國立中山大學材料與光電科學學系

博士論文

Department of Materials and Optoelectronic Science

National Sun Yat-sen University

Doctoral Dissertation

可撓式低溫多晶矽及有機薄膜電晶體開發與物理機制探討

Development and Physical Mechanisms Establishment of Flexible Low Temperature Polycrystalline Silicon and Organic Thin Film Transistors

研究生：鄭宇哲

Yu-Zhe Zheng

指導教授：蔡宗鳴 博士

Dr. Tsung-Ming Tsai

中華民國112年1月

January 2023

國立中山大學
材料與光電科學學系

博士論文　可撓式低溫多晶矽及有機薄膜電晶體開發與物理機制探討　研究生：鄭宇哲

111學年度

國立中山大學材料與光電科學學系

博士論文

Department of Materials and Optoelectronic Science

National Sun Yat-sen University

Doctoral Dissertation

可撓式低溫多晶矽及有機薄膜電晶體開發
與物理機制探討

Development and Physical Mechanisms Establishment of

Flexible Low Temperature Polycrystalline Silicon and

Organic Thin Film Transistors

研究生：鄭宇哲

Yu-Zhe Zheng

指導教授：蔡宗鳴 博士

Dr. Tsung-Ming Tsai

中華民國112年1月

January 2023

論文審定書

國立中山大學研究生學位論文審定書

本校材料與光電科學學系博士班

研究生鄭宇哲（學號：D073100002）所提論文

可撓式低溫多晶矽及有機薄膜電晶體開發與物理機制探討
Development and Physical Mechanisms Establishment of Flexible Low Temperature Polycrystalline Silicon and Organic Thin Film Transistors

於中華民國 112 年 1 月 7 日經本委員會審查並舉行口試，符合博士學位論文標準。

學位考試委員簽章：

召集人 莫亦先 莫亦先　　委　員 蔡宗鳴 蔡宗鳴

委　員 張鼎張 張鼎張　　委　員 陳柏勳 陳柏勳

委　員 陳紀文 陳紀文　　委　員 ＿＿＿＿

委　員 ＿＿＿＿　　委　員 ＿＿＿＿

委　員 ＿＿＿＿　　委　員 ＿＿＿＿

指導教授(蔡宗鳴) 蔡宗鳴 (簽名)

致謝

時間過得很快，轉眼間就已經到了博士班的尾聲了，很開心能夠加入這個實驗室的大家庭，從沒想過自己可以走到這一步，慶幸自己在碩士班找指導老師的時候，光電系的老師當初沒有收我，叫我多去看看其他實驗室，之後看了TCC實驗室及經過老師的實驗室介紹以及人格特質的篩選，讓我進入到了這個大家庭。想當初剛進實驗室時還是一個元件物理什麼都不會的大學畢業生，最最最感謝的就是我的指導教授-張鼎張老師，由於老師的細心與教學的熱誠，用最簡單的比喻讓我能夠理解艱深難懂的物理知識，就算是完全未接觸過的新人也能夠理解其中的含意。在過程中我與其他人不同，而是先走碩士畢業的方式，而在碩士的期間也深受實驗室很大的幫助，也順利的在中山光電系畢業，並且抱著這些熱情與知識繼續攻讀博士學位。

