

고방열 복합소재 개발을 위한 고열전도성 액정성 에폭시 수지의 개발

김영수*,** . 정진* . 여현욱* . 유남호* . 장세규* . 안석훈* . 이승희** . 고문주*†

Development of Highly Thermal Conductive Liquid Crystalline Epoxy Resins for High Thermal Dissipation Composites

Youngsu Kim*,** , Jin Jung* , Hyeonuk Yeo* , Nam-Ho You* , Se Gyu Jang* , Seakhoon Ahn* ,
Seung Hee Lee** , Munju Goh*†

ABSTRACT: Epoxy resin (EP) is one of the most famous thermoset materials. In general, because EP has three-dimensional random network, it possesses thermal properties like a typical heat insulator. Recently, there has been increasing interest in controlling the network structure for making new functionality from EP. Indeed, the new modified EP represented as liquid crystalline epoxy (LCE) is spotlighted as an enabling technology for producing novel functionalities, which cannot be obtained from the conventional EPs, by replacing the random network structure to oriented one. In this paper, we review current progress in the field of LCEs and their application for the highly thermal conductive composite materials.

초 록: 에폭시 수지는 3차원 네트워크 구조를 갖는 대표적인 열경화성 수지이다. 최근 에폭시 수지의 네트워크 구조를 제어하여 새로운 기능성 에폭시를 개발하는 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히, 액정성 에폭시를 대표로 하는 새로운 개질 에폭시는 랜덤한 형태의 네트워크 구조를 배향 구조로 변경함으로써, 기존의 에폭시로부터 얻을 수 없는 새로운 기능성 발현에 성공하고 있다. 본 논문에서는 액정성 에폭시 수지의 합성과 고방열성 복합재료로의 응용에 관하여 설명하였다.

Key Words: 액정성 에폭시(Liquid crystalline epoxy), 열전도도(Thermal conductivity), 복합재료(Composite material)

1. 서 론

높은 접착력, 내열성, 내화학성, 기계적 강도 등의 강점을 가진 에폭시 수지는 탄소섬유강화플라스틱(CFRP) 등 여러 복합재료의 기지재로 사용되고 있다[1]. 그러나 에폭시 수지는 아민과 같은 경화제와 경화반응을 통해 랜덤한 3차원 cross-linking 네트워크 구조를 형성하여 내부구조에 의한 열의 산란이 많기 때문에 열전도도가 낮아진다는 단점이 있

다[2,3]. 최근 전자 소자의 집적화로 인한 소자의 열적 특성을 향상하기 위하여 고방열 복합소재의 필요성이 커지고 있다. 특히 고방열 복합소재를 구성하는 에폭시 수지의 열전도도 성능 개선이 요구되고 있다.

고분자 재료의 열전도 메커니즘은 열에 의해 원자와 분자에서 발생한 phonon이 전달 됨에 따라 열 전달이 이루어지는 것으로 알려져 있다. 이에 따른 고분자의 열전도도(λ)는 다음과 같이 구할 수 있다.

Received 30 June 2016, received in revised form 16 February 2017, accepted 24 February 2017

*Institute of Advanced Composite Materials, Korea Institute of Science and Technology(KIST)

*†Institute of Advanced Composite Materials, Korea Institute of Science and Technology(KIST), Corresponding author (E-mail: goh@kist.re.kr)

**Department of BIN Convergence Technology, Chonbuk National University

$$\lambda = (1/3) * C * u * l$$

(C: 정적 열용량, u : phonon의 평균속도, l : phonon의 평균 자유 행정 길이)

l 은 재료의 기하학적 구조에 따른 phonon의 정적 산란과, 분자 및 격자진동의 비조화성에 의한 phonon간의 충돌에 따른 동적 산란에 의해 결정된다[4]. 따라서 고분자 재료의 열전도도를 향상시키기 위하여 phonon의 산란을 감소시켜 phonon의 평균 자유 행정 길이(l)를 증가시킬 필요가 있다. 일반적으로 phonon의 정적 산란은 고분자 내의 비결정 영역이나 결함구조에 의해 발생하는 것으로 알려져 있어, 정적산란을 감소시키기 위해서는 보다 높은 결정 구조를 갖는 고분자의 설계 기술이 필요하다. 또한, phonon의 동적 산란은 고분자의 배향성에 영향을 받는 것을 알려져 있으며 고분자 구조의 배향도가 향상 될수록 높은 열전도도를 갖는 것으로 알려져 있다. 이는 배향된 폴리에틸렌의 열전도도를 통해 밝혀졌다[5,6]. 따라서, 고분자 물질의 열전도도를 향상 시키기 위해서는, 포논의 평균행정 길이를 증가시킬 필요가 있으며, 이를 위해서는 고분자의 결정성 향상을 통한 phonon의 정적산란 감소와 배향화를 통한 동적산란의 감소를 유도 할 수 있는 분자구조 설계가 필요하다.

