

## REVIEW

# 유연 및 신축 전자소자용 봉지막 재료의 연구 동향

유현지<sup>1</sup>, 이소현<sup>2</sup>, 김수민<sup>1</sup>, 조지현<sup>1</sup>, 김주영<sup>1,3,\*</sup>

<sup>1</sup>울산과학기술원 신소재공학과, <sup>2</sup>울산과학기술원 이노코어 AI-우주 태양광 사업단, <sup>3</sup>울산과학기술원 반도체소재·부품대학원

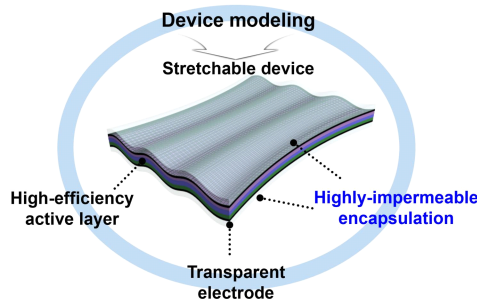
## Research Progress in Flexible and Stretchable Encapsulation Materials for Electronics

Hyeonji Yoo<sup>1</sup>, So-Hyeon Lee<sup>2</sup>, Su-Min Kim<sup>1</sup>, Ji-Hyeon Jo<sup>1</sup>, Ju-Young Kim<sup>1,3,\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Materials Science and Engineering, UNIST (Ulsan National Institute of Science and Technology), Ulsan, Korea

<sup>2</sup>UNIST InnoCORE AI-Space Solar Initiative, UNIST (Ulsan National Institute of Science and Technology), Ulsan, Korea

<sup>3</sup>Graduate School of Semiconductor Materials and Devices Engineering, UNIST (Ulsan National Institute of Science and Technology), Ulsan, Korea



### ABSTRACT

Organic-based flexible and stretchable electronic devices have attracted attention as next-generation wearable technologies due to their high conformability to complex contours of the human body. To ensure their reliable operational lifetime remains a significant challenge, as these devices are inherently vulnerable to degradation by water vapor and oxygen in environment. To address this issue, the development of highly impermeable and stretchable encapsulation materials is essential. However, there is a trade-off relationship between stretchability and impermeability. In this review, recent advances in encapsulation technologies ranging from fundamental materials including polymers, metals, and oxides to the advanced structural approaches to achieve both high stretchability and water vapor barrier performance are discussed.

Key Words: Encapsulation material, Flexible/stretchable electronics, Water vapor transmission rate (WVTR), Mechanical reliability

\*Correspondence: [juyoung@unist.ac.kr](mailto:juyoung@unist.ac.kr)



## 1. 서론

고신축성 전자소자는 소자 성능을 유지하면서도 외부 응력에 따라 자유롭게 형태가 변형될 수 있어, 다양한 굴곡 및 반복 변형이 수반되는 인체에 적용가능한 웨어러블 소자로 활발히 연구되고 있다[1-7]. 높은 신축성을 달성하기 위해, 일반적으로 낮은 탄성계수와 높은 탄성 변형한계를 갖는 고분자를 기반으로 한 유기 발광 다이오드 디스플레이(organic light-emitting diode display, OLED display), 유기 태양전지(organic solar cell, OSC) 등 유기물 기반의 신축 전자소자에 대한 연구가 재료 및 구조적 관점에서 활발히 이루어지고 있다[8-11]. 그러나 수분과 산소에 취약하여 쉽게 산화되는 유기물의 특성상 소자의 성능을 결정하는 활성층이 열화되기 쉬우며, 이로 인해 소자의 수명이 주로 결정된다. 따라서 대기 중의 수분과 산소를 소자의 최외각에서 차단할 수 있는 봉지재료의 도입이 필수적이다[12,13](Fig. 1(a)).

봉지재료의 유무에 따라 물 분자가 활성층까지 도달하여 소자의 열화를 유발하기까지의 시간이 크게 달라질 수 있다. 휘도(luminance), 광전변환효율(power conversion efficiency, PCE), 게이지 팩터(gauge factor, GF) 등 소자의 주요 성능 지표가 유지되는 시간, 즉 소자의 수명은 봉지재료의 특성에 의해 크게 좌우된다(Fig. 1(b)). 대표적으로 OLED의 경우, 소자의 최외각에서 침투한 수분이 유기 발광층(emissive layer, EL)과 반응하여 유기물이 산화되거나 가수분해되며, 전하 이동 특성이 저하될 수 있다. 이로 인해 전류가 흐르지 않아 발광이 발생하지 않는 암점(dark spot)의 수와 크기가 점차 확대되고, 결과적으로 소자의 기능성이 급격히 열화된다[14-16](Fig. 1(c)).

소자의 종류에 따라 요구되는 봉지재료의 방습 특성은 상이하다[17-19](Fig. 1(d)). 일반적으로 자유공간(free volume)이 많고 분자 간 간격이 큰 고분자 재료

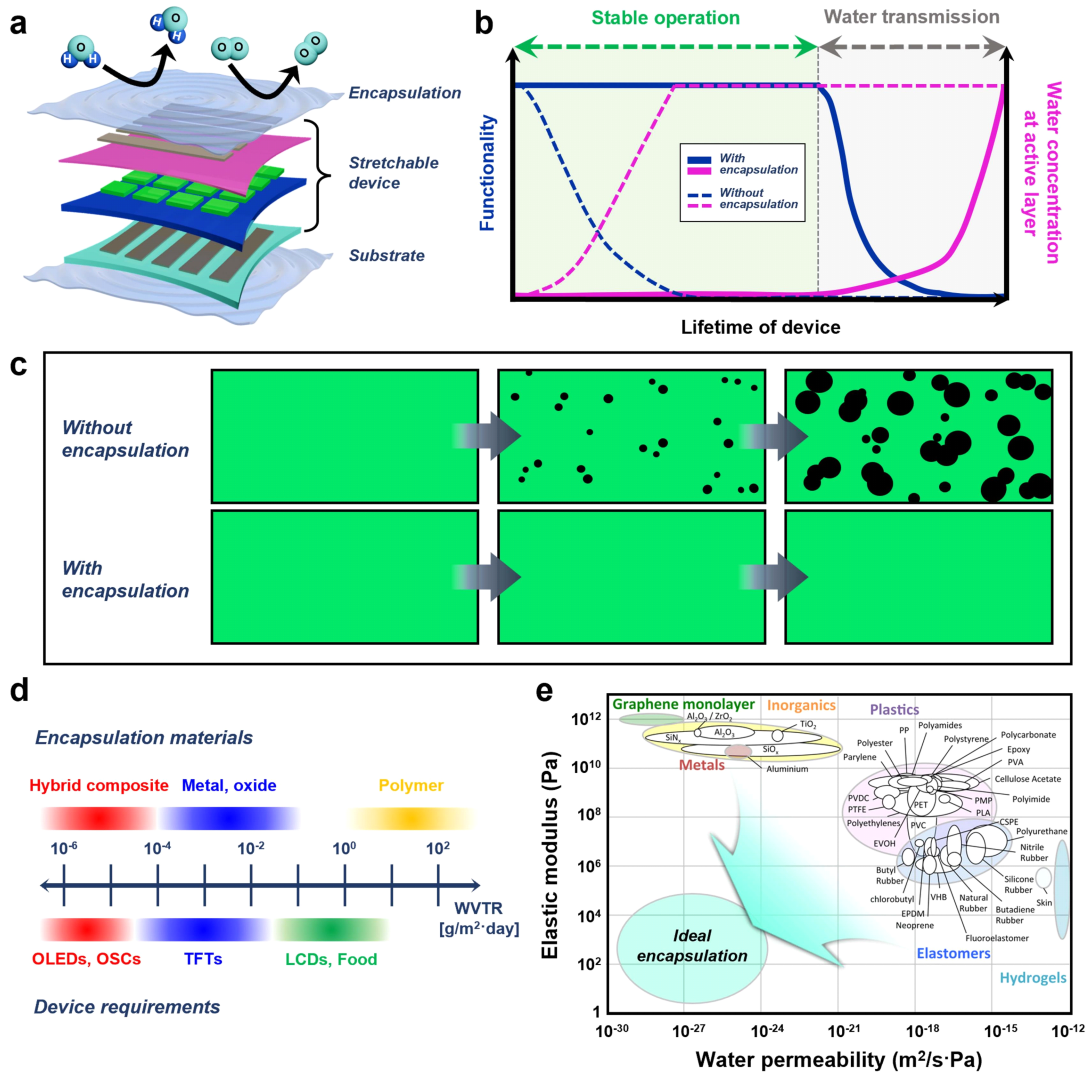
는 비교적 높은 수분투습도(water vapor transmission rate, WVTR)를 가진다. 반면, 원자 간 간격이 좁고 자유공간이 거의 없는 금속 및 무기물 재료의 경우, 수분투습도는 결정도 및 핀홀(pinhole)과 같은 결함에 의해 좌우된다. 따라서 박막의 공정 조건에 따라 OLED의 기준인 약  $10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$  수준까지 수분투습도를 낮출 수 있다. 신축 전자소자에 적용되기 위해서는 소자의 기계적 변형을 따라 함께 변형될 수 있는 특성이 요구되므로, 이에 상응하는 낮은 탄성계수와 높은 신축성이 필요하다. 그러나 수분투습도와 신축성은 재료에 요구되는 구조적 조건이 상반되는 특성이므로, 두 특성을 동시에 이상적인 방향으로 향상시키기 위해서는 재료 및 구조의 전략적인 설계에 기반한 봉지재료 개발이 필요하다[20](Fig. 1(e)).

