



## لایه نشانی و مشخصه‌یابی لایه‌های نازک $\text{SnO}_2:\text{Sb}$ تهیه شده به روش اسپری پایرولیز

محمدرضا فدوی اسلام\*

دانشکده فیزیک، دانشگاه دامغان، دامغان، ایران

(دریافت مقاله: ۹۷/۸/۱۲، نسخه نهایی: ۹۷/۱۱/۲۴)

**چکیده:** در این مطالعه لایه‌های نازک نیمرسانای شفاف اکسید قلع آلائیده با ناخالصی آنتیموان بر روی زیر لایه‌های شیشه‌ای با غلظت‌های متفاوت آنتیموان به روش اسپری پایرولیز تهیه شده‌اند. اثر غلظت‌های مختلف آنتیموان بر خواص ساختاری، اپتیکی و الکتریکی لایه‌های نازک مورد مطالعه قرار گرفت. لایه‌های تهیه شده توسط پراش پرتو ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی اثر میدان (FESEM) و جذب نوری (UV-vis) مشخصه‌یابی شدند. آنالیز XRD نشان داد که نمونه‌ها دارای ساختار بس‌بلور با جهت‌گیری‌های ارجح صفحات (۱۱۰)، (۱۰۱)، (۲۰۰)، (۲۱۱) و (۳۰۱) مربوط به فاز اکسید قلع می‌باشند. اندازه بلورک‌ها و دانه‌ها با افزایش غلظت آنتیموان به ترتیب روندهای کاهشی و افزایشی نشان دادند. مطالعات نوری نمونه‌ها نشان داد که افزایش غلظت آنتیموان سبب کاهش عبور در گستره نور مرئی از ۷۲٪ به ۱۵٪ و گاف نوری از ۳/۷۲ به ۲/۹۸ eV شد. افزایش ناخالصی آنتیموان موجب رفتار کاهشی - افزایشی مقاومت الکتریکی شد. مطالعه ترموالکتریک نمونه‌ها، رسانش نوع n را نشان داد.

**واژه‌های کلیدی:** لایه نازک؛ اکسید قلع؛ ناخالصی آنتیموان.

### مقدمه

نیمرسانای ارزان قیمت جزو مواد چند منظوره است که بدلیل ظرفیت دو و جاهای خالی اکسیژن در آن می‌تواند به عنوان حسگر گازی، کاتالیزور اکسیدی و رسانای شفاف بکار رود [۱۱]، [۱۶-۱۸]. ویژگی‌های مختلف اکسید قلع را برای بیشتر کاربردها می‌توان با تزریق ناخالصی بهبود بخشید [۱۱]. لایه‌های نازک اکسید قلع آلائیده با رسانندگی الکتریکی بالا، عبور اپتیکی بالا در ناحیه نور مرئی و بازتابندگی بالای فروسرخ بعنوان الکترودهای شفاف در سلول‌های خورشیدی، قطعات اپتوالکترونیک، صفحات نمایشگر تخت، آینه‌های گرمایی و حسگرهای گازی کاربرد دارند [۱۹]. فلوئور (F)، ایندیوم (In) و آنتیموان (Sb) ناخالصی‌هایی هستند که ویژگی‌های الکتریکی و نوری اکسید قلع را بهبود می‌بخشند [۲۰-۲۲]. از میان آنها، آنتیموان دارای بیشترین تاثیر و در ضمن کم هزینه ترین آنهاست [۲۳].  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  (ATO) یک ماده نیمرسانای شفاف است [۱۶]. در پژوهش‌های پیشین تمرکز بر ویژگی‌های نوری و

لایه‌های نازک اکسیدهای رسانای شفاف از قبیل  $\text{SnO}_2$ ،  $\text{ZnO}$ ،  $\text{In}_2\text{O}_3$  علاوه بر اینکه شفافیت نوری بالایی در ناحیه دیدگانی دارند، رسانایی الکتریکی مناسب از خود نشان می‌دهند [۲]. این اکسیدها بدلیل خواص فیزیکی قابل توجهی که دارند در گستره وسیعی از قطعات اپتوالکترونیک از قبیل سلول‌های خورشیدی، نمایشگرها و قطعات الکترونیک کاربرد دارند [۳-۱۰]. دی اکسید قلع نیمرسانا نوع n با گاف نوری در گستره ۳/۶-۳/۸ الکترون ولت است، که به دلیل دارا بودن ویژگی‌هایی از قبیل مقاومت الکتریکی پایین، شفافیت بالا در محدوده نور مرئی، پایداری شیمیایی بالا در محیط جو و داشتن گاف نواری مستقیم یکی از اکسیدهای نیمرسانای شفاف مهم به شمار می‌رود [۱۱-۱۳]. این نیمرسانا کاربردهای گسترده متنوعی شامل تبدیل انرژی خورشیدی، کاتالیزورها، وریستورها، قطعات اپتوالکترونیک و صفحات نمایشگر دارد [۱۳-۱۵]. این