3차원 랜덤 네트워크 구조를 갖는 기존 에폭시와 달리, 액정성 에폭시는 분자구조에 도입된 mesogen그룹들 간의 강한 π - π stacking을 통해 결정성이 향상된 자기조립체를 형성하며, 미세영역에서는 자기조립체가 배향된 형태의 도메인 구조를 형성한다. 액정성 에폭시가 갖는 높은 결정성은 기존의 랜덤 네트워크 구조의 에폭시보다 phonon의 정적 산란을 감소시킬 수 있으며, 배향된 형태의 도메인 구조는 phonon의 동적산란을 감소시켜, phonon의 평균 자유 행정 길이를 증가시키고, 결과적으로 에폭시 수지의 열전도도를 향상시키는 것으로 보고되었다[7].

이에 본 논문은 액정성 에폭시의 합성 기술을 통하여 고분자 물질의 열전도도 향상을 위한 기초적인 분자설계 기술에 관하여 보고 하며, 액정성 에폭시를 이용한 고 방열 복합소재로의 응용에 대하여 논하였다.

2. 액정성 에폭시

2.1 액정성 에폭시

액정성 에폭시 수지는 분자 내에 두 개 이상의 에폭시 그룹을 가지며, 온도나 용매의 농도에 따라 액정성을 발현하는 물질을 말한다. 전형적인 액정성 에폭시 수지는 막대모양의 저 분자량 monomer로 기존의 에폭시와는 다르게 에폭시 그룹 사이에 mesogen 그룹과 flexible한 사슬이 존재한다. 또한 twin mesogen 에폭시 단량체의 경우 mesogen 사이에 flexible한 chain이 추가적으로 존재하는 구조를 가진다 (Fig. 1)[8].

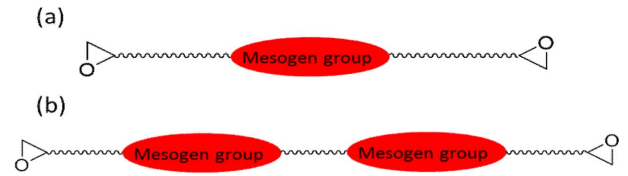


Fig. 1. (a) Mesogenic epoxy monomer (b) twin mesogenic epoxy monomer molecular structure [8]

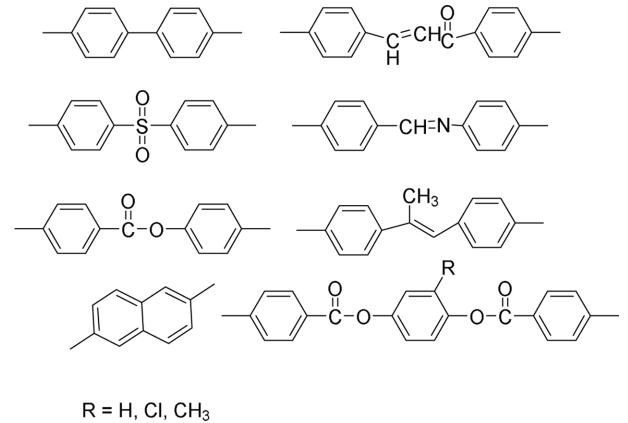


Fig. 2. Typical mesogenic groups [8]

