

# ẢNH HƯỞNG NHIỆT ĐỘ Ủ LÊN CẤU TRÚC TINH THỂ, TÍNH CHẤT ĐIỆN VÀ CẢM BIẾN PH CỦA MÀNG $\text{SnO}_2$ PHA TẠP Sb

LÝ THANH BÌNH

*Khoa khoa học cơ bản, Trường Đại học Công nghiệp thành phố Hồ Chí Minh  
lythanhbinh@iuh.edu.vn*

**Tóm tắt.** Công trình này nghiên cứu ảnh hưởng của nhiệt độ ủ đến cấu trúc tinh thể, tính chất điện và cảm biến pH của màng  $\text{SnO}_2$  pha tạp Sb. Màng  $\text{SnO}_2$  pha tạp Sb được lắng đọng trên đế thạch anh bằng phương pháp Sol-gel phủ nhún. Màng sau đó được ủ ở các nhiệt độ khác nhau  $300^\circ\text{C}$ ,  $500^\circ\text{C}$  và  $700^\circ\text{C}$  trong 120 phút trong môi trường không khí. Cấu trúc tinh thể, hình thái bề mặt và tính chất điện của các màng được khảo sát bằng giản đồ nhiễu xạ tia X, ảnh FESEM và phép đo Hall. Kết quả cho thấy các thông số hằng số mạng, kích thước tinh thể, kích thước hạt bị ảnh hưởng bởi nhiệt độ ủ. Kích thước tinh thể của màng tăng từ 17 lên 27 nm khi nhiệt độ ủ tăng từ  $300^\circ\text{C}$  lên  $700^\circ\text{C}$ . Điện trở suất của màng giảm trong khoảng nhiệt độ ủ  $300^\circ\text{C}$  và  $500^\circ\text{C}$  và tăng trở lại khi nhiệt độ ủ đạt  $700^\circ\text{C}$ . Ngoài ra, màng ATO –  $700^\circ\text{C}$  đạt giá trị độ nhạy cao nhất 50 mV/pH.

**Từ khóa.** Cảm biến pH cấu trúc EGFET, sol-gel,  $\text{SnO}_2$  pha tạp Sb.

## INFLUENCE ANNEALING TEMPERATURE ON STRUCTURAL, ELECTRICAL AND PH SENSOR PROPERTIES OF Sb DOPED $\text{SnO}_2$ FILMS

**Abstract.** This study investigates annealing temperature on structural, electrical properties, and pH response of the Sb-doped  $\text{SnO}_2$  membrane. Sb-doped  $\text{SnO}_2$  films were deposited on the quartz substrate by sol-gel dip-coating technique. The films were annealed at temperatures  $300^\circ\text{C}$ ,  $500^\circ\text{C}$ , and  $700^\circ\text{C}$  in the air for 120 minutes. The structure, surface morphologies, and electrical properties were observed by X-ray diffraction, FESEM images, and Hall measurements. The results showed that lattice constant, crystal size, and particle size are affected by annealed temperature. The crystal size increased from 17 to 27 nm as the temperature increased from  $300^\circ\text{C}$  to  $700^\circ\text{C}$ . The resistivity of films decreases in the range temperatures of  $300^\circ\text{C}$  and  $500^\circ\text{C}$  and increases again when the annealed temperature at  $700^\circ\text{C}$ . In addition, the ATO- $700^\circ\text{C}$  membrane achieved the highest sensitivity value of 50 mV/pH.