\*نویسنده مسئول، تلفن: ۰۹۱۳۳۵۵۰۸۱۹، نمابر: ۰۲۳۳۵۲۲۰۰۹۰، پست الکترونیکی: m.r.fadavieslam@du.ac.ir

شد. به منظور بررسی ویژگی‌های اپتیکی از طیف سنج دو گانه فرا بنفش- مرئی مدل UV-Vis 4802 استفاده شد. مشخصه‌یابی الکتریکی لایه‌ها به روش دو اتصالی انجام شد. اندازه‌گیری ویژگی‌های ترموالکتریکی و تعیین نوع حامل‌ها توسط سامانه‌ای انجام شد که در آن یک طرف نمونه‌ها با یک گرماده الکتریکی داغ شده و طرف دیگر آن شامل قطعه ترموالکتریک سرد نگه‌داشته شده بود. به این ترتیب، با ثابت نگه‌داشتن دمای طرف سرد، طرف دیگر نمونه به‌تدریج گرم شده و توسط دو دماسنج قلمی که در دو طرف نمونه اختلاف دما ( $\Delta T$ ) و همزمان اختلاف پتانسیل ترموالکتریک بین دو ناحیه سرد و گرم ( $\Delta V$ ) توسط ولت‌متر اندازه‌گیری شد. در این صورت ضریب سیبک عبارت است از  $S = \frac{\Delta V}{\Delta T}$  [۸].

### نتایج و بحث

مشخصه‌یابی ساختاری: بررسی الگوهای پراش پرتو ایکس نمونه‌ها (شکل ۱) نشان می‌دهد که آنها دارای بس بلور هستند و تنها فاز  $\text{SnO}_2$  با ساختار چارگوشی تشکیل شده است و فازهایی چون  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  و  $\text{Sb}_2\text{O}_5$  دیده نشده‌اند، این امر احتمالاً به این دلیل است که یون  $\text{Sb}$  یا جایگزین یون  $\text{Sn}$  در شبکه  $\text{SnO}_2$  شده است [۳] و یا اینکه در ناحیه غیر بلوری مرز دانه‌ها قرار گرفته است [۹]. با افزایش ناخالصی آنتیموان از صفر تا ۲/۵٪، شدت قله‌های پراش از صفحه‌های (۱۱۰)، (۱۰۱)، (۲۰۰)، (۲۱۱) و (۳۰۱) افزایش می‌یابد و قله ترجیحی مربوط به صفحه (۲۱۱) است. با افزایش بیشتر ناخالصی از ۲/۵٪ تا ۱۰٪ به جز قله مربوط به صفحه (۱۱۰)، شدت سایر قله‌ها کاهش می‌یابد.

اندازه متوسط دانه‌های بلوری نمونه‌ها با بکارگیری رابطه شرر [۲۶] به دست آمد:

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (۱)$$

الکتریکی لایه‌های ATO بود و اطلاعات محدودی در مورد تاثیر آنتیموان بر ساختار لایه‌ها موجود است [۳، ۲۴، ۲۵]. تاکنون لایه‌های نازک ATO در شرایط خلا از جمله با لیزر تپی (PLD) [۱۸]، کندوپاش [۹، ۶] و پرتو الکترونی [۱۶] تهیه شده‌اند. با این وجود، روند تحقیقات از روش‌های فیزیکی برپایه خلا به روش‌های شیمیایی چون فوتوشیمیایی [۱۱]، سل-ژل [۱۳، ۳]، بخار شیمیایی [۲۲، ۱۰]، چرخشی [۳]، غوطه‌وری [۲۰] و اسپری پایرولیز [۴، ۷، ۱۴] تغییر کرده است. روش اسپری پایرولیز به دلیل ارزان و ساده بودن از مناسبترین روش‌های شیمیایی تهیه لایه‌های نازک است.

در این پژوهش، لایه‌های نازک  $\text{SnO}_2$  به روش اسپری پایرولیز تهیه شده و تاثیر افزودن ناخالصی آنتیموان بر ویژگی‌های ساختاری، نوری و الکتریکی آنها بررسی شد.