본 원고에서는 신축 전자소자의 신뢰성 있는 수명 보장을 위해 개발된 유연·신축 봉지재료의 최신 연구 동향을 소개한다. 고분자, 금속, 무기물 재료 기반 봉지재료를 재료적 관점에서 수분투습도와 신축성 측면으로 비교 및 분석하고, 구조적 관점에서 주름 형성을 통해 고신축성과 저투습성을 동시에 달성한 구체적인 연구 사례를 제시한다. 이를 바탕으로 두 특성을 동시에 향상시키기 위한 복합 전략과 신축 봉지재료 분야의 연구 동향 및 향후 전망을 논의한다.

## 2. 본론

### 2.1. 유기물 기반 유연 봉지재료

신축 전자소자를 구성하는 모든 층들은 등변형률(iso-strain) 조건 하에서 신축 변형(stretching)을 겪는다. 이때, 딱딱한 기판이나 봉지재료를 적용할 경우, 탄성계수 및 푸아송 비(Poisson's ratio) 등의 기계적 불일치로 인해 계면에 응력 집중이 발생하고, 이는 박리(delamination) 또는 파손(fracture)과 같은 고장을 유발할 수 있다. 반면, 기계적 물성이 유사하면서 고신축성



**Fig. 1.** (a) Schematic illustration of a stretchable device structure with double-sided encapsulation. (b) Device functionality and water concentration in the active layer as a function of the lifetime of device with and without encapsulation. (c) Comparative schematics depicting the degradation behavior of organic displays without and with encapsulation under ambient conditions. (d) Water barrier performance of representative encapsulation materials in relation to the WVTR requirements of various applications. (e) Relationship between water permeability and elastic modulus of common encapsulation materials. Adapted with permission from ref. [20]. Copyright 2018, American Chemical Society.

을 갖춘 재료를 사용하면 이러한 불일치를 크게 감소시킬 수 있으며, 기계적 취약층을 기계적 중립면(neutral plane)에 배치함으로써 굽힘(bending)이나 접

힘(folding)과 같은 변형 모드에서의 소자 안정성과 수명을 향상시킬 수 있다[13,21]. 이러한 특성으로 인해 높은 신축성과 낮은 탄성계수를 갖는 실리콘(silicone)

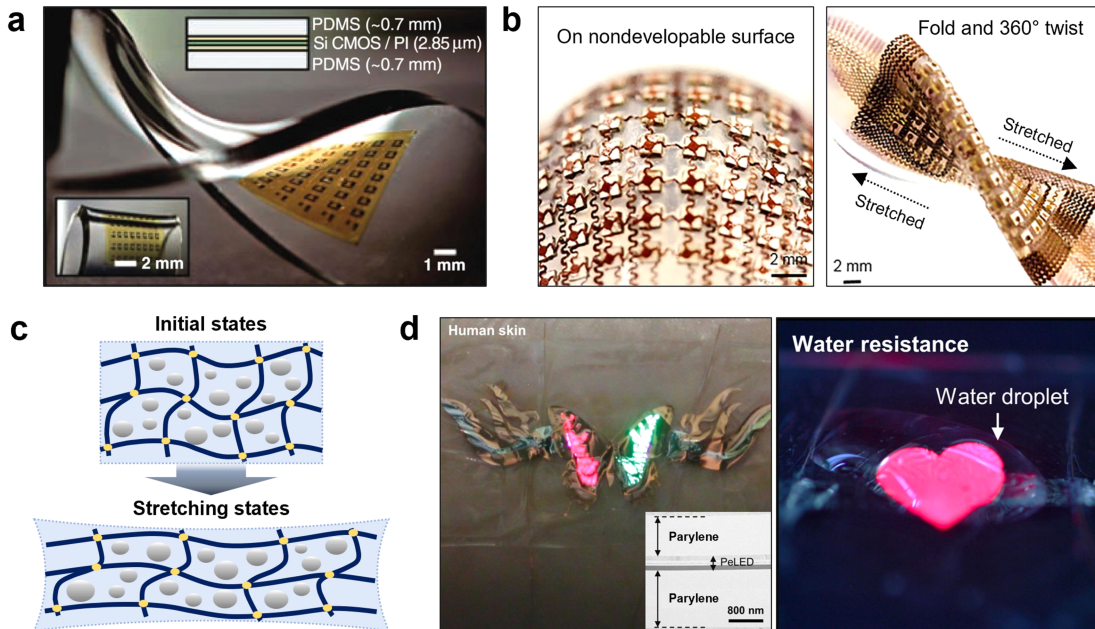


기반의 고분자 재료가 신축 봉지재료로서 다양한 신축 전자소자에 적용되었다[22,23].

노스웨스턴대학교 John A. Rogers 교수 연구팀은 polydimethylsiloxane(PDMS) 고분자 기반의 고성능 유연 집적회로를 개발하였다[24](Fig. 2(a)). 본 연구에서는 소자를 보호하고 유연성을 확보하기 위해 기판과 봉지재료 모두를 PDMS로 구성하였다. 약 2 MPa 수준의 낮은 탄성계수를 갖는 PDMS는 두께 및 경도도에 따라 다양한 기계적 특성 구현이 가능하다. 본 연구에서는 유연성 및 신축성을 고려한 두께 설계를 통해 최적화된 0.7 mm 두께의 PDMS를 적용함으로써 굽힘, 비틀림(twisting) 변형이 용이함을 확인하였다.

캘리포니아대학교 Sheng Xu 교수 연구팀은 전사 프

린팅(transfer printing) 기반의 다층 전극 설계를 통해 전기적 집적도를 크게 향상시킨 초음파 변환기(ultra-sonic transducer)를 개발하였다[25](Fig. 2(b)). 본 연구에서는 약 60 kPa의 탄성계수를 갖는 실리콘 탄성체인 Ecoflex를 기판으로 적용하여 신축성을 크게 높였고, Ecoflex와 무기 소자 간의 기계적 불일치를 완화하기 위해 아일랜드-브릿지(island-bridge) 구조를 도입하였다. 소자는 아일랜드상에 위치하고, 이를 연결하는 서펜타인(serpentine) 형태의 전도성 브릿지가 외부 응력에 따라 유연하게 변형됨으로써 소자에 전달되는 응력을 최소화하는 동시에, 동일 평면 상에서의 전기적 연결성과 유연성을 확보하였다. Ecoflex 재료를 통해 외부 충격에 대한 내성을 확보하였고, 전체 50% 이상의



**Fig. 2.** Schematics and photographs of flexible and stretchable electronics using organic encapsulation materials or substrates. (a) Wavy Si-CMOS circuit on PDMS under twisting and bending. Reproduced with permission from ref. [24]. Copyright 2008, AAAS. (b) Stretchable ultrasonic transducer array using silicone elastomer wrapped on a spherical surface(left) and in a mixed mechanical mode of folding, stretching, and twisting. Adapted with under the terms of the CC-BY-4.0 license from ref. [25]. Copyright 2018, AAAS. (c) Schematic illustration of stretchable hydrogel under stretching deformation. (d) Ultrathin electronics using parylene attached to human skin(left) and demonstrated water resistance(right). Adapted with permission from ref. [30]. Copyright 2022, AAAS.



이축 신장성을 구현하였다. 이러한 구조적 설계를 바탕으로 다양한 복합 변형 조건에서도 안정적인 성능을 유지하는 고신축성 초음파 프로브를 구현하였으며, 이는 웨어러블 전자소자의 실용성과 발전가능성을 크게 높였다.