除了張老師之外，謝謝蔡宗鳴老師的指導與教誨。接下來要感謝我的家人鄭振昆先生及楊寶玉女士，謝謝您們，雖然我出頭很多，但是在我求學過程中默默您們還是在背後支持我。另外還有感謝我的哥哥鄭旭淵和姐姐鄭伊婷，謝謝你們照顧我這個噗龍共的弟弟，謝謝加人們的栽培才有今天的我。接下來要感謝的是女朋友Cindy，謝謝妳在我求學的過程中不斷地給我精神上的鼓勵，在當室友的這兩年來，謝謝妳在我生病的時候照顧我，也是因為有妳的照顧才有今天的我。感謝柏瑋學長手把手帶著我，謝謝當初我碩士要畢業還跟你去星巴克看論文的內容。謝謝姐仔馨平，在我開心難過的時候都有妳，也是手把手帶著我回稿，長大之後我這樣幫助學弟妹時都會想起妳當初的教導，謝謝有妳。謝謝華茂當初第一次進實驗室時熱心的接待我。謝謝狗頓、檔車、施妹、阿咪、懿霆(脆哥)、志揚、俞慶、宏誌、政憲、建佑，我在實驗室的這段時間謝謝有你們成就了今天的我。謝謝冠甫每天陪我吃元福。謝謝司機智程、皓軒，我永遠不會忘記漢神停車場。謝謝凱琳、宥林、慈筠、宛萱、耀凱、育霖、晏城、冠旭、宇珊、景涵，實驗室有你們真添不少回憶。謝謝奕年陪我登登登登~登登

登。謝謝之稚，講冷笑話讓我賠了不少錢。 謝謝我的畢業夥伴們福源、穩仲、俊曲、揚豪、豐閔、妤珊一同走過這些辛苦的路，謝謝你們，我愛你們! 謝謝柏勳學長一直以來的幫助，謝謝您。謝謝敏甄學姐在實驗室很多事務上的協助。瑋駿、凱鈞、珮瑜、玉發、仕鎧、茂洲、建傑、煒宸、Nini、宇瑄、小番茄、Mark、笠荃、庭慈、建宏、詠慈、娟瑋、偉傑、雅婷、重緯、又瑄、昱安、泓邑、佳撰、聖堯、瑞澤、家宏、亞寰、涬珅、紘銘、裕博、彥達、沛君、怡蓁、瑋廷 、韋翔 、涵羽、欣穎、宜庭、柏逸、奎祐 、伯瑜、富宸、彥晢、郁珊、新捷、婧嘉，謝謝你們這群學弟妹在實驗室給了我不少幫助，感恩的心。

謝謝鹽埕好朋友林家瑋&陳冠宇，喝酒、露營有你們真好。謝謝喜樹之子蔡仔，看到這段話的人要買 Nike 唯一指名。謝謝鹽埕清志郎老闆龍哥以及鹽埕的夥伴們，杰恩、丸子、車車、馬西、小就、阿國、子恒、阿翔陪我喝酒。

接下來則是要感謝我 overtake 的夥伴們，勁維、政寧、炫智、彥辰、佳瑋，謝謝你們陪我一起熱血! 接下來則是要感謝我的劍玉團隊超朋友劍玉糖，火旺、直捲、眼哥、康偉、仁麒、豪萱、EG、汶珈、螞蟻、水藍、廷宇、阿吉、理愃、睿泰、秘密、豬肚皮、阿姨、Q、Amber、依維、仁哲、小銘、雷達、韋程、少白、其葳、12、7樺，謝謝有你們陪著我玩劍玉、打飛鏢，讓我學生時期精彩不少。要感謝的人太多了，只好用一句來代表，謝謝"大家"我愛你們

最後感謝國防工業發展基金會提供獎學金，讓我在博士班期間不會受到經濟上的困擾，未來我也會持續努力，繼續為自己彩色的未來奮鬥

鄭宇哲 謹識

摘要

近年來，柔性薄膜電晶體的應用範圍越來越廣泛，導致許多研發及研究人員投入更多的心力去開發相關的顯示器產品。隨著市場上的需求，智慧型手機從原本的平面式顯示、固定曲率邊界到可以重複彎曲摺疊的智慧型手機，柔性螢幕成為了現在及未來的顯示器趨勢。然而從柔性薄膜電晶體的彎曲的耐久性及電性的可靠度仍然有進步的空間。本論文探討可撓式低溫多晶矽薄膜電晶體在機械應力彎曲後彎曲耐久性的議題以及討論可撓式有機薄膜電晶體在彎曲後的物理機制並研究在指叉結構下的有機薄膜電晶體的電性劣化。

