다. 소결된 시편을 1.0 mm 두께로 연마한 후, Ag 전극을 직경이 5 mm되게 실크스크린 기법을 사용하여 도포하였다. 도포된 Ag 전극을 600°C에서 10분간 열처리한 후, 리드선을 부착하였다.

### 2.2. 미세구조 관찰

소결된 시편의 한면을 SiC 연마지로 래핑하여 0.3  $\mu\text{m}$   $\text{Al}_2\text{O}_3$  분말을 이용하여 거울 연마한 다음, 1100°C에서 20분간 열적 에칭한 후, SEM(S2400, Hitachi)으로 미세구조를 관찰하였다. 평균 결정립 크기( $d$ )는 선형교차기법에 의한 식 (1)로 결정되었다.

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

여기서  $C_{eff}$ 는 테스트 선의 유효길이,  $M$ 은 SEM의 배율,  $N_{eff}$ 은 입계와 테스트 선과의 유효교차수이다.<sup>14)</sup> 세라믹스의 밀도( $\rho$ )는 밀도측정용 소프트웨어가 장착된 전자천평기를 이용하여 측정하였으며, 아르키메데스 원리에 의한 식 (2)로 구하였다.

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

여기서  $\rho_o$ 는 물의 밀도,  $W$ 는 공기속에서 시편의 무게,  $W_o$ 는 물속에서 시편의 무게이다.

### 2.3. 전기적 특성 측정

전압( $V$ )-전류( $I$ ) 특성은 High Voltage Source-Measure Unit(Keithley 237)을 사용하여 전류밀도 50 mA/cm<sup>2</sup>까지 측정하였다. 바리스터 전압( $V_{1mA}$ )은 전류밀도가 1 mA/cm<sup>2</sup>

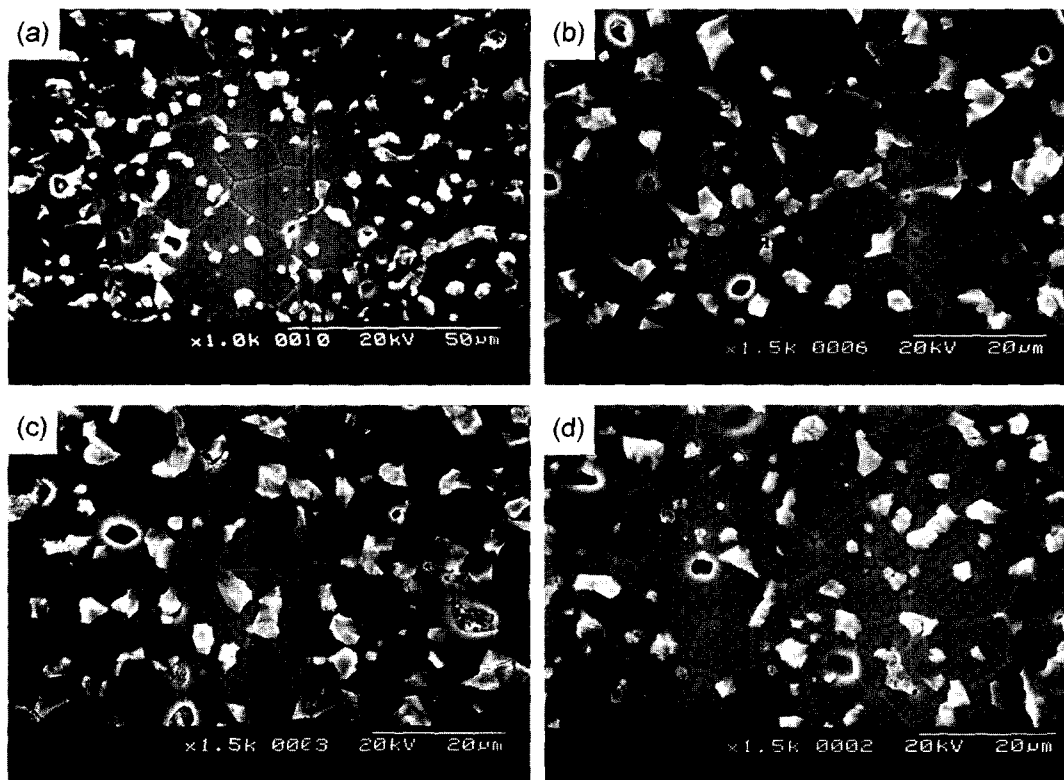


Fig. 1. SEM micrographs of varistors for different additives; (a) without, (b) NiO, (c) MgO, and (d)  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ .

일 때의 전압이고, 누설전류( $I_L$ )는  $0.80 V_{1mA}$ 에서 전류로 측정되었으며, 비직선 지수( $\alpha$ )는 관계식 (3)으로부터 구하였다.

$$\alpha = \frac{1}{\log E_2 - \log E_1} \quad (3)$$

여기서  $E_1$ 와  $E_2$ 는 전류밀도  $1 \text{ mA/cm}^2$ 와  $10 \text{ mA/cm}^2$ 에 각각 대응되는 전계이다.

유전특성은  $100 \text{ Hz} \sim 2 \text{ MHz}$  범위의 주파수를 갖는  $1 V_{rms}$  소신호를 사용하여 RLC 미터(Quadtech 7600)로 조사하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 선택 첨가물에 따른 미세구조를 관찰한 SEM 사진이다. 본 SEM 사진은 ZnO 결정립과  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$  및  $\text{E}_2\text{O}_3$ -과다상인 벌크 입간상 만이 존재하는 단순한 미세구조를 나타내고 있다. 이는 지금까지 보고되어진  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ 계 바리스터의 미세조직상과 별차이가 없다. 평균 결정립 크기( $d$ )는 NiO가 첨가된 경우  $18.6 \mu\text{m}$ 로 첨가전  $15.7 \mu\text{m}$ 에 비해 증가되었으며, 나머지 첨가물에서는  $14.2 \sim 15.8 \mu\text{m}$  범위로 조금 감소하거나 거의 비슷한 크기를 나타내었다. 바리스터의 밀도는 NiO가 첨가된 바리스터는  $5.68 \text{ g/cm}^3$ 로 선택 첨가물이 없는 것과 비슷하였으나 나머지는 밀도를 감소시키는 것으로 나타났다.

Fig. 2는 선택 첨가물에 따른 바리스터의 전계( $E$ )-전류 밀도( $J$ ) 특성을 나타낸 것이다. 특성곡선에서 항복영역 위치로부터 바리스터 전압을 예상할 수 있는데 곡선이 가장 위쪽에 위치한  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 첨가된 경우가 바리스터 전압이 가장 높을 것으로 예상할 수 있다. 또 비직선 지수를 결정짓는 특성곡선의 knee 부분의 꺾임 정도를 관찰하면,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 첨가된 바리스터에서 그 꺾임성이 가장 크게 나

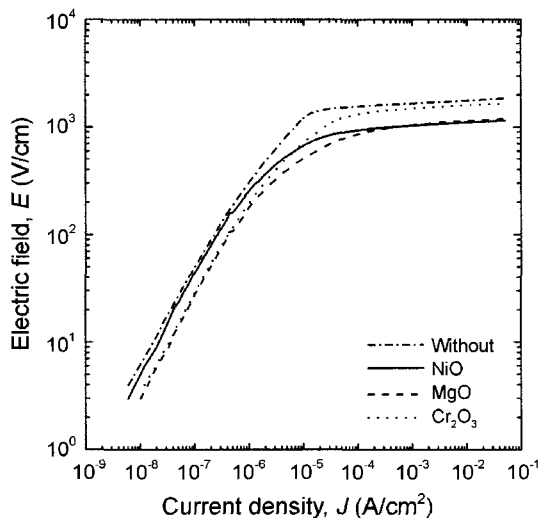


Fig. 2.  $E$ - $J$  characteristics of varistors for different additives.

