## **Summary of Doctoral Thesis**

**Title of Doctoral Thesis:** Structural functionalization of polysilsesquioxane for thin-film device applications (ポリシルセスキオキサン構造機能化および薄膜デバイス 応用)

Name: SAFARUDDIN Aimi Syairah

## **Summary of Doctoral Thesis:**

The ever-evolving display technology is moving towards creating the illusion of reality from vivid image quality. Therefore, development of thin-film transistors (TFT) which is the crucial component in display panel have been accelerating. Amorphous oxide semiconductor (AOS) material offers excellent mobility, remarkable scalability, with solution process compatibility. Nevertheless, AOS TFTs still experience severe degradation upon exposure to ambient atmosphere manifested by the change in threshold voltage and substandard electrical performance specifically AOS channel deposited via solution-processed technique. In this dissertation, the role of inorganic-organic polysilsesquioxane (PSX) polymer was investigated as passivation and gate insulator layers for AOS channel through alkyl groups functionalization and nanoparticle incorporation.

Chapter 2 presents the fabrication of low-temperature PSX as passivation layer through incorporation of inorganic silica (Q) group. By introducing Q group, polymer curing temperature was successfully lowered from 300 °C to 180 °C assisted by enhanced silanol condensation reaction. Among the two different Q ratio introduced (10% and 30%), lower Q ratio exhibits better performance due to lower excessive water generation from the PSX layer which accumulated at the interface between passivation/semiconductor channel. Better device stability was also achieved through incorporation of PSX passivation even cured at low temperature. Aside from that, improvement of electrical performance was observed through hydrogen diffusion from PSX passivation to AOS channel confirmed by SIMS analysis.

Chapter 3 explores a rarely used non-contact spray pyrolysis (SP) technique

to deposit a passivation layer. SP technique has numerous advantages in term of uniform scalability with denser film formation which beneficial for passivation layer to act as barrier for AOS TFTs. Moreover, to improve the AOS TFTs performance, fluorine (F) doped PSX (PSX:F) was introduced taking the advantage of F additives which capable to increase electron carriers as well as passivating defects in AOS bulk through F diffusion. To elucidate the barrier ability of SP PSX:F, spin coated (SC) PSX:F was also fabricated as a comparison. Both SP and SC showed outstanding stability against electrical bias stress test with excellent electrical performance owing to F diffusion. Remarkably, humidity stress test revealed the superior barrier ability of SP PSX:F due to higher film density.

Chapter 4 evaluates the incorporation of barium titanate (BTO) nanoparticles embedded in PSX matric forming high-k nanocomposite (BTOPSX) material. Different nanoparticle dimensions were introduced (20 nm and 100 nm) for ferroelectric TFT applications. BTO is a widely known perovskite ferroelectric material that possess high dielectric constant with room temperature ferroelectricity which originates from the non-centrosymmetric structure of one or few ions in the lattice. 100 nm BTO exhibits counterclockwise (CCW) hysteresis, meanwhile 20 nm BTO demonstrates clockwise (CW) C-V hysteresis directions. The different hysteresis directions were confirmed owing to the different in crystal structures proven from XRD data. Interestingly, ferroelectric property exists for large BTO nanoparticles only at lower fabrication temperature below its curie temperature. TFT characteristics with BTOPSX as gate insulator layer reveals lower operational voltage compared to only low-k PSX polymer layer.

Overall, this dissertation demonstrates the various roles of PSX polymer material through structural functionalization approach for thin-film devices. By understanding the effect of different alkyl groups, additional dopants, and nanoparticle incorporation, different film properties could be achieved which valuable in tuning the functionality of PSX polymer in electronic applications.

## **Summary of Thesis Examination Results:**

次世代のエレクトロニクスに向けて、優れた安定性を備えた高性能と、大規模デバイスを製造するための費用対効果の高い汎用性の高い成膜技術が必要である。そのため、ディスプレイパネルの重要な構成要素である薄膜トランジスタ(TFT)の開発は、目標の実現に向けて加速している。非晶質酸化物半導体 (AOS) 材料は、TFT デバイスのチャネル層として応用されると、ソリューションプロセスとの互換性があり、優れた性能と優れたスケーラビリティを提供する。ただし、AOS TFT は、周囲大気にさらされると、しきい値電圧と電気的性能の変化が課題である。

そこでこの論文の目的は、(1) AOS TFT の安定性を向上させるための低温パッシベーション材料を開発すること、(2) 安定性を維持しながら AOS TFT の性能を向上させるためにドープされたパッシベーション材料を使用すること、(3)強誘電性 AOS TFT アプリケーションをターゲットとするポリマーナノコンポジット材料を調査することとした。

この研究において、無機有機ポリシルセスキオキサン (PSX) 材料は、官能基を変更することによって調整可能な特性を達成できるため、その汎用性のために使用した。 PSX ポリマーは、Si-Oポリマー主鎖で構成され、官能基が側基として結合している。無機シリカ側基の統合により、PSX ポリマーの特性が調整され、低い処理温度で硬化できるようになり、この材料をフレキシブル TFT 応用が可能となった。シリカ基の極性が異なるため、低温で安定した Si-O-Si ネットワークを形成するために必要なエネルギーを下げることができた。しかし、シリカ比率が高くなると水分子が過剰に生成され、ハンプ現象が発生することを確認した。よって、最適化されたシリカ比率 (10%) がデバイスの安定性に最も寄与することが確認された。

PSX ポリマーの汎用性については、チタン酸バリウム (BTO) ナノ粒子をゲート絶縁体 (BTOPSX) 層として導入した。異なる BTO 寸法をもつ試料は、静電容量 - 電圧測定から 異なるヒステリシス方向によって表示される異なる動作メカニズムを示した。より小さなナノ粒子サイズは、電荷トラップ機構を示唆する時計回りのヒステリシスを示し、より大きな BTO ナノ粒子は、強誘電体層の分極に関連する反時計回りのヒステリシスを示した。 XRD 解析によって、ヒステリシス性能の明確な変化を明らかにするさまざまな回折スペクトルが理解できた。立方晶 BTO は Ti 原子にトラップされる電子による電荷トラップ機構を示し、正方晶 BTO は Ti 原子のオフセンター位置による強誘電体層の分極を示した。この調査から明らかになった BTO 構造の違いは、さまざまなメモリアプリケーションのメカニズムを理解するのに効果的である。

本研究は、次世代の半導体デバイスの開発に向けて、有用な薄膜材料やプロセスを提案していることから、審査員一同は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。