하이드로겔 탄성체는 친수성 고분자 사슬이 삼차원 네트워크 구조를 형성하는 재료로, 신축 변형시에도 구조적 일관성을 유지하는 겔 네트워크로 인해 우수한 기계적 안정성을 제공한다[26](Fig. 2(c)). 일반적으로 하이드로겔의 탄성계수는 약 13 GPa 수준이며, 기계적 물성 향상을 위해 나노필러 또는 그래핀 산화물을 첨가하는 복합 연구도 활발히 진행되고 있다[27,28]. 매사추세츠 공과대학교의 Xuanhe Zhao 교수 연구팀은 전도성 고분자 하이드로겔을 활용하여, 다중소재 3D 프린팅 기술을 적용한 단일체(all-hydrogel) 생체소자를 개발하였다[29]. 소자의 봉지재료로는 절연 하이드로겔을 사용하였고, 생체조직과 접하는 계면 결합층으로는 생체접착성 하이드로겔을 적용함으로써, 생체조직과의 높은 기계적 적합성을 구현하였다. 개발된 소자는 최대 150%의 신축 변형에도 파손 없이 견딜 수 있었으며, 단일체 구조를 통해 안정적인 전극 임피던스와 뛰어난 구조적 신뢰성을 확보하였다.

울산과학기술원 최문기 교수 연구팀은 소자 전체 구조에서 기계적 응력 분포 제어를 통해 소자의 기계적 신뢰성을 향상시킨 초박형(ultrathin) 웨어러블 디스플레이를 개발하였다[30](Fig. 2(d)). 기판 및 봉지재료로는 수분투습도가 약  $0.1 \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ 이며, 탄성계수가 69 MPa인 페릴린(parylene) 고분자를 적용하였고, 기계적으로 취약한 indium tin oxide(ITO) 전극을 전체 구조의 기계적 중립면에 배치함으로써 외부 변형 시 전극 및 소자의 손상을 최소화하였다. 이러한 웨어러블 디스플레이는 피부에 밀착된 상태에서 최대 20%의 압축 및 비틀림 변형에도 안정적인 휘도 특성이 유지됨을 확인하였다.

홍콩과기대 Hongyu Yu 교수 연구팀은 서펜타인 형태의 금속 배선을 기반으로 양방향 패럴린 봉지재료를 도입한 신축 디스플레이를 개발하였다[31]. 전체 구조의 신축성을 향상시키기 위하여, 신축 변형 시 외부 응력에 대응하여 배선의 형태가 변화함으로써 국소 응력이 완화되는 아일랜드-브릿지 구조 설계를 적용하였다. 곡선형 배선 구조를 도입함으로써 신축 변형 시 아크(arc) 영역의 국소 응력 집중이 효과적으로 분산됨을 확인하였고, 신축 배선의 기계적 특성을 강화하기 위해 하부 패럴린 층의 두께를 조절함으로써 수분과 응력에 취약한 금속층이 기계적 중립면 인근에 위치하도록 소자를 설계하였다.

유기물 기반 재료는 기판 및 봉지재료로서 우수한 신축성과 유연성을 제공하지만, 수분 침투가 용이한 자유 공간과 거시적 결합으로 인해 수분투습도는 약  $0.1 \sim 100 \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$  수준으로 보고되었다[32,33]. 소자의 장기 수명을 확보하기 위한 전략으로 봉지재료의 두께를 증가시키는 방식이 일반적으로 적용되었으나, 이는 굽힘 강성(bending stiffness)을 증가시켜 웨어러블 소자의 유연성을 저해하며, 결과적으로 수명 확보에도 한계가 발생한다[34,35]. 이에 따라, 본질적으로 수분 및 산소와의 반응성이 낮고 분자들의 침투를 차단할 수 있는, 조밀하고 견고한 결합 구조의 금속 및 산화물 기반의 봉지재료 연구 또한 중요한 방향으로 제시되어 왔다.

## 2.2. 금속 및 산화물 봉지재료

우수한 방습 특성을 확보하기 위해서는 수분의 투습 경로를 효과적으로 차단하고, 우회 경로를 증가시키는 전략이 필수적이다. 수분의 침투 거동은 재료 내부에 존재하는 결합의 형태 및 자유공간의 밀도에 큰 영향을 받는다. 결정질(crystalline) 재료는 규칙적인 격자 구조를 가지지만, 결정립계(grain boundary)나 나노 크기의 결합(nano-defects)들이 수분의 고속 침투 경로로



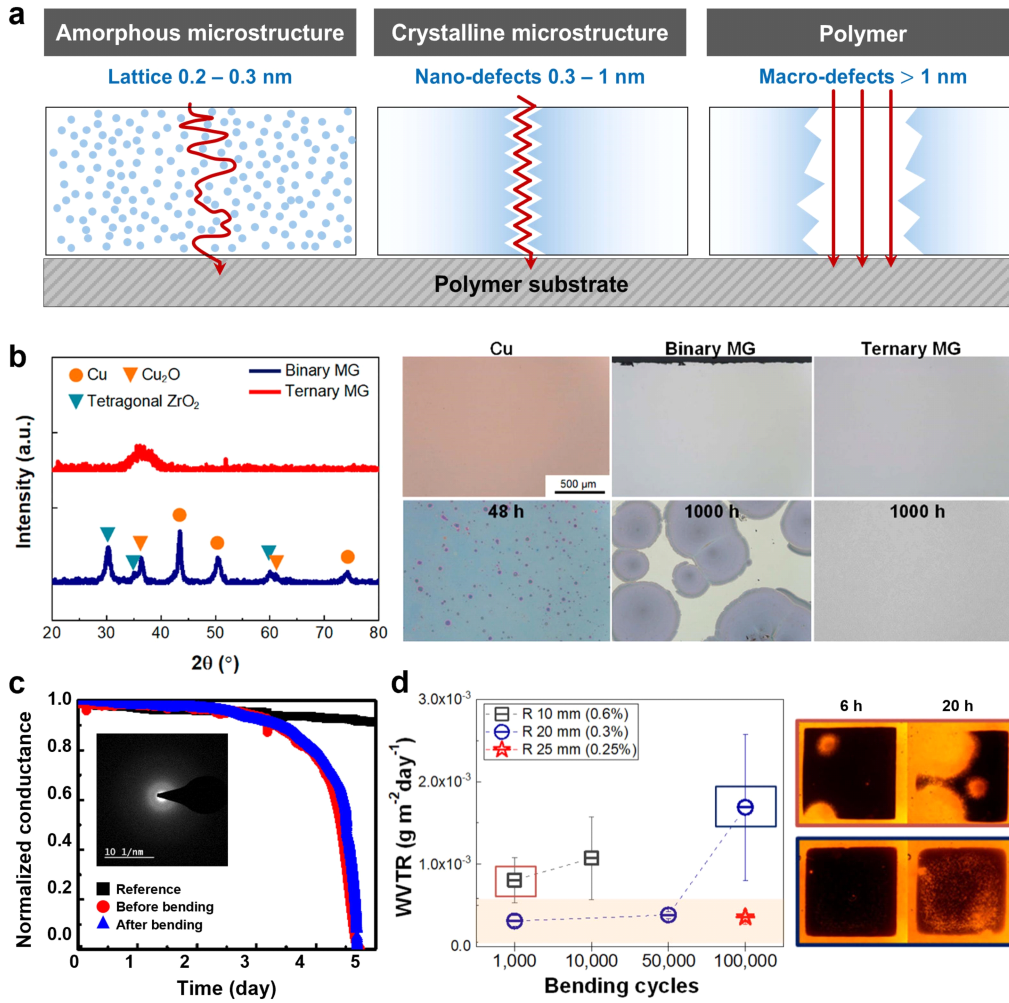
작용할 수 있다. 고분자 재료는 자유공간이 많고, 상대적으로 크기가 큰 마이크로 이상의 결함(macro-defects)들이 존재하여, 동일 시간 내 상대적으로 많은 양의 수분이 빠르게 침투되는 한계를 가진다. 이에 비해, 비정질(amorphous) 구조를 갖는 금속 및 산화물 재료는 불규칙한 원자 배열을 가지며, 결정립계가 존재하지 않기 때문에 결함이 존재하더라도 연속적인 수분 침투 경로가 형성되지 않고, 우회 경로(tortuous path)가 형성된다. 이러한 특성으로 인해 낮은 수분투습도를 달성할 수 있어 봉지재료로 적합하다[36,37](Fig. 3(a)). 이러한 조밀한 비정질 구조를 구현하기 위해 물리적 기상 증착(physical vapor deposition, PVD), 원자층 증착(atomic layer deposition, ALD) 그리고 졸-겔(sol-gel) 공정 등의 다양한 박막 형성 기술이 활용되어 왔다. 이와 같은 공정을 통해 증착된 단일 박막의 수분 투습도는 일반적으로 상온 및 상습 조건에서  $10^{-4}$  g/m<sup>2</sup> · day 수준으로 보고되며, 유기 전자소자의 장기 신뢰성 확보에 적용될 수 있다.