**Keywords.** pH- EGFET, sol-gel, Sb doped  $\text{SnO}_2$ .

### 1 GIỚI THIỆU

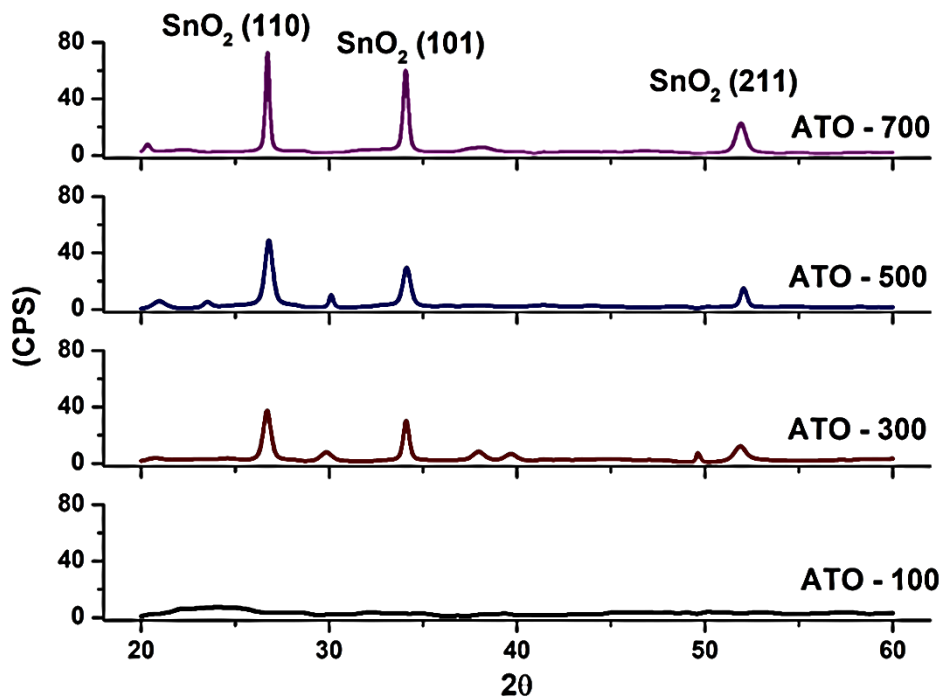
Vật liệu bán dẫn oxit kim loại cấu trúc nano đã được nghiên cứu rộng rãi bởi vì các tính chất điện, quang và cấu trúc nổi trội và khả năng ứng dụng trong các thiết bị quang điện. Trong đó, các vật liệu như  $\text{ZnO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{CdO}$ , ... sở hữu những đặc tính nổi trội như dẫn điện tốt và độ truyền qua quang học trong vùng ánh sáng khả kiến cao. Đặc biệt, những vật liệu này thường được sử dụng trong các ứng dụng cảm biến khí [1], màn hình phẳng [2], diode phát quang (LEDs) [3], pin mặt trời [4], cảm biến pH [5] ... Thiếc oxit ( $\text{SnO}_2$ ) là vật liệu tiềm năng được sử dụng trong các thiết bị nêu trên do sở hữu những tính chất độc đáo nổi trội như độ bền cao trong môi trường hóa học và nhiệt độ, độ rộng vùng cấm lớn từ 3.6 eV đến 4,6 eV [5, 6], năng lượng liên kết exciton lớn (180 mV) và dẫn điện trong suốt. Đặc biệt, vật liệu  $\text{SnO}_2$  được sử dụng trong thiết bị cảm biến pH để phát hiện ion  $\text{H}^+$  [8]. Có hai loại cấu trúc cảm biến pH đã được nghiên cứu đó là ISFET (ion sensitive field effect transistor) và EGFET (extended -gate field-effect transistor). Trong đó, cấu trúc EGFET có nhiều ưu điểm hơn so với ISFET là giá thành thấp, ổn định với ánh sáng và nhiệt độ và dễ đóng gói [7]. Tuy nhiên, cấu trúc pH- EGFET đòi hỏi màng cảm ứng là vật liệu dẫn điện tốt so với vật liệu truyền thống của cấu trúc pH- ISFET như  $\text{Si}_2\text{N}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [9]. Vì vậy, công trình này khảo sát ảnh hưởng của ảnh hưởng của nhiệt độ chế tạo đến tính chất điện và tính chất cảm biến pH (cấu trúc pH- EGFET) của màng  $\text{SnO}_2$  pha tạp Sb. Bên cạnh đó, phương pháp tổng hợp màng  $\text{SnO}_2$  pha tạp Sb (ATO) được chọn là phương pháp sol-gel với kỹ thuật phủ nhúng bởi vì tính hiệu quả, kinh tế và đơn giản để chế tạo màng chất lượng cao [10].

## 2 PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

Màng SnO<sub>2</sub> pha tạp Sb (với tỉ lệ Sb/Sn: 5 mol%) được chế tạo bằng phương pháp sol-gel và kỹ thuật phủ nhúng (dip-coating). Để tổng hợp dung dịch sol, một lượng muối SbCl<sub>3</sub> (99,9%, Sigma-Aldrich) được cho vào dung dịch chứa muối SnCl<sub>2</sub>.2H<sub>2</sub>O, sau đó được hòa tan với dung dịch ethanol. Hỗn hợp được khuấy và đun nóng ở 70°C trong 2 giờ một bình kín. Màng ATO được lắng đọng trên đế thạch anh từ dung dịch (sol) được thực hiện bằng quy trình phủ nhúng. Các đế thạch anh được làm sạch trước khi nhúng vào dung dịch và sau đó rút ra với tốc độ không đổi 80 mm/phút. Màng SnO<sub>2</sub>: Sb sau phủ nhúng được sấy khô ở 200 °C trong 15 phút. Các mẫu sau đó được ủ ở các nhiệt độ khác nhau 100°C, 300°C, 500°C và 700°C tương ứng ở tốc độ 10°C/phút trong không khí, và được giữ ở nhiệt độ này trong 120 phút mỗi quá trình ủ. Các màng ATO được ủ ở các nhiệt độ khác nhau được ký hiệu ATO – 100°C, ATO – 300°C, ATO – 500°C và ATO – 700°C. Quá trình phủ và làm khô được lặp lại để thu được các màng thích hợp độ dày thích hợp để phân tích. Cấu trúc tinh thể của màng được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X trên máy D8–ADVANCE. Tính chất điện được xác định bằng phép đo Hall Van der Pauw trên máy đo HMS3000. Đặc trưng cảm biến ion H<sup>+</sup> được khảo sát bằng cấu trúc pH- EGFET, trong đó cấu trúc được chia thành hai phần bao gồm thiết bị cảm biến màng ATO và thiết bị MOSFET (Hình 3). Đặc trưng I-V của cấu trúc cảm biến pH- EGFET trong điều kiện pH 5, 7, 9 được đo bằng máy phân tích Keithley 2400.