타나 첨가전 바리스터의 비직선성을 개선시키는 것으로 나타났다. MgO 첨가시에는 knee 부위가 첨가전과 구분하기 어려울 정도로 비슷한 round 형태를 나타내고 있어 MgO는 비직선성에 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다. 반면 NiO가 첨가된 경우는 첨가전의 곡선보다 더 round 형태를 보임을 확인할 수 있다. 이는 NiO가 첨가된 바리스터는 선택 첨가되지 않은 것보다 낮은 비직선성을 나타낼 것으로 판단된다. 상세한 미세구조 파라미터를 Table 1에 요약하여 나타내었다.

Fig. 3은 선택 첨가물에 따른 바리스터 전압 및 입계당 바리스터 전압을 나타낸 곡선이다. 바리스터 전압은  $104.1 \sim 166.8 \text{ V/mm}$ 의 범위에서 NiO  $\rightarrow$  MgO  $\rightarrow$   $\text{Cr}_2\text{O}_3$  첨가물 순으로 증가하였다. 외부로부터 바리스터에 인가된 전압은 대부분이 입계영역의 공핍층에 인가되므로 시편의 일정 두께 내의 입계 수에 의존한다. 즉 입계의 수가 많을수록 바리스터 전압은 증가하게 된다. 결정립 크기는 NiO  $\rightarrow$  MgO  $\rightarrow$   $\text{Cr}_2\text{O}_3$  첨가물 순으로 작아지기 때문에 바리스터 전압은 증가하는 것으로 나타났다. 입계당 전압은 다음과 같이 구할 수 있다.

$$V_{gb} = \frac{V_{1mA}}{n} \quad (4)$$

Table 1. Microstructural and  $V$ - $I$  Characteristic Parameters of Varistors for Different Additives

| Metal oxide             | $d$ ( $\mu\text{m}$ ) | $\rho$ ( $\text{g/cm}^3$ ) | $V_{1mA}$ (V/mm) | $V_{gb}$ (V/gb) | $\alpha$ | $I_L$ ( $\mu\text{A}$ ) |
|-------------------------|-----------------------|----------------------------|------------------|-----------------|----------|-------------------------|
| Without                 | 15.7                  | 5.69                       | 106.1            | 1.7             | 33.8     | 8.2                     |
| NiO                     | 18.6                  | 5.68                       | 104.1            | 1.9             | 27.0     | 15.8                    |
| MgO                     | 15.8                  | 5.50                       | 150.0            | 2.4             | 35.1     | 9.7                     |
| $\text{Cr}_2\text{O}_3$ | 14.2                  | 5.58                       | 166.8            | 2.4             | 40.5     | 2.7                     |

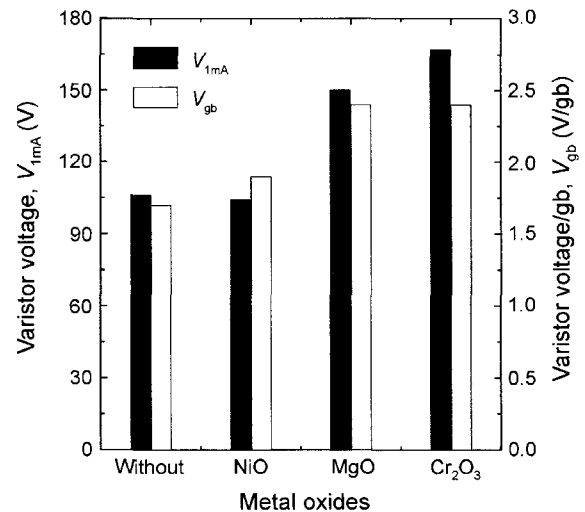


Fig. 3. Varistor voltage and voltage per grain boundary of varistors for different additives.