울산과학기술원 김주영 교수 연구팀은 가혹한 고온 및 다습 환경에서도 우수한 수분 저항성을 갖는 CuZrTi 삼원계 비정질 금속 유리(metallic glass, MG) 박막을 개발하였다[38]. 금속 유리는 일반적으로 나노 결정립 구조를 가지는 기존 금속과 다르게, 금속 원자들이 유리처럼 무질서하게 배열된 비정질 구조를 가지는 재료로 정의된다. 이러한 재료적 특성으로 인해 일반 결정질 금속에 비해 높은 탄성 변형한계를 나타내며, 유연 봉지재료로의 적용 가능성이 제시된다[39]. 박막은 마그네트론 스퍼터링(magnetron sputtering) 공정을 통해 낮은 공정 온도에서도 균일하고 조밀한 CuZrTi 박막을 형성하였고, 이를 CuZr 이원계 금속 유리 및 나노결정립 구조를 갖는 Cu 박막과 비교 분석하였다. 85°C, 85% 상대습도 조건에서 1,000시간 동안 노출 후, 미세구조 및 표면 산화 거동을 관찰한 결과, Cu 및 CuZr 박막에서는 표면에 CuO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub> 등의 산

화물이 불균일하게 형성되며 빠르게 열화되었으나, CuZrTi 박막에서는 산화 및 부식이 거의 발생하지 않았다. 이는 X-ray diffraction(XRD) 분석 결과, 가혹한 환경에서도 CuZrTi 박막의 비정질 구조가 안정적으로 유지되어 수분이 침투할 수 있는 경로가 거의 형성되지 않았기 때문임을 확인하였다(Fig. 3(b)). 추가적인 X-ray photoelectron spectroscopy(XPS) 분석 결과, Ti 원소가 Zr의 산화를 효과적으로 억제하고, 구조적 안정성을 강화하였기 때문에 CuZr 박막에 비해 우수한 산화저항성을 가짐을 확인하였다.

산화물 기반 봉지재료는 강한 공유결합 구조와 물 분자와의 낮은 반응성으로 인해 금속보다 수분 침투 경로가 제한되어 일반적으로 더 낮은 수분투습도를 가진다. 울산과학기술원 김주영 교수 연구팀은 졸-겔 공정을 이용해 고밀도와 저투습성을 갖는 실리카 봉지재료를 개발하였다[40]. 졸-겔 공정은 금속 알콕사이드(metal alkoxide) 전구체로부터 안정한 콜로이드 입자인 졸(sol)을 형성하고, 이를 건조 및 열처리하여 고체상의 삼차원 망상조직(network)인 겔(gel)로 전환시킴으로써 박막을 제작하는 합성법이다. 겔의 열처리 온도가 증가할수록 겔 내부의 액상(viscous phase)이 주변 입자들과 결합하면서 기공이 줄어들고, 구조가 점점 조밀해지는 치밀화 과정을 거치게 된다. 본 연구에서는 1,000°C에서 고온 열처리를 진행하여 실리카 겔 내 잔류 기공을 거의 제거함으로써 용융 실리카 수준의 밀도와 수분 투습 활성화 에너지를 가진 고밀도 박막을 형성하였다. Transmission electron microscope (TEM) 분석 결과, 비정질 구조에서 나타나는 연속적이고 흐릿한 링패턴이 관찰되었다(Fig. 3(c) inset).

반복 변형 신뢰성을 평가하기 위하여, 가속환경인 85°C, 85% 상대습도에서 3.3%의 변형률 조건으로 최대 50,000회의 반복 굽힘 시험을 수행한 결과, 시험 전후 수분투습도의 열화는 거의 관찰되지 않았다(Fig. 3(c)). 이는 고온 치밀화 과정에서 핀홀과



**Fig. 3.** (a) Schematic illustration of water vapor transmission pathways through microstructures in encapsulation materials: atomic lattice spacing(left), nano-defects(middle), and macro-defects(right). (b) XRD profiles of binary CuZr and ternary CuZrTi MG under 8585 condition(85°C temperature and 85% relative humidity) after 1,000 hours and optical microscopy(OM) images of nanocrystalline Cu, binary CuZr, and ternary CuZrTi MG before and after exposure under 8585 condition. Reproduced with under the terms of the CC-BY-4.0 license from ref.[38]. (c) Normalized conductance for WVTR measurement of sol-gel synthesized silica films before and after 50,000 bending cycles at bending radius of 6 mm under 6085 condition and TEM diffraction pattern(inset). Adapted with permission from ref. [40]. Copyright 2022, Springer Nature Copyright. (d) WVTR measurement results(left) and stereoscopic microscopy images after optical Ca tests(right) after cyclic bending tests. Adapted with under the terms of the CC-BY-4.0 license from ref.[ 41].

유사한 결함들의 핵생성 지점(nucleation site)이 거의 형성되지 않아, 무결함에 가까운 박막이 형성되었기 때문에 해석된다. 상온 및 상습 조건에서의 수

분투습도는 약  $8.70 \times 10^{-8} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$  로 예측되었으며, 최종적으로 유연태양전지에 봉지재료로 적용하였을 때, 약 40일 동안 광전 변환 효율이 유지됨을 확인하였



다.

산화물계 봉지재료에서 수분의 고속 침투 경로로 작용하는 핀홀 결함은 박막 증착 과정 외에 반복적인 기계적 변형 중에도 생성될 수 있으며, 연속적인 경로로 확장될 수 있다. 이는 플라즈마 강화 원자층 증착(plasma enhanced atomic layer deposition, PEALD) 공정을 통해 저온에서 증착된 비정질 알루미늄 기판 유연 봉지재료 연구에서 광학적 갈습 시험법을 통해 확인되었다[41]. 80°C의 저온에서 증착된 50 nm 두께의 알루미늄 박막은 약 3.09%의 탄성 변형한계를 가지며, 상온 및 상습 환경에서의 수분투습도가 약  $8.49 \times 10^{-5} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$  수준으로 굉장히 우수한 방습특성을 나타냈다. 본 연구에서는 반복 변형에 대한 방습성능의 안정성을 평가하기 위하여 탄성 변형한계 이내의 변형률에서 반복 굽힘 변형을 수행하였다. 반복 시험 결과, 굽힘 조건에 따라 원자간 결합 재배열(atomic bond-switching)에 의해 핀홀 결함의 생성 및 성장이 달라짐을 확인하였다(Fig. 3(d), left). 이는 알루미늄 박막 표면의 끊어진 결합(dangling bond) Al-O 또는 공정 중 불완전한 반응에 의한 잔류 OH 반응기가 응력 인가 시 결합이 재배열되면서, 국부적으로 원자들이 밀집하지 못하는 공극이 형성되어 미세한 핀홀이 형성될 수 있음을 시사한다. 반복 변형에 따른 성능 변화로는 85°C, 85% 상대습도 환경에서 굽힘 반지름,  $R_b$  25 mm(0.25%) 조건으로 100,000회의 반복 변형 전후의 수분투습도는 유지되나,  $R_b$  10 mm(0.6%) 경우에는, 1,000회만에 조대한 핀홀이,  $R_b$  20 mm(0.3%)에서는 100,000회 반복 후 미세 핀홀이 전체적으로 생성되면서 수분투습도가 급격히 증가하는 양상을 보였다(Fig. 3(d), right).

이러한 금속 및 산화물 기반의 봉지재료는 일반적으로 높은 강도와 우수한 방습 특성으로 인해 굽힘과 같은 변형을 수반하는 유연소자에 적용되기에 적합하다. 그러나 본질적으로 낮은 탄성 변형한계와 취성 거동을

가지므로, 높은 신축 변형에는 한계가 존재한다. 따라서 고신축성이 요구되는 신축 전자소자에 적용하기 위해서는 구조적으로 신축성을 향상시킬 수 있는 전략이 필수적이다.