## 3 KẾT QUẢ VÀ BÀN LUẬN

### 3.1 Cấu trúc tinh thể



Hình 1: Giản đồ nhiễu xạ tia X của các màng ATO – x (x=100°C, 300°C, 500°C, 700°C) được nung ở các nhiệt độ khác nhau.

Hình 1 trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X của các màng màng ATO – x (x = 100°C, 300°C, 500°C, 700°C) được nung ở các nhiệt độ khác nhau. Kết quả thu được màng ATO có cấu trúc vô định hình ở nhiệt độ ủ nhiệt độ phòng và bắt đầu tinh thể ở nhiệt độ ủ trên 300°C với cấu trúc tứ giác rutile (JCPDS No. 41-14445). Cấu trúc tinh thể của các màng ATO – x (x = 100°C, 300°C, 500°C, 700°C) có các mặt mạng SnO<sub>2</sub> (110), SnO<sub>2</sub> (211). Đặc biệt, các màng ATO đạt độ tinh thể cao khi nhiệt độ ủ tăng lên với mặt mạng SnO<sub>2</sub> (110) là mặt trội. Ngoài ra, các trạng thái oxit của Sb không tìm thấy chứng tỏ đã có sự thay thế tạp Sb ở vị trí Sn trong mạng chủ SnO<sub>2</sub>. Bên cạnh đó, các thông số hằng số mạng và kích thước tinh thể của các màng ATO được liệt kê ở Bảng 1. Hằng số mạng (a và c) của tứ giác SnO<sub>2</sub> rutile được tính theo phương trình (1), trong đó h, k, l là chỉ số Miller của mặt mạng và d là khoảng cách giữa các mặt mạng. Trong khi đó, kích thước

thể của các màng được tính từ phương trình (2). Phương trình 2 cho biết hệ số K được gọi là hệ số hình dạng và được xác định là 0,9, bước sóng của tia CuK $\alpha$ 1 (0.154056 nm),  $\beta$  là độ bán rộng cực đại, góc nhiễu xạ Bragg và D là kích thước tinh thể.

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2+k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (1)$$

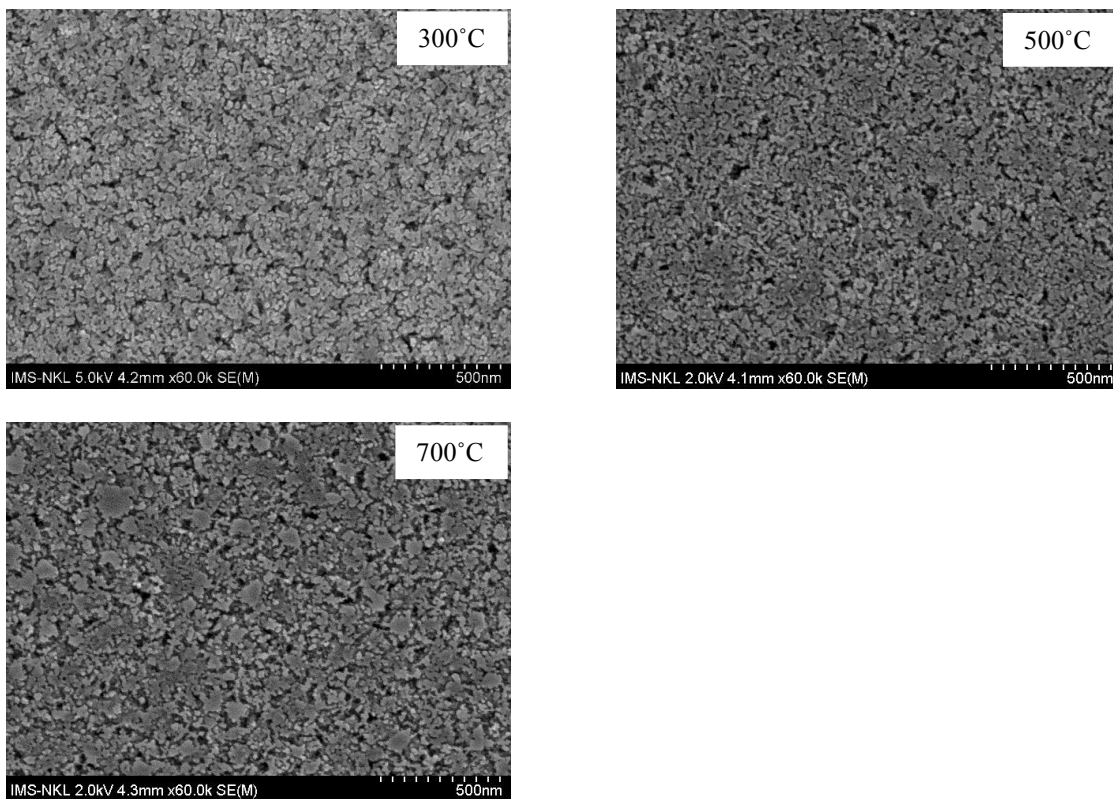
$$D = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2)$$