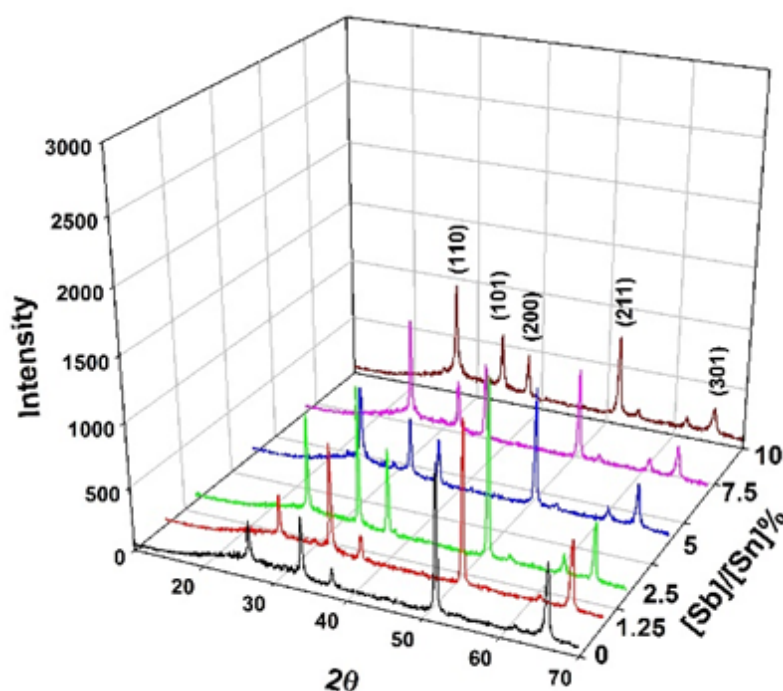
### روش تجربی

در این پژوهش، لایه‌های نازک  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  بر بسترهای شیشه-ای لایه نشانی شدند. نخست، ۲۰ cc محلول یک مولار کلرید قلع پنج آبه ( $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) تهیه شد. سپس برای تهیه لایه-های اکسید قلع با درصد‌های متفاوت ناخالصی آنتیموان، مقادیر مختلفی از کلرید آنتیموان در حلال آب مقطر و پروپانول به نسبت حجمی ۱:۱ آماده شد و نسبت مولی  $\left[\frac{\text{Sb}}{\text{Sn}}\right]$  در محلول اصلی از صفر تا ۱۰٪ تغییر داده‌شد. پس از آن، لایه‌های  $\text{SnO}_2$  با ناخالصی  $\text{Sb}$  با شرایط یکسان (جدول ۱) تهیه شدند.

جهت مشخصه‌یابی ساختاری از دستگاه پراش پرتو X (با طول موج ۰/۱۵۴۰۵۶ nm مدل D8 ADVANCE- BRUKER استفاده شد. برای بررسی ریختار سطح میکروسکوپ الکترونی مدل HITACHI S4160 بکارگرفته شد. ضخامت لایه‌های نازک با استفاده از دستگاه اندازه‌گیری سطحی سورترونیک مدل stylus-Taylor Hobson تعیین

جدول ۱ شرایط لایه‌نشانی لایه‌ها

۳۵	ارتفاع نازل تا بستر (cm)
۳	فشار گاز حامل (atm)
۳	آهنگ لایه‌نشانی (ml/min)
۵۵۰	دمای بستر ( $^{\circ}\text{C}$ )
۲۰	حجم محلول اسپری (ml)



شکل ۱ مقایسه طیف های XRD لایه های  $\text{SnO}_2$  با درصد های مختلف آنتیموان.

محاسبه شده از رابطه شرر است که نشان می دهد که هر ذره شامل تعدادی نانو بلورکها است [۲۸].

#### مشخصه یابی اپتیکی

تغییرات عبور لایه ها بر حسب طول موج (شکل ۳) نشان می دهد که با افزایش ناخالصی آنتیموان عبور کاهش می یابد [۲۸، ۲۷]. کاهش عبور بدلیل افزایش پراکندگی فوتون جذب شده در اثر افزایش نقص بلوری است. افزون بر این، افزایش غلظت آنتیموان باعث مشارکت بیشتر  $\text{Sb}^{+3}$  و  $\text{Sb}^{+5}$  در شبکه  $\text{SnO}_2$  شده، که منجر به انتقال الکترون بین حالت های اکسایشی متفاوت و سرانجام باعث جذب نور بیشتر توسط لایه ها و کاهش عبور در آنها می شود [۲۹]. متوسط عبور لایه ها در گستره نور مرئی در جدول ۳ آورده شده است.

ضریب جذب لایه ها ( $\alpha$ ) از رابطه زیر محاسبه شد:

$$\alpha = \frac{2.303 \times A}{t} \quad (2)$$

که در آن  $A$  جذب شده توسط طیفسنج اندازه گیری و  $t$  ضخامت لایه بر حسب نانومتر است. گاف انرژی (مستقیم) بر اساس رابطه تاوک [۳۰]:

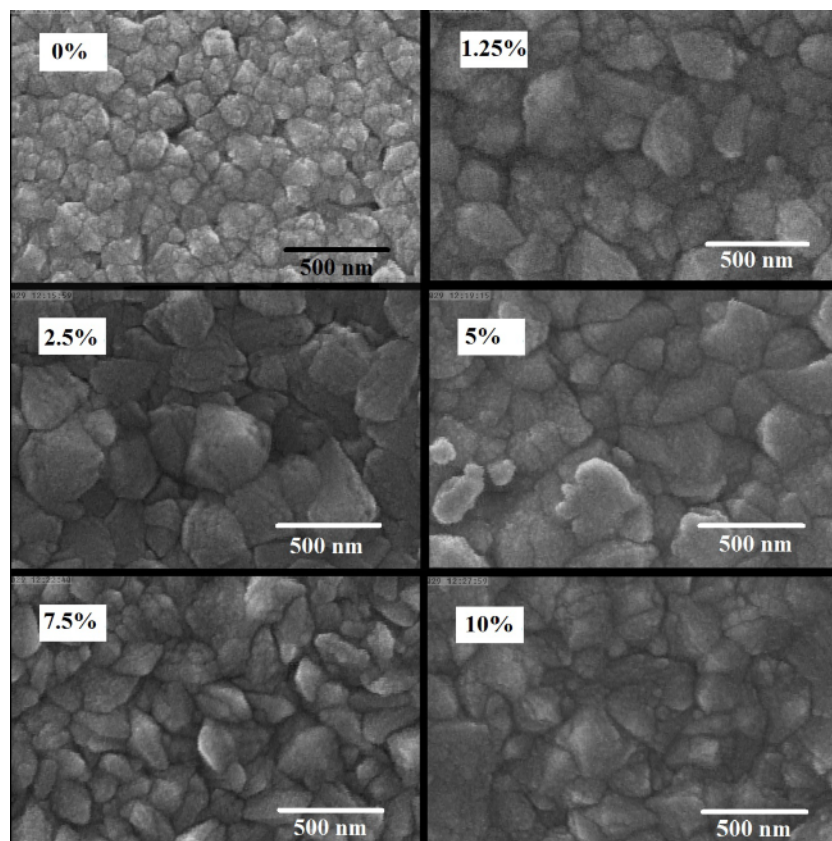
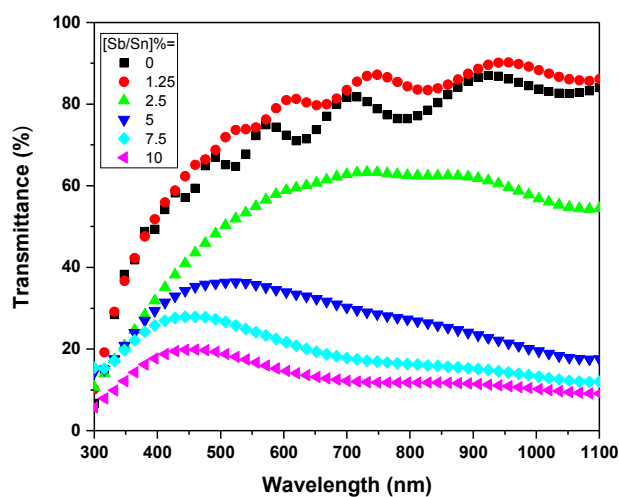
$$(\alpha h\nu)^2 = A(h\nu - E_g) \quad (3)$$

در این رابطه،  $D$  متوسط اندازه بلورکها در جدول ۲ ارائه شده است. چنانکه دیده می شود، با افزایش ناخالصی آنتیموان از صفر تا ۲/۵٪ اندازه بلورکها افزایش می یابد و سپس با افزایش بیشتر ناخالصی تا ۱۰٪ به طور کلی اندازه بلورکها برای صفحه های (۱۱۰)، (۱۰۱)، (۲۰۰)، (۲۱۱) و (۳۰۱) کاهش می یابد که این رفتار در شدت قله های مربوط به صفحات پراش نیز مشاهده می شود. کاهش اندازه بلورکها احتمالاً در اثر افزایش واپیچش شبکه و تنش درونی ناشی از افزایش ناخالصی آنتیموان است [۲۷].

ریخت شناسی: تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی در شکل ۲ نشان داده شده است. این دیده می شود که ریختار سطح به شدت بستگی به غلظت ناخالصی دارد. در نمونه خالص، دانه های کوچکتر و با افزایش تراکم ناخالصی آنتیموان دانه های چند وجهی بزرگ دیده می شوند. متوسط اندازه دانه ها برای لایه بدون ناخالصی و با نسبت آنتیموان به قلع ۱/۲۵، ۲/۵، ۵، ۷/۵ و ۱۰ درصد به ترتیب ۱۱۴، ۱۷۰، ۲۲۰، ۲۴۸، ۱۷۵ و ۱۹۰ نانومتر است، که روند افزایشی - کاهشی را نشان می دهد. اندازه ذرات در تصویر FESEM بزرگتر از اندازه بلورک های

جدول ۲ نتایج برآمده از طیف‌های XRD.

hkl		۱۱۰	۱۰۱	۲۰۰	۲۱۱	۳۰۱
$\frac{[Sb]}{[Sn]}$ %						
۰	D(nm)	۲۴	۲۳	۲۲	۲۵	۲۰
۱٫۲۵	D(nm)	۲۵	۲۴	۲۰	۲۶	۲۱
۲٫۵	D(nm)	۲۷	۲۷	۲۴	۲۷	۲۳
۵	D(nm)	۲۲	۲۵	۲۰	۲۴	۲۱
۷٫۵	D(nm)	۲۵	۲۳	۲۳	۲۳	۱۷
۱۰	D(nm)	۲۲	۲۱	۲۱	۲۱	۱۵

شکل ۲ تصاویر FESEM لایه‌های  $SnO_2$  با درصدهای مختلف آنتیموان.شکل ۳ نمودارهای عبور اپتیکی بر حسب طول موج برای لایه‌های  $SnO_2$  با درصدهای مختلف آنتیموان.