### 2.3. 봉지재료의 신축성 향상을 위한 구조적 접근법

봉지재료의 신축성은 일반적으로 기계적 물성을 고려하고 외부 변형을 효과적으로 흡수할 수 있는 구조적 설계를 도입함으로써 확보할 수 있다[42-44]. 특히, 취성 재료의 경우, 내부 결함이 파단 강도를 저하시키는 주요 원인이 되므로, 재료의 두께를 감소시켜 내부 임계 결함(critical defect)을 최소화하는 것이 중요하다[45]. 이러한 점에서 열산화(thermal oxidation) 공정을 통해 형성된 t-SiO<sub>2</sub>(thermally grown SiO<sub>2</sub>)는 구조가 균일하고 밀도가 높으며, 결함이 매우 적은 특성을 나타내어, 봉지재료 중에서도 가장 우수한 수분 차단 성능을 나타내는 대표적인 재료로 보고되었다[19,46-49]. 디바이스 등급의 실리콘 웨이퍼를 약 1,100°C의 고온에서 산소 가스에 노출시켜 표면을 산화시킴으로써 형성된 박막은, 불순물이 거의 없고 이론강도에 근접한 우수한 기계적 신뢰성을 나타낸다. 하지만 t-SiO<sub>2</sub>는 취성 재료이므로, 단독으로 신축 봉지재료로 적용되는데 한계가 있다. 이에 따라, 외부 변형을 효과적으로 흡수할 수 있는 구조적 설계가 필요하다. 주름(wrinkle) 구조 및 웨이비(wavy) 구조와 같은 버클(buckle) 형태는, 얇은 박막에 주기적인 물결 모양의 변형을 유도함으로써, 외부 하중을 완충하는 역할을 수행할 수 있다.

울산과학기술원 김주영 교수 연구팀은 이러한 구조적 설계를 도입하여 높은 신축성과 저투습성을 동시에 갖는 t-SiO<sub>2</sub> 봉지재료를 개발하였다[50,51]. 다축 변형이 용이한 주름구조를 갖는 실리카 봉지재료를 제작하기 위해 탄성고분자에 사전 변형(prestrain)을 적용한 이축 압축 응력 설계를 활용하였다[50]. 실리콘 웨이퍼

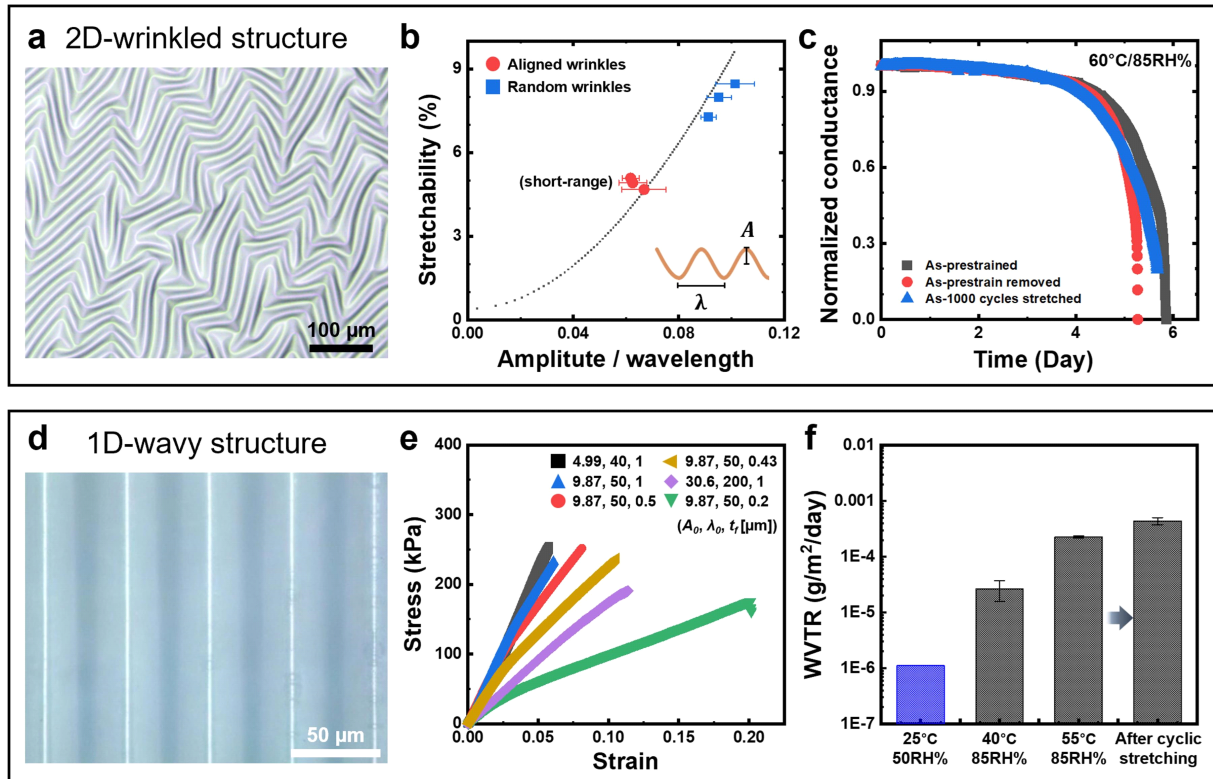




위에 두께 200 nm의 t-SiO<sub>2</sub> 박막을 형성한 후, 이를 이축으로 연신된 PDMS기판 위에 접합하였다. 이후 실리콘 웨이퍼를 XeF<sub>2</sub> 가스를 이용한 건식 식각(dry etching) 공정으로 제거함으로써, t-SiO<sub>2</sub> 박막만이 PDMS 기판 위에 선택적으로 남도록 하였다. 이때, 연신된 상태의 PDMS를 고정하고 있던 테이프를 제거하면, 박막 내에 압축 응력이 발생되어 좌굴(buckling)이 유발되며 주름 구조가 형성된다. 형성된 주름은 특정 진폭(amplitude)과 파장(wavelength)을 가지며, 무작위

방향으로 분포하게 된다(Fig. 4(a)). 주름 구조는 면적에 따라 상이하게 형성되었으며, 이를 활용하여 구조에 따른 변형 거동을 비교하였다. 1 mm×1 mm의 넓은 영역에서는 다방향성 주름이 형성된 반면, 100 μm×100 μm의 작은 영역에서는 주로 단방향 주름이 형성되어, 두 구조에 따른 변형 거동을 분석하였다.

유한요소 해석(finite element analysis, FEA) 결과, 주름의 파장 대비 진폭의 비율이 클수록 외부 변형에 따라 퍼질 수 있는 주름의 크기가 커서 전체적인 신축



**Fig. 4.** (a) OM images of 2D-wrinkled structured thermally grown SiO<sub>2</sub> films. (b) Stretchability as a function of the initial amplitude-to-wavelength ratio( $A/\lambda$ ) for SiO<sub>2</sub> films with aligned and random wrinkles. (c) Normalized conductance–time curves of flat SiO<sub>2</sub> films, pre-stained SiO<sub>2</sub> films, and SiO<sub>2</sub> films after 1,000 cycles of equibiaxial stretching at 5% strain, measured at 60/85 condition. Adapted with permission from ref. [50]. Copyright 2022, Elsevier. (d) OM images of 1D-wavy structured thermally grown SiO<sub>2</sub> films. (e) Stress-strain curves of wavy-structured thermally grown SiO<sub>2</sub> films. (f) Measured WVTR data of wavy-structured thermally grown SiO<sub>2</sub> films. The blue-colored value indicates the calculated WVTR obtained via the Arrhenius approach. Adapted with under the terms of the CC-BY-4.0 license from ref. [51].



성이 증가하는 경향을 나타냈다. 이때 단방향 주름 구조는 진폭과 응력이 균일하게 분포하는 반면, 무작위 주름 구조는 삼중 접합부(triple junction) 인근에서 응력이 집중되어 상대적으로 신축성이 저하되는 경향을 보였다(Fig. 4(b)). 그럼에도 불구하고, 5%의 이축 등가 변형률(equibiaxial) 조건에서 1,000회의 반복 신축 실험 이후에도 가시적인 결함이 관찰되지 않았으며, 수분 투습도는 60°C, 85% 상대습도 조건에서 반복 전후 각각  $3.3 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ 에서  $2.8 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ 로 거의 변화가 없었다(Fig. 4(c)). 이를 통해 해당 구조가 반복 신축 하에서도 안정성을 유지함을 확인하였으며, 신축성 전자소자용 봉지재료로서 우수한 신축성과 낮은 수분투습도를 동시에 달성하였음을 보여주었다.