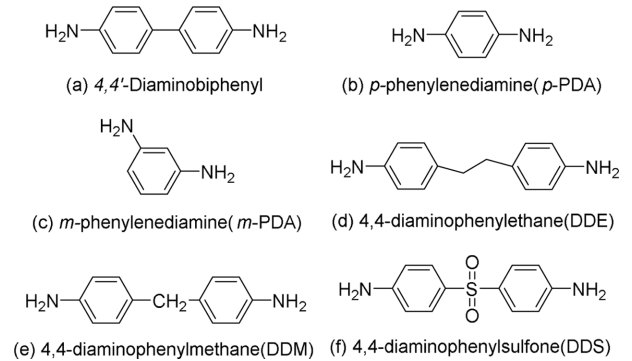


Fig. 3. Typical amines used as curing agents

액정성 에폭시의 성질은 에폭시 그룹에 붙은 mesogen 그룹과 spacer의 유연성에 의존하는 경향이 있어, mesogen 그룹의 구조와 성질은 액정성 에폭시의 열전도도에 영향을 미치는 중요한 요소이다. 액정성 에폭시의 대표적인 mesogen 그룹을 Fig. 2로 나타냈다.

또 액정성 에폭시와 아민계 경화제 경화반응을 통하여 가교결합된 네트워크 구조를 형성할 수 있다. 주요 사용되는 아민계 경화제를 Fig. 3으로 나타내었다.

모든 아민계 경화제가 에폭시 그룹과 반응하여 경화반응이 일어나지는 않지만, 반응이 일어난다면 경화가 일어나는 것을 편광현미경을 통해 직접 관찰할 수 있으며, 또한 편광현미경을 통해 액정의 mesophase를 관찰할 수 있다.

경화를 수행하는 온도를 조절함에 따라, 경화 후의 에폭시 경화물의 구조를 조절할 수 있다. 액정상 에폭시가 액정

성을 나타내는 온도범위에서 경화를 진행 한다면, 액정성 에폭시들이 배향되어 있는 상태에서 경화가 일어나므로, 경화과정이 끝난 후에도 배향된 상태를 유지한다. 또한 이러한 비등방성은 자기장이나 전기장을 걸어줄 때, 보다 배향된 구조를 얻을 수 있다.

2.2 액정성 에폭시를 이용하여 열전도도 측정

일본 HITACHI 그룹의 연구를 보면 두 개의 phenyl benzonate이 mesogen으로 사용되었고 양 말단에 에폭시 그룹이 존재하고 mesogen과 에폭시 그룹사이에 aliphatic한 사슬이 spacer로써 위치하는 액정성 에폭시(3,3',5,5'-tetramethyl-4,4'-biphenyl diglycidyl ether, TME n , $n = 4, 6, 8$)를 합성하였다(Fig. 4). 경화제로는 diaminodiphenylmethane(DDM)을 사용하여 경화를 진행 하여 경화물의 열전도도를 측정하였다. 또한 4,4'-biphenol diglycidyl epoxy(BPE)를 DDM과 경화하여 열전도도를 비교하였다.

경화 반응은 에폭시 monomer와 경화제를 mixing하여 175 °C에서 4시간 진행하였다.

열전도도는 열확산계수와 열용량을 측정하여 계산하였으며, 그 결과 TME4의 열전도도가 0.96 W/mK로 가장 높았고, BPE와 비교하여 약 3배 높은 결과를 보였다. 또한 TME6,8 또한 BPE에 비교하여 높은 열전도도를 보였다(Table 1).

TME n 에폭시 경화물들의 열전도도를 비교하면 mesogen 사이의 spacer의 길이가 열전도도에 많은 영향을 알 수 있다. 즉 mesogen사이의 거리가 가까울수록 보다 결정성이 높은 구조가 되기 때문에, 열전도도가 높아진다. 즉 TME4의

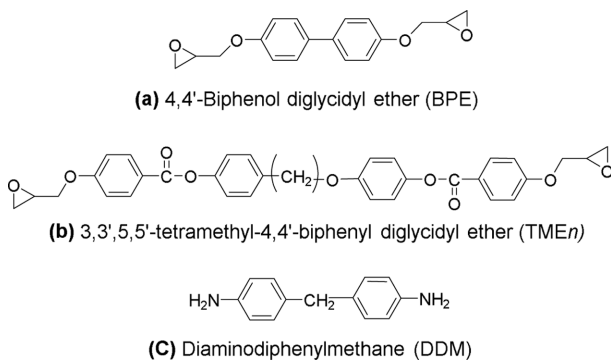


Fig. 4. Molecular structure of BPE, TME n ($n = 4, 6, 8$), DDM [7]

Table 1. Thermal conductivity of TME n /DDM, BPE/DDE [7]