جدول ۳ نتایج مشخصه یابی اپتیکی، الکتریکی و ترموالکتریکی لایه ها.

$\frac{[\text{Sb}]}{[\text{Sn}]} \%$	۰	۱٫۲۵	۲٫۵	۵	۷٫۵	۱۰
(nm) Thickness	۶۰۰	۵۹۰	۵۸۰	۴۳۰	۳۴۰	۳۳۰
متوسط عبور در گستره نور مرئی (%)	۷۲	۷۷	۵۶	۳۳	۲۲	۱۵
$E_g$ (eV)	۳٫۷۲	۳٫۷	۳٫۴۳	۳٫۱۲	۳	۲٫۹۸
مقاومت ویژه الکتریکی ( $\Omega \text{ cm}$ )	۱۴۹٫۸۵	۲۰٫۳	۱۷٫۰۹	۶٫۰۶	۱۰٫۵۹	۱۱٫۰۵
ضریب سبک در 400 K ( $\mu\text{V/K}$ )	۶۸٫۷۴	۳۳٫۹۱	۱۸٫۸۴	۱۴٫۶۶	۲۰٫۴۶	۱۶٫۵

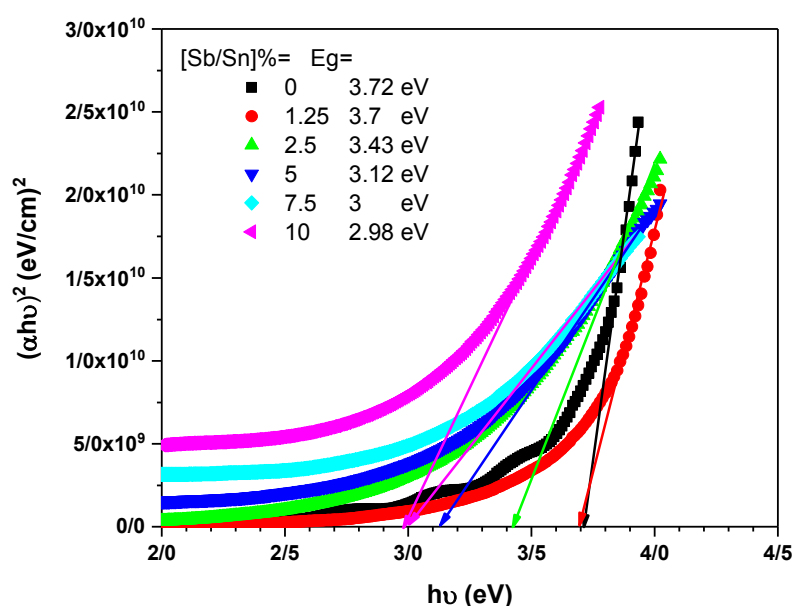
شده است [۹،۸]. در لایه های اکسید قلع آلائیده با ناخالصی آنتیموان، اکسایش ناخالصی آنتیموان به دو صورت  $\text{Sb}^{+5}$  و  $\text{Sb}^{+3}$  صورت می گیرد. اگر  $\text{Sb}^{+5}$  جایگزین  $\text{Sn}^{+4}$  شود منجر به افزایش الکترون های هدایت می شود و مقاومت کاهش می یابد. با افزایش غلظت ناخالصی آنتیموان،  $\text{Sb}^{+3}$  جایگزین  $\text{Sn}^{+4}$  می شود و باعث تولید حالت های پذیرنده و کاهش حامل ها و در نتیجه افزایش مقاومت می شود [۳۲]. افزون بر آن، شکل ۵ نشان می دهد که با افزایش اندازه دانه ها به دلیل کاهش آثار مرز دانه ها، مقاومت الکتریکی کاهش می یابد [۱۱].

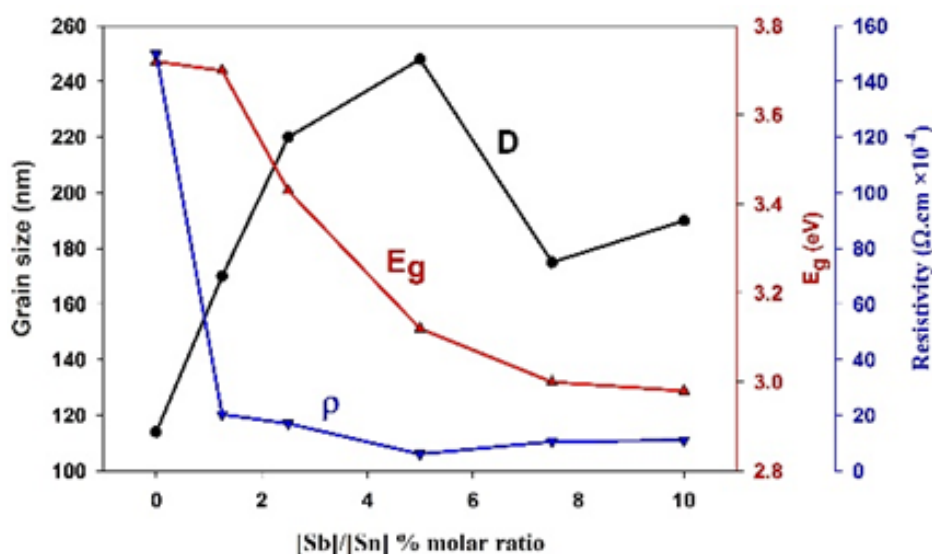
تغییرات پتانسیل ترموالکتریک بر حسب اختلاف دما برای نمونه ها در شکل ۶ نشان داده شده است. چنان که دیده می شود، با افزایش اختلاف دمای دو سر لایه، ولتاژ ترموالکتریک در جهت منفی به طور خطی افزایش می یابد. شیب منفی این نمودارها نشان دهنده رسانش نوع n در لایه های نازک  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  است [۹]. ضریب سبک لایه ها در ۴۰۰ K در جدول ۳ آورده شده اند.