탄성고분자에 사전변형을 적용하여 형성한 주름구조와 다르게, 웨이비 구조는 단결정 실리콘 기판에 일련의 식각 공정을 통해 일축 방향의 물결 구조를 형성한 후, 고온 열산화 공정을 통해 t-SiO<sub>2</sub> 박막을 형성하였다[51](Fig. 4(d)). 총 세 단계의 정밀 식각 공정을 통해 진폭과 파장이 균일한 사인파 형태의 부드러운 곡률을 갖는 웨이비 구조의 실리콘 기판을 제작하였다. 웨이비 실리콘 봉지재료의 두께 효과를 확인하기 위해 두께 200 nm, 500 nm, 1 μm인 평탄한 t-SiO<sub>2</sub> 박막의 기계적 물성을 평가한 결과, 모든 샘플에서 파단 강도는 약 4.42 GPa, 탄성 변형한계는 약 6.53%로 나타나 두께 의존성이 없음을 확인하였다. 이러한 결과는 열산화공정을 통해 형성된 t-SiO<sub>2</sub> 박막이 매우 균일하고 고밀도이며, 무결함에 가까운 미세구조를 가짐을 뒷받침한다.

다양한 진폭, 파장 및 두께를 갖는 웨이비 실리콘 박막을 일축 인장실험을 통해 기계적 물성을 평가한 결과, 두께 대비 진폭 비율이 클수록 전체적인 신축성이 증가하는 경향을 보였다(Fig. 4(e)). 특히, 진폭 9.87 μm, 파장 50 μm, 두께 200 nm를 가지는 박막은 최대 20.1%에 달하는 높은 신축성을 달성하였다. 유한요소

해석을 통해 열팽창계수(coefficient of thermal expansion, CTE) 차이, PDMS 경화에 의한 잔류응력, 그리고 기판과 푸아송 비 차이를 반영한 구조의 변형 거동을 분석한 결과, 이론적으로 예측한 신축성과 실험 결과 값이 거의 일치하였다. 진폭 10 μm, 파장 50 μm, 두께 375 nm의 박막을 이용한 탄성 변형한계 내에서의 반복 신축 실험에서는 10%의 일축 신축 변형률 조건에서 1,000회의 반복 변형 이후에도 가시적인 균열이 발생하지 않았다. 수분투습도는 40°C, 85% 상대습도 조건에서 약  $2.66 \times 10^{-5} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ , 55°C, 85% 상대습도 조건에서 약  $2.25 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$ 로 측정되었으며, 반복 변형 이후에도 약  $4.41 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2 \cdot \text{day}$  수준으로 유지되었다(Fig. 4(f)). 이를 통해 웨이비 실리콘 봉지재료의 우수한 기계적 신뢰성과 낮은 수분투습 특성을 검증하였고, 신축 소자의 신뢰성 확보를 위한 봉지재료로서의 활용 가능성을 확인하였다.

주름 구조는 이축 방향으로 인가된 사전 압축 응력을 이용하여 형성되므로, 구조 내에 잔류응력이 존재하게 된다. 이로 인해 다축 방향으로의 신축 변형에는 유리하지만, 압축 변형에는 한계가 있으며, 신축성은 사전 변형률 및 주름의 크기에 비례하는 경향을 보인다. 반면, 웨이비 구조는 일축 방향으로 정렬된 파동 형태의 기판에 기반하여 형성되므로 신축뿐만 아니라 압축 변형에도 대응할 수 있는 장점이 있으나, 다축 변형에는 제한이 있다. 신축성은 주름의 크기와 박막 두께의 역수에 비례하는 경향을 보인다. 이와 같이 구조 설계 방식에 따라 봉지재료의 신축성과 방습 특성을 크게 향상시킬 수 있으며, 단순한 재료 선택을 넘어, 전체 디바이스 시스템의 안정성과 수명을 확보하는 데 핵심적인 요소로 작용한다.

### 3. 결론 및 전망

본 원고에서는 신축 전자소자용 유연 봉지재료의 필요성을 강조하고, 고신축성과 저투습성을 동시에 구현



하기 위해 개발된 최신 봉지재료 연구들을 종합적으로 검토하였다. 유기물, 금속 및 산화물 기반 봉지재료와 더불어, 이들의 신축성 향상 및 소자 전체 구조의 기계적 신뢰성을 높이기 위한 다양한 구조적 설계 전략을 소개하였다. 또한, 유연 소자 적용에 필수적인 기준이 되는 반복 변형 환경에서 봉지 성능의 안정성을 평가한 실험적 연구 결과들을 고찰하였다[52]. 유기물 봉지재료는 우수한 변형 특성을 보이나, 상대적으로 낮은 수분 차단성 및 환경적 안정성에 한계가 존재한다. 반면, 금속 및 무기물 기반 봉지재료는 우수한 수분 차단성과 높은 기계적 강도를 가지지만, 낮은 탄성 변형한계와 취성 거동으로 인해 신축성 확보와 소자 봉지화 공정에 여전히 어려움이 있다. 이를 극복하기 위하여 기계적으로 유연한 유기재료와 저투습성 무기재료의 장점을 결합한 하이브리드 복합 재료 및 다층구조에 대한 연구가 최근 활발히 진행되고 있다[53-57]. 또한, 구조적으로 신축성을 높일 수 있는 서펜타인, 아일랜드-브릿지, 주름 및 메타구조 등의 설계 전략을 적용한 봉지재료-소자 시스템 연구도 활발히 이루어지고 있으며, 재료간 계면 안정성, 공정 적합성, 대면적 적용 가능성 등을 다방면으로 고려한 다중 기능성 봉지재료의 개발이 더욱 가속화될 것으로 전망된다. 이러한 기술적 제약의 극복은 웨어러블 소자의 상용화에 실질적인 진전을 가져올 것으로 기대된다[58].

더 나아가, 웨어러블 전자소자를 넘어 체내에서 작동하는 바이오 전자소자의 수명을 제어하는 봉지재료 분야에서도 향후 기술 발전을 위해 적극적인 연구와 개발이 요구되고 있다. 기체 상태의 수분 및 산소에 노출되는 대기 환경과 다르게, 액체 상태의 체액과 다양한 이온이 공존하는 체내 환경에서는 수술 후의 모니터링 장치나 약물 전달 기기와 같은 소자가 요구되는 수명 기간 동안 안정적으로 작동하기 위해 더욱 고도화된 재료 및 구조 설계가 필수적이다. 이러한 첨단 봉지재료의 개발은 인간의 삶의 질 향상에 중대한 기여를

할 것이며, 소자의 새로운 형태 구현과 적용가능한 환경의 범위를 크게 확장시킬 수 있을 것으로 기대된다.

## 기호설명

- OLED: Organic light-emitting diode
- PCE: Power conversion efficiency
- GF: Gauge factor
- EL: Emissive layer
- WVTR: Water vapor transmission rate
- PDMS: Polydimethylsiloxane
- ITO: Indium tin oxide
- PVD: Physical vapor deposition
- ALD: Atomic layer deposition
- PEALD: Plasma enhanced atomic layer deposition
- MG: Metallic glass
- XRD: X-ray diffraction
- XPS: X-ray photoelectron spectroscopy
- TEM: Transmission electron microscope
- t-SiO<sub>2</sub>: Thermally grown SiO<sub>2</sub>
- FEA: Finite element analysis
- CTE: Coefficient of thermal expansion

## ACKNOWLEDGMENTS

### Author Contributions

HJY, SHL, SMK, JHJ, and JYK were involved in analysis, discussion, and drafted the manuscript. All authors read and approved the final manuscript.

### Funding

This research was supported by the 2025 Research Funds (1.250008.01 and 1.250018.01) of UNIST (Ulsan National Institute of Science & Technology)

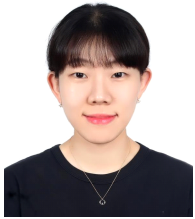


and by the InnoCORE program of the Ministry of Science and ICP (1.250021.01). This study contains the results obtained by using the equipment of UNIST Central Research Facilities (UCRF).

### Declarations of Competing Interests

The authors declare that they have no competing interests.