本博士論文第一章節主要討論低溫多晶矽薄膜電晶體在可撓式聚醯亞胺(Polyimide)基板上藉由改善氧化層品質來提升機械應力的耐久性。現階段的可撓式薄膜電晶體多半使用聚醯亞胺作為基板，除了具有可彎曲性外，且具有良好的熱穩定性以及化學特性。此外聚醯亞胺這材料可以整合於溶液製程，因此可以用旋轉塗布的方式進行沉積。沉積在可撓式基板的低溫多晶矽薄膜電晶體在經過多次彎曲過後，會因為材料之間楊氏係數的差異，使應力集中在氧化層的邊界處，造成 LTPS TFTs 的電性劣化，因此氧化層的品質對於 LTPS TFTs 來說是一個重要的關鍵。本章節中，研究使用化學氣象沉積(PECVD)沉積閘極氧化層時，通入不同氦濃度來提升二氧化矽的品質，以此增強低溫多晶矽薄膜電晶體的電性可靠度和機械應力的耐久性。藉由參數的萃取，如次臨界擺幅、載子遷移率、電性量測及機械應力測試等來調查氦氣對於 PECVD 在沉積氧化成時的影響，最後也利用電子束顯微鏡中的 X 射線能量散布分析儀來分析元素之間的差異。

本論文第二章節中，研究了在一系列不同氣氛中進行機械彎曲應力後有機薄膜電晶體的電性變化。在大氣環境中，經過 100,000 次通道寬度軸壓應力彎曲和彎曲半徑為 R=5 mm 的長時間固定曲率後，可以看到臨界電壓 (V_T) 有嚴重的劣化行為。在彎曲後退火之後，對於動態和靜態彎曲測試，V_T 恢復到比初始 V_T

更負的值。在真空中進行彎曲測試，消除了環境大氣對 OTFT 的影響，表明器件在大氣彎曲下的退化主要由兩種機制決定。依次引入不同的氣體（濕度、氮氣、二氧化碳、氧氣）以了解它們對 OTFT 的影響。通過研究真空和大氣中的影響，我們能夠將機械彎曲對 OTFT 的物理影響與暴露於環境因素引起的變化區分開來。由於不同的機械彎曲條件，主動層表面的小分子會引起不同的電性特性。最後，提出了有機 TFT 的機械彎曲和大氣因素的物理模型。

第三部分調查了高電流操作下焦耳加熱對指插結構的有機薄膜電晶體(OTFTs) 的影響。 討論了具有不同指叉數量（N＝4、6 和 10）的元件之電性劣化。 由於運行期間的熱量積累，在大電流下觀察到顯著的電性退化。 在高電流及電壓的操作下，隨著指叉數量的增加，電性呈現不同程度的劣化，在 10 個指叉數量的元件中觀察到異常駝峰。 為了驗證自熱效應對於 OTFTs 的影響，將 OTFTs 製備在不同導熱係數的材料上，聚醯亞胺和玻璃兩種基板，並在室溫和低溫下研究了電性劣化的原因。 此外，還提出了交流操作來改變元件的加熱與散熱時間進而得到驗證。最後，透過了 Silvaco TCAD 仿真來模擬元件的自熱效應，並說明手指數量對偏置應力的影響，並且提出劣化的原因。

關鍵字：可撓式電子元件、低溫多晶矽薄膜電晶體、有機薄膜電晶體、真空彎曲量測、氣氛量測、跳躍距離、指叉結構、自熱效應

Abstract

Recently, the application of flexible thin-film transistors has become more and more striking, which leading many R&D and researchers to put more effort into developing related display products. With the demand in the market of display, smart phones have evolved from the traditional flat display to the fixed curvature boundary and the smart phone that can be repeatedly bent and folded. However, there is still room for improvement in the bending endurance and electrical reliability of the flexible thin film transistor. The topics discussed in this dissertation include the bending endurance of flexible low temperature polysilicon thin film transistors under mechanical bending stress, the physical mechanism of flexible organic thin film transistors after bending, and studies the electrical deterioration of organic thin film transistors with multi-Finger structure.