با رسم نمودار  $(\alpha h\nu)^2$  بر حسب  $(h\nu)$ ، از برون یابی بخش مستقیم منحنی با محور  $\alpha = 0$  بدست آمد (شکل ۴ و جدول ۳). مطالعه نتایج نشان می دهد که با افزایش ناخالصی، گاف نوری کاهش می یابد. رفتار کاهشی گاف نوری با افزایش ناخالصی آنتیموان، در دیگر پژوهش های انجام شده در این زمینه نیز دیده شده است [۲۷،۱۰]، که می تواند ناشی از افزایش حالت های ناخالصی ناشی از ورود Sb در یاخته یک ATO باشد. مقایسه تغییرات گاف نوری نمونه ها و متوسط اندازه دانه ها (شکل ۵) نشان می دهد که به طور کلی با افزایش اندازه دانه ها گاف نوری کاهش می یابد [۳۱]. افزون بر آن، کاهش گاف نوری می تواند به علت حضور پذیرنده ها و جایگزینی  $\text{Sb}^{+3}$  بجای  $\text{Sn}^{+4}$  باشد [۱۴].

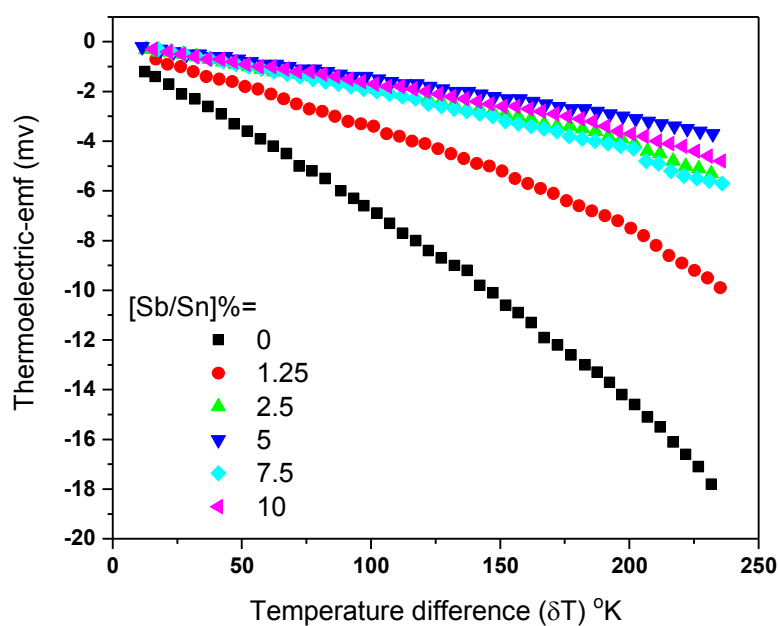
#### مشخصه یابی الکتریکی و ترموالکتریکی

نتایج اندازه گیری مقاومت لایه در جدول ۳ آورده شده است. دیده می شود که با افزایش ناخالصی، مقاومت رفتار کاهشی-افزایشی دارد. این رفتار در پژوهش های دیگران نیز مشاهده

شکل ۴ نمودارهای  $(\alpha h\nu)^2$  بر حسب  $(h\nu)$  برای لایه های  $\text{SnO}_2$  با درصد های مختلف ناخالصی آنتیموان.



شکل ۵ مقایسه تغییرات متوسط اندازه دانه‌ها، گاف اپتیکی و مقاومت لایه‌ها بر حسب مقدار آنتیموان.



شکل ۶ پتانسیل ترموالکتریک به صورت تابعی از اختلاف دما برای لایه‌های  $\text{SnO}_2$  با درصدهای مختلف آنتیموان.