Bảng 1. Hằng số mạng và kích thước tinh thể của các màng ATO – x (x = 300°C, 500°C, 700°C)

Tên mẫu	(hkl) - 2 $\theta$	Kích thước tinh thể D (nm)	Kích thước tinh thể trung bình D <sub>a</sub> (nm)	a = b (Å)	c (Å)	Thể tích ô mạng ([Å] <sup>3</sup> )
ATO –300°C	(110) – 26,68	20,53	17,4420	4,7252	3,1921	71,2739
ATO –500°C	(110) – 26,78	20,50	18,3822	4,7078	3,1870	70,6389
ATO –700°C	(110) – 26,59	37,55	27,2968	4,7182	3,1972	71,1782

Kết quả **bảng 1** cho thấy giá trị thể tích ô mạng giảm từ 71,2739 Å<sup>3</sup> xuống 70,6389 Å<sup>3</sup> khi tăng nhiệt độ ủ từ 300°C lên 500°C. Kết quả này được giải thích do bán kính ion Sb<sup>5+</sup> (0.61 Å) nhỏ hơn so với Sn<sup>4+</sup> (0.71 Å), vì vậy sự thay thế Sn<sup>4+</sup> bởi Sb<sup>5+</sup> trong mạng chủ dẫn đến mạng tinh thể bị co lại. Tuy nhiên, giá trị thể tích ô mạng tăng ngược trở lại khi nhiệt độ ủ đạt 700°C nhưng giá trị vẫn nhỏ hơn so với màng ATO – 300°C. Đó là do sự xuất hiện của trạng thái hóa trị khác của Sb là Sb<sup>3+</sup>. Trạng thái hóa trị của Sb phụ thuộc vào nhiệt độ chế tạo và áp suất riêng phần của oxy như được quan sát ở các công trình [10], trong đó trạng thái Sb<sup>3+</sup> xuất hiện ở nhiệt độ cao trên 800°C. Vì vậy, thể tích ô mạng của màng ATO – 700°C nở rộng do bán kính ion của Sb<sup>3+</sup> (0.76 Å) lớn hơn so với Sn<sup>4+</sup> (0.71 Å). Ngoài ra, kích thước tinh thể trung bình của các màng ATO tăng theo nhiệt độ ủ và đạt giá trị lớn nhất đối với màng ATO – 700°C, chứng tỏ chất lượng tinh thể của các màng ATO càng tốt.

### 3.2 Hình thái bề mặt màng ATO



Hình 2: Hình thái bề mặt của các màng ATO – x (x = 300°C, 500°C, 700°C) được nung ở các nhiệt độ khác nhau.

Kính hiển vi điện tử quét (SEM) là một kỹ thuật tốt để phân tích hình thái bề mặt của các màng mỏng và nó cung cấp thông tin có giá trị về hình dạng và kích thước của các hạt. Hình thái bề mặt của màng oxit dẫn điện trong suốt ảnh hưởng đến các đặc tính điện và quang học của chúng, là những yếu tố quan trọng trong các ứng dụng của thiết bị quang điện tử. Hình 2 cho thấy hình thái bề mặt của các màng ATO được ủ ở các nhiệt độ khác nhau. Kết quả cho thấy hình thái bề mặt của tất cả các màng phụ thuộc vào nhiệt độ ủ. Bề mặt của tất cả các màng cho thấy một giao diện đồng nhất và cấu trúc xốp trong tất cả các vùng được quét của màng. Tất cả các màng cho thấy các hạt nhỏ và các hạt lớn nằm rải rác xen kẽ trên bề mặt. Ở nhiệt độ ủ 300°C, các hạt có kích thước nhỏ chiếm ưu thế trên bề mặt của màng ATO. Tuy nhiên, kích thước hạt trở nên lớn hơn và chiếm ưu thế so các hạt nhỏ, kích thước hạt trở nên lớn hơn và kết tinh của màng được cải thiện khi nhiệt độ ủ ở 500°C. Các hạt nhỏ sẽ kết tụ lại với nhau và hình thành các hạt có kích thước lớn hơn khi nhiệt độ ủ tăng. Quá trình này được giải thích khi tinh thể được hình thành, các hạt nhân đầu tiên được tạo ra, sau đó các nguyên tử hoặc ion kế cận dính vào hạt nhân theo một thứ tự ưu tiên được xác định bởi mức năng lượng của mạng tinh thể, tạo thành một lớp đều đặn. Mặt khác, nếu sự tăng trưởng xảy ra liên tục, các hạt có thể nở ra theo hai chiều và có thể xảy ra hiện tượng chồng lên nhau. Kết quả này phù hợp với giản đồ nhiễu xạ tia X, cho thấy rằng độ bán rộng của các đỉnh trở nên hẹp hơn ở nhiệt độ ủ 700°C, cho thấy sự gia tăng về chất lượng và kích thước tinh thể.