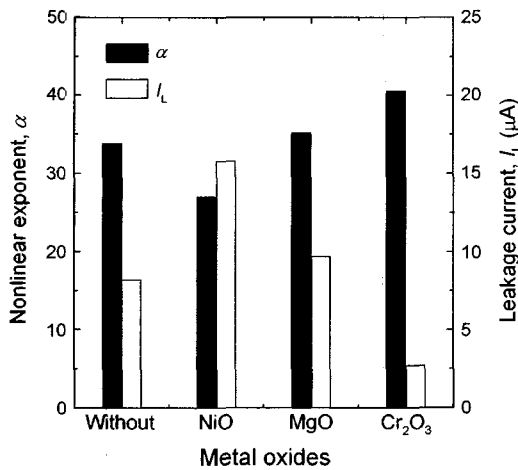


Fig. 4. Nonlinear exponent and leakage current of varistors for different additives.

$$n = \frac{D}{d} \quad (5)$$

여기서  $n$ 은 입계 수,  $D$ 는 시편의 두께,  $d$ 는 평균 결정립 크기이다.

입계당 바리스터 전압( $V_{gb}$ )은 선택 첨가물에 따라 1.9~2.4 V/gb 범위를 나타냄으로서 일반적으로 잘 알려진 바리스터의 입계당 전압 2~3 V/gb에 근사적으로 부합하였다.

Fig. 4는 선택 첨가물에 따른 바리스터의 비직선 지수( $\alpha$ )와 누설전류 특성을 나타낸 곡선이다. 비직선 지수는 NiO→MgO→Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가물 순으로 27.0~40.5 범위로 증가하였으며, 누설전류( $I_L$ )는 15.8~2.7  $\mu\text{A}$  범위로 비직선 지수와 상반되게 감소하였다. 이러한 현상은 입계영역에 존재하는 전위장벽을 통해서 해석할 수 있다. 일반적으로 전위장벽이 높을수록 비직선 지수가 커지는 것으로 알려져 있으며, 높아진 전위장벽을 넘어서 흐를 수 있는 누설전류는 반대로 작아질 수밖에 없다고 볼 때 비직선 지수와 누설전류의 특성이 상반되게 나타남을 충분히 이해할 수 있다. 한편 선택 첨가물이 첨가되지 않은 바리스터의 비직선 지수와 누설전류는 각각  $\alpha=33.8$ ,  $I_L=8.2 \mu\text{A}$ 이다. 이와 같은 결과와 비교해 볼 때 NiO, MgO가 첨가된 바리스터는 비직선 지수를 크게 향상시키지 못할 뿐만 아니라, 누설전류를 개선시키지 못하였으므로 바리스터에 응용 가능성이 적은 것으로 판단된다. 반면 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 바리스터의 경우는 비직선 지수가 향상되었을 뿐만 아니라, 누설전류를 크게 감소시켜 주는 것으로 나타났다. 이는 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 바리스터의 비직선성 개선 첨가물로 사용 가능할 수 있음을 보여주는 것이다. 상세한 V-I 특성 파라미터를 Table 1에 요약하여 나타내었다.

Fig. 5는 선택 첨가물에 따른 첨가물에 따른 겔보기 비유전율( $\epsilon_{APP}'$ )과 손실계수( $\tan \delta$ )를 나타낸 유전특성곡선이다. 그림에서 첨가물에 관계없이 주파수 증가에 따라 비