## AUTHORS

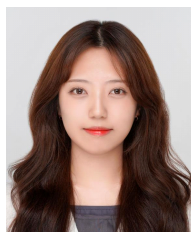


유현지  
2018~2022년: 울산과학기술원 신소재 공학과 학사  
2022년~현재: 울산과학기술원 신소재공학과 석·박통합과정  
[관심분야] 유연소자, 나노역학, 봉지재료



이소현  
2015~2020년: 울산과학기술원 화학공학과 학사  
2020~2025년: 울산과학기술원 신소재공학과 박사  
2025년~현재: 울산과학기술원 박사후연구원

[관심분야] 유연소자, 나노역학



김수민  
2018~2023년: 울산과학기술원 신소재공학과 학사  
2023년~현재: 울산과학기술원 신소재공학과 석·박통합과정  
[관심분야] 유연소자, 나노역학, 유한요소해석법



조지현  
2019~2023년: 전북대학교 고분자나노공학과 학사  
2023년~현재: 울산과학기술원 신소재공학과 석·박통합과정  
[관심분야] 유연소자, 나노역학, 유한요소해석법



김주영  
1997~2001년: 서울대학교 재료공학과 학사  
2001~2007년: 서울대학교 재료공학과 박사  
2004년: NIST 방문연구원  
2007~2011년: Caltech 박사후연구원

2011년~현재: 울산과학기술원 신소재공학과 교수  
[관심분야] 유연소자, 나노역학, 반도체 패키징

## REFERENCES

- [1] Jung, H.; Lee, W.; Kang, J. Recent Progress in Printing Conductive Materials for Stretchable Electronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 137-153.
- [2] Lee, S.; Yang, J. C.; Park, S. Geometrical Engineering for Implementing Stretchable Electronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 125-136.
- [3] Koo, J. H. Advances in Stretchable Functional Materials for Soft Bioelectronics. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 179-194.
- [4] Cho, J.; Jang, Y.; Kim, J.; Lee, I. S.; Lee, W. Recent Advancements in Flexible Biosensors for Continuous Glucose Monitoring. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (1), 47-64.
- [5] Han, D. J.; Park, D. W. Flexible Neural Electrodes Using Novel Materials. *J. Flex. Print. Electron.* 2023, 2 (1), 47-60.
- [6] Lee, S. E.; Kim, S.; Kim, B. H. Flexible and



- Stretchable Three-Dimensional (3D) Devices. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (1), 1-12.
- [7] Kim, J. H.; Jeong, J.; Lee, H. K.; Kim, D.; Park, S. Recent Progress on Skin-Compatible Flexible Photoplethysmography Sensor. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 163-178.
- [8] Song, W.; Ye, Q.; Chen, Z.; Ge, J.; Xie, L.; Ge, Z. Advances in Stretchable Organic Photovoltaics: Flexible Transparent Electrodes and Deformable Active Layer Design. *Adv. Mater.* 2024, 36 (37), e2311170.
- [9] Nam, M.; Chang, J.; Kim, H.; Son, Y. H.; Jeon, Y.; Kwon, J. H. et al. Highly Reliable and Stretchable OLEDs Based on Facile Patterning Method: Toward Stretchable Organic Optoelectronic Devices. *NPJ Flex. Electron.* 2024, 8 (1), 17.
- [10] Choi, J.; Kim, C.; Shao, G.; Yang, W. K.; Hong, Y. J. Review on Fabrication of Compound Semiconductor-Based Flexible Light-Emitting Devices and Displays. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (1), 1-17.
- [11] Sun, D. H.; Song, J. Y.; Jang, D. Strategies for Developing Intrinsically Stretchable Thermoelectric Materials. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 195-212.
- [12] Sang, M.; Kim, K.; Shin, J.; Yu, K. J. Ultra-Thin Flexible Encapsulating Materials for Soft Bio-Integrated Electronics. *Adv. Sci.* 2022, 9 (30), e2202980.
- [13] Li, H.; Ma, Y.; Huang, Y. Material Innovation and Mechanics Design for Substrates and Encapsulation of Flexible Electronics: A Review. *Mater. Horiz.* 2021, 8 (2), 383-400.
- [14] Jeong, E. G.; Han, Y. C.; Im, H. G.; Bae, B. S.; Choi, K. C. Highly Reliable Hybrid Nano-Stratified Moisture Barrier for Encapsulating Flexible OLEDs. *Org. Electron.* 2016, 33, 150-155.
- [15] Azrain, M. M.; Mansor, M. R.; Fadzullah, S. H. S. M.; Omar, G.; Sivakumar, D.; Lim, L. M. et al. Analysis of Mechanisms Responsible for the Formation of Dark Spots in Organic Light Emitting Diodes (OLEDs): A Review. *Synth. Met.* 2018, 235, 160-175.
- [16] Xu, J.; Wang, Y.; Chen, Q.; Lin, Y.; Shan, H.; Roy, V. A. L. et al. Enhanced Lifetime of Organic Light-Emitting Diodes Using Soluble Tetraalkyl-Substituted Copper Phthalocyanines as Anode Buffer Layers. *J. Mater. Chem. C* 2016, 4 (31), 7377-7382.
- [17] Lewis, J. Material Challenge for Flexible Organic Devices. *Mater. Today* 2006, 9 (4), 38-45.
- [18] Jeong, E. G.; Kwon, J. H.; Kang, K. S.; Jeong, S. Y.; Choi, K. C. A Review of Highly Reliable Flexible Encapsulation Technologies towards Rollable and Foldable OLEDs. *J. Inf. Disp.* 2019, 21 (1), 19-32.
- [19] Song, E.; Li, J.; Rogers, J. A. Barrier Materials for Flexible Bioelectronic Implants with Chronic Stability-Current Approaches and Future Directions. *APL Mater.* 2019, 7 (5), 050902.
- [20] Le Floch, P.; Meixuanzi, S.; Tang, J.; Liu, J.; Suo, Z. Stretchable Seal. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2018, 10 (32), 27333-27343.
- [21] Wang, S.; Xu, J.; Wang, W.; Wang, G. N.; Rastak, R.; Molina-Lopez, F. et al. Skin Electronics from Scalable Fabrication of an Intrinsically Stretchable Transistor Array. *Nature*



- 2018, 555 (7694), 83-88.
- [22] Hwangbo, J.; Seo, H.; Sim, G.; Avila, R.; Nair, M.; Kim, B. et al. Bioresorbable Polymers for Electronic Medicine. *Cell Rep. Phys. Sci.* 2024, 5 (8), 102099.
- [23] Raman, R. K.; Ganesan, S.; Alagumalai, A.; Sudhakaran Menon, V.; Gurusamy Thangavelu, S. A. et al. Rational Design, Synthesis, and Structure-Property Relationship Studies of a Library of Thermoplastic Polyurethane Films as an Effective and Scalable Encapsulation Material for Perovskite Solar Cells. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2023, 15 (46), 53935-53950.
- [24] Kim, D. H.; Ahn, J. H.; Choi, W. M.; Kim, H. S.; Kim, T. H.; Song, J. et al. Stretchable and Foldable Silicon Integrated Circuits. *Science* 2008, 320 (5875), 507-511.
- [25] Hu, H.; Zhu, X.; Wang, C.; Zhang, L.; Li, X.; Lee, S. et al. Stretchable Ultrasonic Transducer Arrays for Three-Dimensional Imaging on Complex Surfaces. *Sci. Adv.* 2018, 4 (3), eaar3979.
- [26] Liu, G.; Li, Z.; Lai, Z.; Qiu, Z.; Yang, M.; Wu, X. et al. Flexible, Stretchable, and Luminescent Hydrogels Based on a Polydimethylsiloxane-Coated CsPbBr<sub>3</sub> Nanostructure for Elastomers. *ACS Appl. Nano Mater.* 2023, 6 (11), 9588-9597.
- [27] Yi, J.; Choe, G.; Park, J.; Lee, J. Y. Graphene Oxide-Incorporated Hydrogels for Biomedical Applications. *Polym. J.* 2020, 52 (8), 823-837.
- [28] Dellatolas, I.; Bantawa, M.; Damerou, B.; Guo, M.; Divoux, T.; Del Gado, E. et al. Local Mechanism Governs Global Reinforcement of Nanofiller-Hydrogel Composites. *ACS Nano* 2023, 17 (21), 20939-20948.
- [29] Zhou, T.; Yuk, H.; Hu, F.; Wu, J.; Tian, F.; Roh, H. et al. 3D Printable High-Performance Conducting Polymer Hydrogel for All-Hydrogel Bioelectronic Interfaces. *Nat. Mater.* 2023, 22 (7), 895-902.
- [30] Kwon, J. I.; Park, G.; Lee, G. H.; Jang, J. H.; Sung, N. J.; Kim, S. Y. et al. Ultrahigh-Resolution Full-Color Perovskite Nanocrystal Patterning for Ultrathin Skin-Attachable Displays. *Sci. Adv.* 2022, 8 (43), eadd0697.
- [31] Jiao, R.; Wang, R.; Wang, Y.; Cheung, Y. K.; Chen, X.; Wang, X. et al. Vertical Serpentine Interconnect-Enabled Stretchable and Curved Electronics. *Microsyst. Nanoeng.* 2023, 9, 149.
- [32] Bertrand, J. A.; George, S. M. Evaluating Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Gas Diffusion Barriers Grown Directly on Ca Films Using Atomic Layer Deposition Techniques. *J. Vac. Sci. Technol. A: Vac. Surf. Films* 2013, 31 (1), 01A122.
- [33] Li, C.; Cauwe, M.; Yang, Y.; Schaubroeck, D.; Mader, L.; Op de Beeck, M. Ultra-Long-Term Reliable Encapsulation Using an Atomic Layer Deposited HfO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HfO<sub>2</sub> Triple-Interlayer for Biomedical Implants. *Coatings* 2019, 9 (9), 579.
- [34] Choi, Y. S.; Koo, J.; Lee, Y. J.; Lee, G.; Avila, R.; Ying, H. et al. Biodegradable Polyanhydrides as Encapsulation Layers for Transient Electronics. *Adv. Funct. Mater.* 2020, 30 (31), 2000941.
- [35] Kim, D. H.; Viveni, J.; Amsden, J. J.; Xiao, J.; Vigeland, L.; Kim, Y. S. et al. Dissolvable Films of Silk Fibroin for Ultrathin Conformal Bio-Integrated Electronics. *Nat. Mater.* 2010, 9 (6), 511-517.
- [36] Roberts, A. P.; Henry, B. M.; Sutton, A. P.;