### 3.3 Tính chất điện của các màng ATO

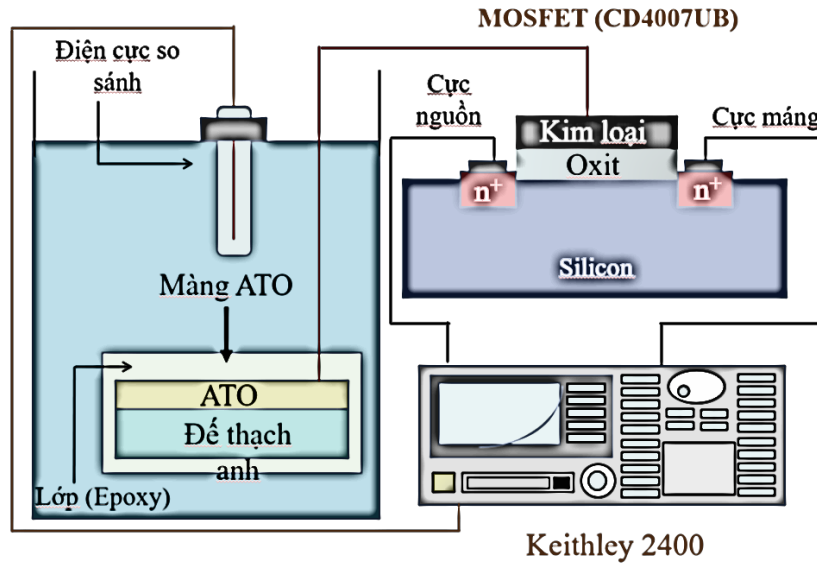
Bảng 2. Kết quả đo Hall của các màng ATO – x (x = 100°C, 300°C, 500°C, 700°C).

Tên mẫu	T (°C)	Nồng độ hạt tải (cm <sup>-3</sup> )	Độ linh động (cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	Điện trở suất (Ωcm)
ATO – 100°C	100	-	-	-
ATO – 300°C	300	-3,01 x 10 <sup>18</sup>	4,05	4,60 x 10 <sup>-1</sup>
ATO – 500°C	500	-1,68 x 10 <sup>19</sup>	5,30	7,00 x 10 <sup>-2</sup>
ATO – 700°C	700	-2,09 x 10 <sup>18</sup>	8,52	3,50 x 10 <sup>-1</sup>

Bảng 2 trình bày kết quả đo Hall của các màng ATO – x (x = tp, 300°C, 500°C, 700°C). Kết quả cho thấy màng ATO có điện trở vô cùng lớn khi nhiệt độ ủ ở nhiệt độ phòng. Khi nhiệt độ ủ trong khoảng từ 300°C - 700°C, màng ATO có tính chất điện loại n và điện trở suất thấp đạt được là 7,00 x 10<sup>-2</sup> Ωcm, tương ứng nồng độ hạt tải và độ linh động lần lượt là -1,68 x 10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>, cm<sup>2</sup>V<sup>-1</sup>s<sup>-1</sup> đối với màng ATO – 500°C. Tuy nhiên, điện trở suất của màng tăng khi nhiệt độ ủ đạt 700 °C do nồng độ hạt tải giảm, kết quả trên được giải thích do sự xuất hiện vị trí acceptor Sb<sup>3+</sup> từ sự thay thế Sn<sup>4+</sup> bởi Sb<sup>3+</sup> bù điện tích với các donor Sb<sup>5+</sup> từ sự thay thế Sb<sup>5+</sup> ở vị trí Sn<sup>4+</sup>, hiện tượng bù điện tích cũng được quan sát ở công trình [12, 13].