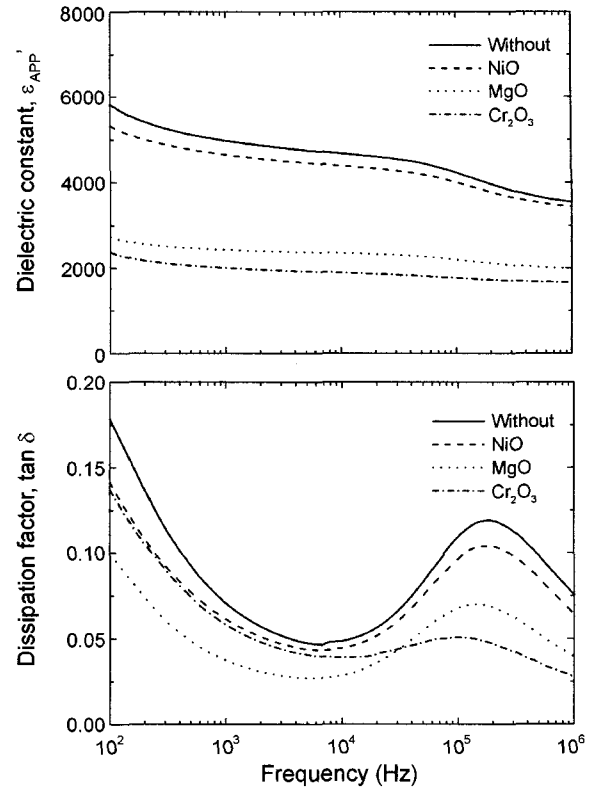


Fig. 5. Dielectric characteristics of varistors for different additives.

유전율은 감소하였으며, NiO가 첨가된 것이 다소 감소율이 큰 것을 확인할 수 있다. 주파수 증가에 따라 비유전율이 감소하는 것은 교류전계의 주파수를 추종할 수 있는 공간전하 캐리어가 감소하기 때문이라 볼 수 있다. MgO, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 경우는 비유전율이 주파수에 따라 낮은 감소율로 점진적으로 감소함으로써 분명한 유전분산 영역을 확인할 수 없어 손실계수 곡선의 피크로부터 100~200 kHz 부근임을 추정하였으나, NiO 첨가의 경우는 100~200 kHz 부근에서 비유전율 곡선의 기울기가 커져 주파수에 따라 감소율이 높아지므로 이상분산 영역을 정확히 확인할 수 있다. 또한 1 kHz에서 NiO→MgO→Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가물 순으로 비유전율이 4662.5~2005.6 범위로 감소하는 것을 볼 수 있는데, 이는 다음 식으로부터 해석이 가능하다.

$$\epsilon_{APP}' = \epsilon_g \cdot \frac{d}{t} \quad (6)$$

여기서  $\epsilon_g$ 는 ZnO의 유전상수,  $d$ 는 평균 결정립 크기  $t$ 는 공핍층 폭이다. 이 식에서 알 수 있는 바와 같이 비유전율은 평균 결정립 크기에 비례하므로 NiO→MgO→Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가물 순으로 비유전율 감소는 앞에서 살펴본 평균 결정립 크기의 감소가 크게 작용하고 있음을 알 수 있다. 손실계수 곡선의 변화를 살펴보면 100 Hz 이하에서

**Table 2.** Dielectric Characteristic Parameters of Varistors for Different Additives

|                   | Metal oxide |        |        |                                |
|-------------------|-------------|--------|--------|--------------------------------|
|                   | Without     | NiO    | MgO    | Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> |
| $\epsilon_{APP}'$ | 4986.2      | 4662.5 | 2430.9 | 2005.6                         |
| $\tan \delta$     | 0.0745      | 0.0621 | 0.0378 | 0.0589                         |

큰 손실의 피크가 존재함을 예상할 수 있다. 이는 공간 전하분극에 의한 것이며, 100~200 kHz 부근에서 나타나는 작은 손실의 피크는 배향분극에 의한 것이다. 손실계수는 1 kHz에서 선택 첨가물이 없는 경우  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO}$  순으로 0.0745로부터 0.0378까지 감소하다가  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  첨가 시 다시 0.0589로 증가하는 것으로 나타났다. 반면에 전기쌍극자에 의한 마찰열 손실이 고려되어야 하는 고주파 영역에서는  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO} \rightarrow \text{Cr}_2\text{O}_3$  첨가물 순으로 감소하는 현상이 나타난다. 이러한 현상은 점성저항이  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 첨가된 바리스터 세라믹스가 상대적으로  $\text{MgO}$ 가 첨가된 바리스터 세라믹스 보다 작기 때문이라 사료된다. 상세한 유전 파라미터를 Table 2에 요약하여 나타내었다.