- Grovenor, C. R. M.; Briggs, G. A. D.; Miyamoto, T. et al. Gas Permeation in Silicon-Oxide/Polymer (SiO<sub>x</sub>/PET) Barrier Films: Role of the Oxide Lattice, Nano-Defects and Macro-Defects. *J. Membr. Sci.* 2002, 208, 75-88.
- [37] Oh, S. J.; Lee, S. W.; Lee, H.; Kim, H.; Kim, T. S.; Kwon, J. H. Nanolaminate-Induced Mechanically and Environmentally Robust Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/TiO<sub>2</sub> Thin Film Encapsulation by Low-Temperature Atomic Layer Deposition: Toward Flexible and Wearable OLEDs. *Advanced Materials Technologies* 2024, 9 (18), 2400381.
- [38] Woo, J. H.; Park, S. Y.; Koo, D.; Song, M. H.; Park, H.; Kim, J. Y. Highly Elastic and Corrosion-Resistive Metallic Glass Thin Films for Flexible Encapsulation. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2022, 14 (4), 5578-5585.
- [39] Hwang, G. S.; Bae, J. Y.; Kim, J. W.; Park, S. Y.; Kim, J.; Kang, S. K. et al. Highly Elastic and Conductive Metallic Interconnect with Crystalline-Amorphous Nanolaminate. *ACS Appl Mater Interfaces* 2023, 15 (12), 15863-15871.
- [40] Kim, S. H.; Hwang, G. S.; Koo, D.; Seo, D. H.; Kwon, Y. P.; Lee, H. et al. Highly Impermeable and Flexible Silica Encapsulation Films Synthesized by Sol-Gel Process. *Nano Res.* 2022, 15 (8), 7476-7483.
- [41] Woo, J. H.; Koo, D.; Kim, N. H.; Kim, H.; Song, M. H.; Park, H. et al. Amorphous Alumina Film Robust under Cyclic Deformation: A Highly Impermeable and a Highly Flexible Encapsulation Material. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2021, 13 (39), 46894-46901.
- [42] Chen, S. H.; Chan, K. C.; Yue, T. M.; Wu, F. F. Highly Stretchable Kirigami Metallic Glass Structures with Ultra-Small Strain Energy Loss. *Scrip. Mater.* 2018, 142, 83-87.
- [43] Xu, S.; Zhang, Y.; Jia, L.; Mathewson, K. E.; Jang, K.-I.; Kim, J. et al. Soft Microfluidic Assemblies of Sensors, Circuits, and Radios for the Skin. *Science* 2014, 344 (6179), 70-74.
- [44] Zhang, Y.; Fu, H.; Su, Y.; Xu, S.; Cheng, H.; Fan, J. A. et al. Mechanics of Ultra-Stretchable Self-Similar Serpentine Interconnects. *Acta Mater.* 2013, 61 (20), 7816-7827.
- [45] Jang, D.; Meza, L. R.; Greer, F.; Greer, J. R. Fabrication and Deformation of Three-Dimensional Hollow Ceramic Nanostructures. *Nat. Mater.* 2013, 12 (10), 893-898.
- [46] Fang, H.; Zhao, J.; Yu, K. J.; Song, E.; Farimani, A. B.; Chiang, C. H. et al. Ultrathin, Transferred Layers of Thermally Grown Silicon Dioxide as Biofluid Barriers for Biointegrated Flexible Electronic Systems. *PNAS.* 2016, 113 (42), 11682-11687.
- [47] Kang, S. K.; Hwang, S. W.; Cheng, H.; Yu, S.; Kim, B. H.; Kim, J. H. et al. Dissolution Behaviors and Applications of Silicon Oxides and Nitrides in Transient Electronics. *Adv. Funct. Mater.* 2014, 24 (28), 4427-4434.
- [48] Song, E.; Lee, Y. K.; Li, R.; Li, J.; Jin, X.; Yu, K. J. et al. Transferred, Ultrathin Oxide Bilayers as Biofluid Barriers for Flexible Electronic Implants. *Adv. Funct. Mater.* 2017, 28 (12), 1702284.
- [49] Cho, M.; Jeon, G. G.; Sang, M.; Kim, T. S.; Suh, J.; Shin, S. J. et al. Ultra-Thin Thermally Grown Silicon Dioxide Nanomembrane for Waterproof



- Perovskite Solar Cells. *J. Power Sources* 2023, 563, 2323810.
- [50] Kim, N. H.; Hwang, G. S.; Kim, H.; Kim, S. H.; Woo, J. H.; Song, M. H. et al. Enhanced Biaxial Stretchability of Wrinkled SiO<sub>2</sub> Thin Films for Stretchable Encapsulation. *Scr. Mater.* 2022, 207, 114280.
- [51] Kim, H.; Hwang, G. S.; Lee, S.; Kim, J. Y. Enhanced Stretchability of Wavy-Structured Thermally Grown Silicon Dioxide Films for Stretchable Encapsulation. *Adv. Electron. Mater.* 2023, 9 (7), 2300078.
- [52] Shin, D. C.; Park, G. Y.; Go, M. S.; Kim, B. J. Mechanical Reliability of Cu Electrode for Flexible Electronics under Asymmetric Bending Deformations. *J. Flex. Print. Electron.* 2024, 3 (2), 241-247.
- [53] Yang, J. G.; Yoon, B.; Kwak, H. G.; Jun, J. W.; Yun, J. M.; Song, S. H. et al. Alq<sub>3</sub>/MgF<sub>2</sub> Multilayered Encapsulation Film for Enhanced Stability of Perovskite Solar Cells. *J. Flex. Print. Electron.* 2022, 1 (2), 225-233.
- [54] Hu, Z.; Guo, H.; An, D.; Wu, M.; Kaura, A.; Oh, H. et al. Bioresorbable Multilayer Organic-Inorganic Films for Bioelectronic Systems. *Adv. Mater.* 2024, 36 (19), e2309421.
- [55] Ko, G. J.; Kang, H.; Han, W. B.; Dutta, A.; Shin, J. W.; Jang, T. M. et al. Materials and Designs for Extremely Efficient Encapsulation of Soft, Biodegradable Electronics. *Adv. Funct. Mater.* 2024, 34 (39), 2403427.
- [56] Choi, S.; Park, J. W.; Cho, H.; Shin, J. W.; Kim, K.; Kwon, O. E. et al. Biocompatible Multilayered Encapsulation for Organic Light-Emitting Diodes. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2025, 17 (17), 25534-25545.
- [57] Lee, S. W.; Son, Y. H.; Lee, S.; Oh, S. J.; Jeon, Y.; Kim, H. et al. Highly Reliable and Ultra-Flexible Wearable OLEDs Enabled by Environmentally and Mechanically Robust Hybrid Multi-barrier Encapsulation Layers. *Adv. Funct. Mater.* 2024, 35 (10), 2411802.
- [58] Jeon, H.; Yoo, H.; Lee, S. H.; Sim, Y.; Kim, S. M.; Kwak, J. Y. et al. Nanomechanical Insights into Enhancing Flexibility and Reliability in Deformable Optoelectronic Devices. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2025, 17 (30), 42568-42585.