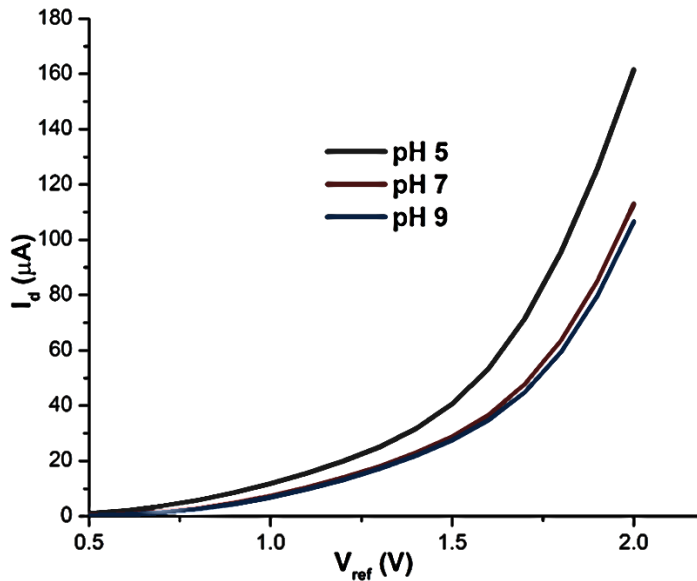
### 3.4 Cảm biến pH

Máy phân tích thông số bán dẫn Keithley 2400 được sử dụng để xác định độ nhạy pH của cấu trúc EGFET ở pH 5, 7, 9 ở nhiệt độ phòng (25 °C). EGFET được ngâm trong dung dịch đệm trong 1 phút trước khi thử nghiệm. Cơ chế hoạt động của EGFET giống với thiết bị MOSFET truyền thống, ngoại trừ cấu trúc cảm biến được nhúng vào dung dịch đệm. EGFET và điện cực so sánh (Ag/AgCl) được đặt trong dung dịch đệm pH 5, 7, 9. Các đặc tính truyền của pH- EGFET ở các điện áp của điện cực so sánh khác nhau (V<sub>Ref</sub>) và dung dịch pH được thể hiện trong **Hình 4**. Các điện áp so sánh được áp vào điện cực so sánh Ag/AgCl, độ nhạy pH của màng ATO – 300°C với cổng EGFET thu được thông qua sự thay đổi điện áp ngưỡng của cảm biến EGFET.



Hình 3: Sơ đồ hệ đo đặc trưng I-V của cảm biến pH - EGFET.

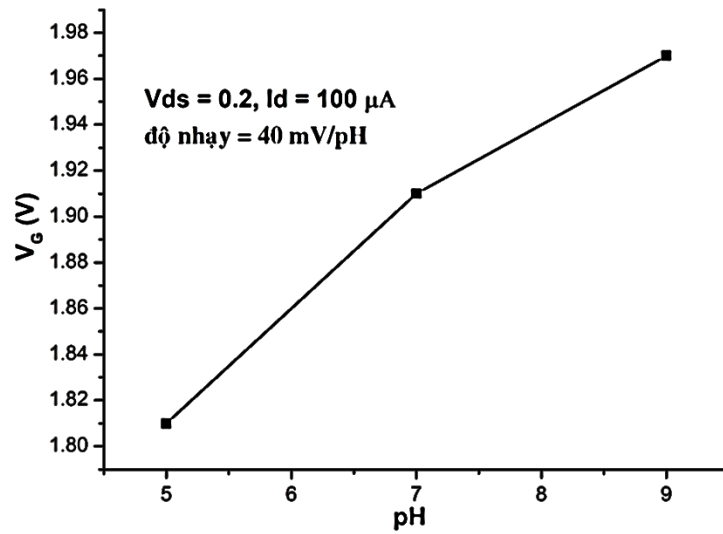
Kết quả thu được từ Hình 4, khi giá trị pH tăng từ 5 lên 9, thế năng bề mặt của lớp cảm biến ion giảm, vì vậy điện thế vùng ( $V_{FB}$ ) và điện thế ngưỡng  $V_T$  của thiết bị giảm. Vì vậy, đường đặc trưng pH dịch về giá trị dương.



Hình 4: Đặc trưng  $I_D$ - $V_{ref}$  của của cảm biến pH – EGFET của màng ATO – 300°C trong nồng độ từ pH 5 đến 9.

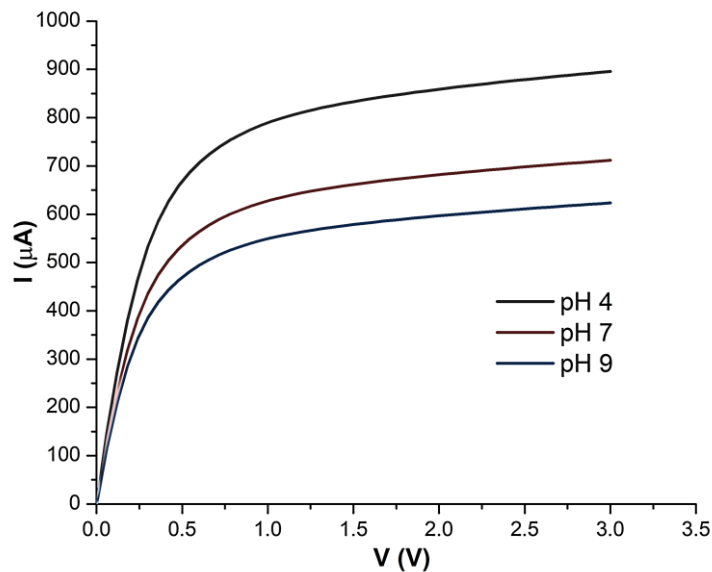
Ngoài ra, từ đường đặc trưng  $I_D - V_{ref}$  có thể xác định độ nhạy pH bằng cách đo độ dịch của thế ngưỡng  $V_T$  và kết quả thu được thể hiện trong **Hình 5**. Trong đó cảm biến EGFET với công cảm biến màng ATO – 300°C có độ nhạy pH với đường đặc trưng tuyến tính đạt xấp xỉ 40 mV/pH trong phạm vi nồng độ từ pH 5 đến 9, được tính từ phương trình.