#### برداشت

بررسی الگوهای پراش XRD نمونه‌ها نشان می‌دهد که آنها بس بلور هستند. و اندازه بلورک‌های آنها در گستره ۱۵ تا ۲۷ نانومتر است که با افزایش ناخالصی آنتیموان روند افزایش-کاهشی را دنبال می‌کنند. افزون بر آن، افزایش غلظت آنتیموان سبب می‌شود عبور در گستره نور مرئی از ۷۲٪ به ۱۵٪ و گاف نوری از ۳٫۴۷ به ۲٫۹۸ eV کاهش یابد. مشخصه‌یابی الکتریکی نمونه‌ها نشان می‌دهد که آنها نیم‌رسانای نوع n هستند و

افزایش ناخالصی تا ۵ درصد سبب کاهش مقاومت می‌شود و سپس با افزایش بیشتر ناخالصی، مقاومت افزایش می‌یابد.

#### مراجع

- [1] Bagheri-Mohagheghi M.M., Shokooh-Saremi M., "The electrical, optical, structural and thermoelectrical characterization of n- and p-type cobalt-doped  $\text{SnO}_2$  transparent semiconducting films prepared by spray pyrolysis technique", Physica B 405 (2010) 4205–4210.



- [12] E.A. Floriano, L.V.A. Scalvi, J.R. Sambrano, A. de Andrade, "Decay of photo-induced conductivity in Sb-doped  $\text{SnO}_2$  thin films, using monochromatic light of about bandgap energy", *Applied Surface Science* 267 (2013) 164-168.
- [13] Viviany Geraldo, Luis V.A. Scalvi, P.N. Lisboa-Filho, C. Morilla-Santos, "Drude's model calculation rule on electrical transport in Sb-doped  $\text{SnO}_2$  thin films, deposited via sol-gel", *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 67 (2006) 1410-1415.
- [14] Rita Singh, ManishKumar, S.Shankar, RajeevSingh, Anup K.Ghosh, O.P.Thakur, B.Das, "Effects of Sb, Zn doping on structural, electrical and optical properties of  $\text{SnO}_2$  thin films", *Materials Sciencein Semiconductor Processing* 31 (2015) 310-314.
- [15] Novinrooz Abdoljavad, Sarabadani Parvin, Garousi Javad, "Characterization of Pure and Antimony Doped  $\text{SnO}_2$  Thin Films Prepared by the Sol-Gel Technique", *Iran. J. Chem. Chem. Eng.* 25 (2006) 31-38.
- [16] Xiudi Xiao, Guoping Dong, Jianda Shao, Hongbo He, Zhengxiu Fan, "Optical and electrical properties of  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  thin films deposited by oblique angle deposition", *Applied Surface Science* 256 (2010) 1636-1640.
- [17] J. Mazloom, F.E. Ghodsi, M. "Gholami, Fiber-like stripe ATO ( $\text{SnO}_2:\text{Sb}$ ) nanostructured thin films grown by sol-gel method: Optical, topographical and electrical properties", *Journal of Alloys and Compounds* 579 (2013) 384-393.
- [18] Shihui Yu, Linghong Ding, Chuang Xue, Li Chen, W.F. Zhang, "Transparent conducting Sb-doped  $\text{SnO}_2$  thin films grown by pulsed laser deposition", *Journal of Non-Crystalline Solids* 358 (2012) 3137-3140.
- [19] Shihui Yu, Weifeng Zhang, Linngxia Li, Dan Xu, Helei Dong, Yuxin Jin, "Fabrication of p-type  $\text{SnO}_2$  films via pulsed laser deposition method by using Sb as dopant", *Applied Surface Science* 286 (2013) 417-420.
- [20] S. Sujatha Lekshmy, Georgi P. Daniel, K. Joy, "Microstructure and physical properties of sol gel derived  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  thin films for optoelectronic applications", *Applied Surface Science* 274 (2013) 95-100.
- [21] Haoran Zheng, Lingxia Li, Zheng Sun, Shihui Yu, Weijia Luo, "Preferential orientation, microstructure and functional properties of
- [2] Yuonesi M., Izadifard M., Ghazi M. E., Esmaili Ghodsi F., "Influence of Co and Fe substitution on optical and structural properties of zinc oxide thin films", *Iranian Journal of Crystallography and Mineralogy* 19 (2011) 65-72.
- [3] Ha-Rim An, ChangYeoulKim, Sung-TagOh, Hyo-JinAhn, "Effect of sol-layers on Sb-doped  $\text{SnO}_2$  thin films as solution-based transparent conductive oxides", *Ceramics International* 40 (2014) 385-391.
- [4] Sushant Gupta, B.C. Yadav, Prabhat K. Dwivedi, B. Das, Microstructural, optical and electrical investigations of Sb- $\text{SnO}_2$  thin films deposited by spray pyrolysis, *Materials Research Bulletin* 48 (2013) 3315-3322.
- [5] S. M. B. Gharshi, A. Bejat, M. Naghabi, G. Mirjalili, "Simulation and fabrication of nanostructured ZnS/Metal/ZnS films and study of their structural and optical properties, NW of Iran (in Persian)", *Iranian Journal of Crystallography and Mineralogy* 20 (2013) 169-178.
- [6] Wenhao Yang, Shihui Yu, Yang Zhang, Weifeng Zhang, "Properties of Sb-doped  $\text{SnO}_2$  transparent conductive thin films deposited by radio-frequency magnetron sputtering", *Thin Solid Films* 542 (2013) 285-288.
- [7] Seung-Yup Lee, Byung-Ok Park, "Structural, electrical and optical characteristics of  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  thin films by ultrasonic spray pyrolysis", *Thin Solid Films* 510 (2006) 154-158.
- [8] E. Elangovan, S.A. Shivashankar, K. Ramamurthi, "Studies on structural and electrical properties of sprayed  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  films", *Journal of Crystal Growth* 276 (2005) 215-221.
- [9] Hong-Lei Ma, Xiao-Tao Hao, Jin Ma, Ying-Ge Yang, Jie Huang, De-Heng Zhang, Xian-Gang Xu, "Thickness dependence of properties of  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  films deposited on flexible substrates", *Applied Surface Science* 191 (2002) 313-318.
- [10] S. Haireche, A. Boumeddiene, A. Guittoum, A. El Hdiy, A. Boufelfel, "Structural, morphological and electronic study of CVD  $\text{SnO}_2:\text{Sb}$  films", *Materials Chemistry and Physics* 139 (2013), 871-876.
- [11] Dengbaoleer Ao, Masaya Ichimura, "Deposition and characterization of Sb and Cu doped nanocrystalline  $\text{SnO}_2$  thin films fabricated by the photochemical method", *Journal of Non-Crystalline Solids* 358 (2012) 2470-2473.