$\text{NiO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가  $\text{ZnO-Pr}_6\text{O}_{11}\text{-CoO-Er}_2\text{O}_3$ 계 바리스터의 미세구조적 전기적 특성에 미치는 영향을 고찰한 결과 미세구조적, 전기적 특성 파라미터의 크기가  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO} \rightarrow \text{Cr}_2\text{O}_3$  순으로 감소하거나 증가하는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 현재로서는 구체적으로 설명하기가 어려우나 각 첨가물의 이온반경이 각각 0.72, 0.66, 0.64 Å로서 이것과 관련성이 있을 것으로 사료된다.

#### 4. 결 론

$\text{ZnO-Pr}_6\text{O}_{11}\text{-CoO-Er}_2\text{O}_3$ 계 바리스터에 일반적으로 바리스터 특성 개선에 미량으로 첨가되는  $\text{NiO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 미세구조, 비직선성 및 유전특성에 미치는 영향을 고찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 평균 결정립 크기는  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO} \rightarrow \text{Cr}_2\text{O}_3$  순으로 감소하였으며, 밀도는 선택 첨가물이 첨가되지 않은 것보다 낮았다.

2.  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO} \rightarrow \text{Cr}_2\text{O}_3$  순으로 비직선성이 점차 향상되었으며,  $\text{NiO}$ 와  $\text{MgO}$ 는 비직선성을 향상시키지 못하였다.

3. 바리스터 전압은  $\text{NiO} \rightarrow \text{MgO} \rightarrow \text{Cr}_2\text{O}_3$  순으로 평균 결정립 크기의 감소로 인해 증가하였다.

4. 비직선성은  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 첨가된 바리스터에서 비직선 지수가 40.5, 누설전류가 2.7  $\mu\text{A}$ 로 가장 우수한 것으로 나타났다.

따라서,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 가 첨가된 바리스터 세라믹스가 미세구조적으로 치밀하고, 비직선성이 우수하여  $\text{ZnO}$  바리스터 세라믹스의 첨가물로서 가장 적합한 것으로 나타났다.

#### 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. M. Matsuoka, "Nonlinear Properties of Zinc Oxide Ceramics," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **10** [6] 736-46 (1971).
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  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ -Based ZnO Varistors," *J. Appl. Phys.*, **70** [11] 6883-90 (1991).
6. A. B. Alles, R. Puskas, G. Callahan, and V. L. Burdick, "Compositional Effect on the Liquid-Phase Sintering of Praseodymium Oxides-Based ZnO Varistors," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [8] 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. C.-W. Nahm, C.-H. Park, and H.-S. Yoon, "Microstructure and Varistor Properties of  $\text{ZnO-Pr}_6\text{O}_{11}\text{-CoO-Nd}_2\text{O}_3$  Based Ceramics," *J. Mat. Sci. Lett.*, **19** [4] 271-74 (2000).
9. C.-W. Nahm, C.-H. Park, and H.-S. Yoon, "Highly Stable Nonohmic Characteristics of  $\text{ZnO-Pr}_6\text{O}_{11}\text{-CoO-Dy}_2\text{O}_3$  Based Varistors," *J. Mat. Sci. Lett.*, **19** [9] 725-27 (2000).
10. C.-W. Nahm, "The Electrical Properties and D.C. Degradation Characteristics of  $\text{Dy}_2\text{O}_3$  Doped  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ -Based ZnO Varistors," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21** [4] 545-53 (2001).
11. C.-W. Nahm and C.-H. Park, "Effect of  $\text{Er}_2\text{O}_3$  Addition on the Microstructure, Electrical Properties, and Stability of  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}$ -Based ZnO Ceramic Varistors," *J. Mater. Sci.*, **36** [7] 1671-79 (2001).
12. C.-W. Nahm and H.-S. Kim, "Effect of  $\text{Pr}_6\text{O}_{11}/\text{CoO}$  Mole Ratio on Nonlinear Properties and DC Accelerated Aging Characteristics of  $\text{ZnO-Pr}_6\text{O}_{11}\text{-CoO-Dy}_2\text{O}_3$  Based Varistors," *Mater. Lett.*, **56** [4] 379-85 (2002).
13. 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).
14. 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).