$$\text{độ nhạy} = \left| \frac{\Delta\phi_0}{\Delta pH} \right| = \left| \frac{\Delta V_T}{\Delta pH} \right| = \left| \frac{\Delta V_G}{\Delta pH} \right| \quad (3)$$



Hình 5: Đặc trưng  $V_G - \text{pH}$  của cảm biến pH – EGFET đối với màng ATO – 300°C trong nồng độ từ pH 5 đến 9.

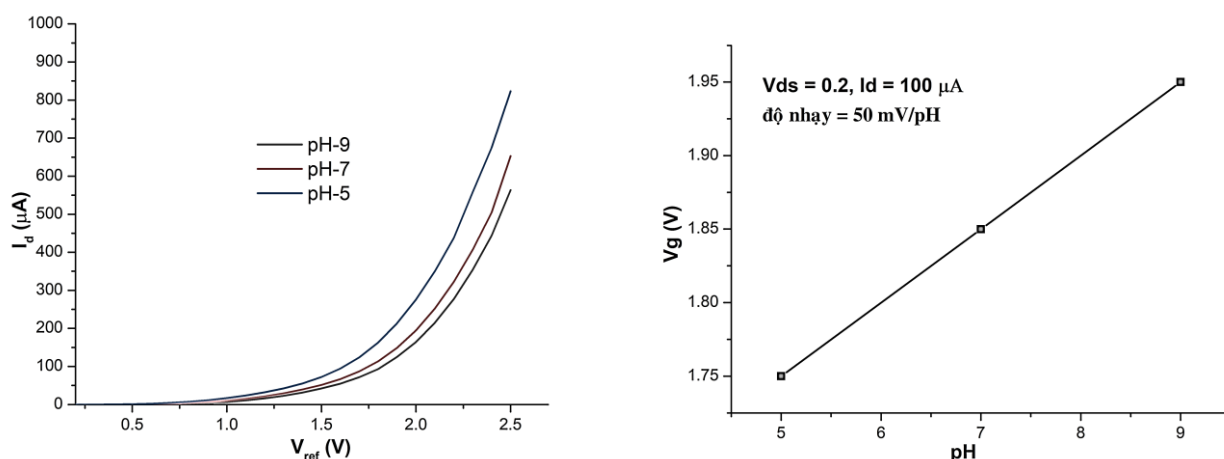
Trong nghiên cứu này, mạch dòng điện và điện áp được giữ không đổi trong quá trình khảo sát phản ứng pH. Điện áp cổng được áp ở 0,2V và công dòng điện được xác đo ở 100  $\mu\text{A}$ . Hình 5 cho thấy EGFET vẫn có độ tuyến tính tốt.



Hình 6: Đặc trưng  $I_D - V_{DS}$  của cảm biến pH – EGFET đối với màng ATO – 300°C trong nồng độ từ pH 5 đến 9.

Hình 6 cho thấy các đặc trưng  $I_D - V_{DS}$  của EGFET trong khoảng nồng độ giữa pH 5 và 9. Cường độ dòng vùng bão hòa được biểu thị bằng biểu thức  $I_D = \frac{\mu_0 C_{ox} W}{2L} (V_{Ref} - V_T)^2 (1 + \lambda V_{DS})$  (4), trong đó  $\mu_0$  là độ linh động của electron trong kênh,  $\lambda$  là hệ số điều chế độ dài kênh,  $C_{ox}$  là điện dung oxit trên một đơn vị diện tích,  $W/L$  là tỷ lệ chiều rộng-chiều dài kênh,  $V_{Ref}$  và  $V_{DS}$  lần lượt là điện áp của điện cực so sánh và điện áp nguồn. Trong phương trình (4),  $V_T$  phụ thuộc vào giá trị pH.

Từ các cách tính đã trình bày trên, đặc trưng  $I_D - V_{ref}$  và độ nhạy của các màng ATO – 500°C được tính và trình bày ở Hình 7. Trong đó, kết quả cho thấy màng ATO – 700°C sẽ không được trình bày. Kết quả thu được giá trị độ nhạy của các màng ATO – 700°C và ATO – 500°C lần lượt là 45 mV/pH và 50 mV/pH.