*aluminium- und wolframspaenen*", Acta Metallurgica 1 (1953) 22-31

[28] M. R. Fadavieslam, N. Shahtahmasebi, M. Rezaee-Roknabadi, M. M. R. Bagheri-Mohagheghi, "A study of the photoconductivity and thermoelectric properties of  $\text{Sn}_x\text{S}_y$  optical semiconductor thin films deposited by the spray pyrolysis technique", Phys. Scr. 84 (2011) 035705 (8pp).

[29] Soheila Hemmatzadeh Saeedabad, Gurpreet Singh Selopal, Seyed Mohammad Rozati, Yaser Tavakoli, Giorgio Sberveglieri, "From Transparent Conducting Material to Gas-Sensing Application of  $\text{SnO}_2\text{:Sb}$  Thin Films", Journal of Electronic Materials 47 (2018) 5165–5173

[30] ShiminLiu, Wanyu Ding, YousongGu, Weiping Chai, "Effect of Sb doping on the microstructure and optoelectrical properties of Sb-doped  $\text{SnO}_2$  films prepared by spin coating", Phys. Scr. 85 (2012) 065601(5pp).

[31] Sk. F. Ahmed, S. Khan, P. K. Ghosh, M. K. Mitra, K. K. Chattopadhyay, "Effect of Al doping on the conductivity type inversion and electro-optical properties of  $\text{SnO}_2$  thin films synthesized by sol-gel technique", Journal of Sol-Gel Science and Technology 39 (2006) 2421-247

[32] R. Outemzabet, M. Doulache, M. Trari, "Physical and photoelectrochemical properties of Sb-doped  $\text{SnO}_2$  thin films deposited by chemical vapor deposition: application to chromate reduction under solar light", Applied Physics A 119 (2015) 589-596

*$\text{SnO}_2\text{:Sb}$  thin film: The effects of post-growth annealing*", Applied Surface Science 362 (2016) 230-236.

[22] Yang-Yi Lin, Albert T. Wu, Ching-Shun Ku, and Hsin-Yi Lee, "Analysis of Chlorine Ions in Antimony-Doped Tin Oxide Thin Film Using Synchrotron Grazing Incidence X-ray Diffraction", Japanese Journal of Applied Physics 51 (2012) 10NE28-4.

[23] B. Zhang, Y. Tian, J.X. Zhang, W. Cai, "The FTIR studies of  $\text{SnO}_2\text{:Sb}$  (ATO) films deposited by spray pyrolysis", Materials Letters 65 (2011) 1204-1206.

[24] Xiudi Xiao, Guoping Dong, Jianda Shao, Hongbo He, Zhengxiu Fan, "Optical and electrical properties of  $\text{SnO}_2\text{:Sb}$  thin films deposited by oblique angle deposition", Applied Surface Science 256 (2010) 1636-1640.

[25] Bon-RyulKoo, Hyo-JinAhn, "Structural, electrical, and optical properties of Sb-doped  $\text{SnO}_2$  transparent conductive oxides fabricated using an electrospray technique", Ceramics International 40 (2014) 4375-4381.

[26] M. Ranjbar, M. Ghazi, M. Izadifard, "Effect of drying temperature on structural, dielectric, optical and magnetic properties of sol-gel derived  $\text{BiFeO}_3$  nanoparticles, NW of Iran (in Persian)", Iranian Journal of Crystallography and Mineralogy 26 (2018) 251-260.

[27] G.K Williamson, W.H Hall, "X-ray line broadening from filed aluminium and wolfram Die verbreiterung der roentgeninterferenzlinien von