The first part of this dissertation discusses low-temperature polysilicon thin film transistors on flexible polyimide (Polyimide) substrates to improve the endurance of mechanical stress by improving the quality of the oxide layer. Most of the current flexible thin film transistors use polyimide as the substrate, which not only has flexibility but also has good thermal stability and chemical properties. In addition, the polyimide can be integrated with the solution process, so it can be deposited by spin coating. However, due to the difference Young's moduli between deposited layers, the result of the low-temperature polysilicon thin film transistor with the flexible substrate shows the strain will be concentrated at the edge of the gate insulator under the mechanical bending stress, that cause the electrical deterioration of the LTPS TFTs. Therefore, the quality of the oxide layer is an important key for LTPS TFTs.

In this chapter, the use of chemical vapor deposition (PECVD) to deposit the gate oxide layer is studied to improve the quality of silicon dioxide by introducing different helium concentrations, thereby enhancing the electrical reliability and mechanical stress endurance of low-temperature polysilicon thin film transistors. Through the extraction of parameters to investigate the effect of different helium concentrations on PECVD deposition the gate insulator, such as subthreshold swing, carrier mobility, electrical measurement, and mechanical stress test. Finally, transmission electron microscopy (TEM) and energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) to analyze element changes between materials

In the second part, the electrical characteristics of organic thin film transistors after mechanical bending stress in a series of different atmospheres are investigated. In atmospheric environments, severe degradation behavior of the threshold voltage (V_T) can be observed after 100,000 channel width axial compressive stress bends and a long-term fixed curved with a bending radius of R=5 mm. Following annealing after bending, V_T recovered to a more negative value than the initial V_T for both dynamic and fixed curved bending. Performing bending tests in a vacuum, which eliminates the influence of the ambient atmosphere on the OTFTs, shows that the degradation of the device under atmospheric bending is dominated by two mechanisms. Sequentially introduce different gases (humidity, nitrogen, carbon dioxide, oxygen) to clarify their effect on OTFTs. According to the experiments described above, the effects in the vacuum and atmosphere, we are able to separate the physical effects of mechanical bending on the OTFTs from the changes induced by exposure to environmental factors. Due to different mechanical bending conditions, small molecules on the surface of the active layer can induce different electrical properties. Finally, physical models of mechanical bending and atmospheric factors of organic TFTs are proposed.

The third section investigates the effect of Joule heating on organic thin-film transistors (OTFTs) with multi-finger structured under high-current operation. The electrical degradation of OTFTs with different numbers of fingers (N = 4, 6 and 10) is discussed. Significant electrical degradation was observed at high current due to heat accumulation during operation. Under the operation of high current and voltage, with the increase of the number of fingers, the electrical characteristics show different degrees of deterioration, and an abnormal hump is observed in the OTFTs with the N= 10. In order to verify the influence of self-heating effect on OTFTs, OTFTs were fabricated on materials with different thermal conductivity, polyimide and glass substrates, and the causes of degradation were investigated at both room temperature and low temperatures. In addition, AC operation is proposed to change the heating and cooling time. Finally, Silvaco TCAD simulation is used to simulate the self-heating effect of the OTFTs devices, and the effect of the number of fingers on the bias stress is explained, and the reason for the deterioration is proposed.

Index Terms: Flexible electronic devices, Low temperature polycrystalline silicon TFT, Organic TFT, Vacuum bending measurement, Atmosphere measurement, Hopping distance, Multi-finger structure, Self-heating effect.

Contents

Figure Captions

Table Caption