Hình 7: A). Đặc trưng  $I_D$ - $V_{\text{ref}}$  của cảm biến pH – EGFET

B). Đặc trưng  $V_G$  – pH của cảm biến pH – EGFET đối với màng ATO – 500°C trong nồng độ từ pH 5 đến 9.

#### 4 KẾT LUẬN

Công trình này, chúng tôi đã chế tạo thành công màng SnO<sub>2</sub> pha tạp Sb với tỉ lệ Sb/Sn: 5 mol% ứng dụng trong làm cảm biến pH. Chúng tôi đã sử dụng đặc trưng  $I_D$ - $V_{\text{ref}}$  của của cảm biến pH – EGFET để xác định độ nhạy của màng. Kết quả thu được màng ATO – 700°C đạt giá trị độ nhạy cao nhất 50 mV/pH. Ngoài ra, công trình này cũng cho thấy ảnh hưởng của nhiệt độ ử đến cấu trúc tinh thể, hình thái bề mặt cũng như tính chất điện của màng ATO. Kết quả thu được cho thấy nhiệt độ ử càng tăng ảnh hưởng kích thước tinh thể, kích thước hạt, độ tinh thể của màng tăng.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Hong C-H, Shin J-H, Ju B-K, Kim K-H, Park N-M, Kim B-S, et al. Index-Matched Indium Tin Oxide Electrodes for Capacitive Touch Screen Panel Applications. *J Nanosci Nanotech* 2013;13:7756–9. <https://doi.org/10.1166/jnn.2013.7814>.
- [2] Minami T. New *n*-Type Transparent Conducting Oxides. *MRS Bull* 2000;25:38–44. <https://doi.org/10.1557/mrs2000.149>.
- [3] Rogers DJ, Teherani FH, Sandana VE, Razeghi M. ZnO thin films and nanostructures for emerging optoelectronic applications. In: Eldada LA, Lee E-H, editors., San Francisco, California: 2010, p. 76050K. <https://doi.org/10.1117/12.862634>.
- [4] Granqvist CG. Transparent conductors as solar energy materials: A panoramic review. *Solar Energy Materials and Solar Cells* 2007;91:1529–98. <https://doi.org/10.1016/j.solmat.2007.04.031>.
- [5] Batista PD, Mulato M, Graeff CF de O, Fernandez FJR, Marques F das C. SnO<sub>2</sub> extended gate field-effect transistor as pH sensor. *Braz J Phys* 2006;36:478–81. <https://doi.org/10.1590/S0103-97332006000300066>.
- [6] Chinnasamy M, Balasubramanian K. Enhanced UV photodetection behavior of Cr doped wurtzite ZnO crystalline nanorods. *Optical Materials* 2020;110:110492. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2020.110492>.
- [7] Ganose AM, Scanlon DO. Band gap and work function tailoring of SnO<sub>2</sub> for improved transparent conducting ability in photovoltaics. *J Mater Chem C* 2016;4:1467–75. <https://doi.org/10.1039/C5TC04089B>.
- [8] Yusof KA, Abdul Rahman R, Zulkefle MA, Herman SH, Abdullah WFH. EGFET pH Sensor Performance Dependence on Sputtered TiO<sub>2</sub> Sensing Membrane Deposition Temperature. *Journal of Sensors* 2016;2016:1–9. <https://doi.org/10.1155/2016/7594531>.

- [9] Wang J-L, Yang P-Y, Hsieh T-Y, Hwang C-C, Juang M-H. pH-Sensing Characteristics of Hydrothermal Al-Doped ZnO Nanostructures. *Journal of Nanomaterials* 2013;2013:1–7. <https://doi.org/10.1155/2013/152079>.
- [10] Cho S-K, Cho W-J. Effect of forming gas annealing on SnO<sub>2</sub> sensing membranes in high-performance silicon-on-insulator extended-gate field-effect transistors. *Thin Solid Films* 2020;706:138083. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2020.138083>.
- [11] Tillotson TM, Gash AE, Simpson RL, Hrubesh LW, Satcher JH, Poco JF. Nanostructured energetic materials using sol–gel methodologies. *Journal of Non-Crystalline Solids* 2001;285:338–45. [https://doi.org/10.1016/S0022-3093\(01\)00477-X](https://doi.org/10.1016/S0022-3093(01)00477-X).
- [12] He J. Metal oxide varistors: from microstructure to macro-characteristics. 2019.
- [13] Liu HY, Izyumskaya N, Avrutin V, Özgür Ü, Yankovich AB, Kvit AV, et al. Donor behavior of Sb in ZnO. *Journal of Applied Physics* 2012;112:033706. <https://doi.org/10.1063/1.4742984>.

*Ngày nhận bài: 09/11/2020*

*Ngày chấp nhận đăng: 22/03/2021*