Epoxy	Curing agent	Thermal conductivity
TME4	DDM	0.96 W/mK
TME6	DDM	0.89 W/mK
TME8	DDM	0.85 W/mK
BPE	DDM	0.30 W/mK
DGEBA	DDM	0.20 W/mK

경우, 도메인을 형성하는 phenyl benzoate 그룹의 농도가 다른 에폭시보다 높기 때문에 더 높은 열전도도가 나타났다. 이러한 액정성 에폭시 경화물의 열전도도는 일반적으로 사용되는 상용성 에폭시 수지인 diglycidyl ether of bisphenol A (DGEBA)계 에폭시의 열전도도 0.17~0.21 W/mK 보다 훨씬 높은 수치를 가지는 것을 알 수 있다. DGEBA계 에폭시와 TME8의 DDM과의 경화물을 구조 형태에 기인한다. 즉, 비정질 구조를 갖는 DGEBA/DDM과 달리 TME8/DDM의 경우 안정한 smectic상을 보이며 경화 후에도 smectic 상의 층간 구조를 유지할 수 있어, phonon의 정적산란을 감소시킬 수 있으며 결과적으로 높은 열전도도를 보였다[7].

또한, 일본의 칸사이 대학교, Miyuki Harada 교수 팀도 DGEBA 타입의 에폭시와 액정성 에폭시의 열전도도를 비교하였다.

양 말단에 에폭시 그룹을 가지는 diglycidyl ether of terephthalidene-(bis-4-amino-3-methylphenol)(DGETAM)를 액정성 에폭시 monomer로 사용하였고 경화제로는 *m*-phenylenediamine(*m*-PDA)을 사용하여 경화를 진행하였다. 또한 액정 발현온도와 경화온도와의 상관관계를 보이기 위하여 Isotropic(I)과 액정온도범위에서 각각 경화를 진행하고 경화물의 열전도도를 비교하였다. 경화조건을 Table 2에 나타내었다.

액정상을 띄는 온도범위에서의 경화물의 열전도도는 0.38 W/mK로 DGEBA계 에폭시를 경화시킨 경우인 0.20 W/mK보다 높게 나타났고, 또한 액정상을 띄지 않는 Isotropic상에

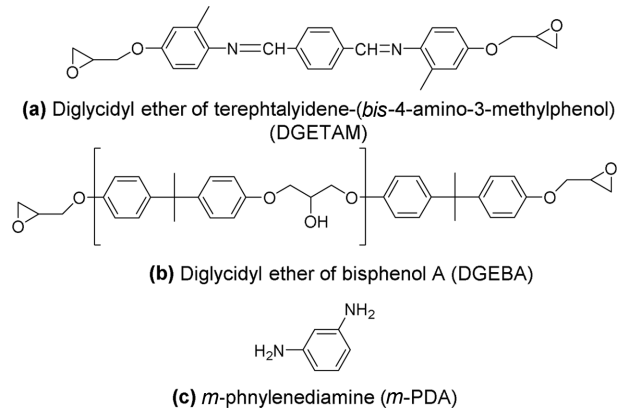


Fig. 5. Molecular structure of DGETAM, DGEBA, *m*-PDA [9]

Table 2. Curing condition of DGETAM/*m*-PDA, DGEBA/*m*-PDA [9]

Epoxy	Pre-cure (Temperature, Time)	Post-cure (Temperature, Time)
DGEBA	80 °C, 60 s	80 °C, 2 h +180 °C, 2 h
DGETAM(LC)	180 °C, 30 s + 160 °C, 60 s	120 °C, 2 h +160 °C, 40 min
DGETAM(I)	200 °C, 60 s	200 °C, 30 min

서의 경화물도 0.35 W/mK로 액정범위에서 경화시킨 경우보다 조금 낮게 나타났지만 DGEBA계 에폭시 경화물의 열전도도보다 높게 나타났다. Isotropic과 LC상의 경화에서의 열전도도 차이는 네트워크 구조의 mesogen의 정렬 차이로 알려져 있다. 액정상에서의 경화는 mesogen들의 비등방성에 의한 배향이 일어나 도메인이 형성되고 이 정렬된 상태에서 경화가 진행되어 경화된 후에도 도메인이 유지되어 열전도도가 증가한다고 알려져 있다. 그러나 Isotropic상에서는 monomer의 비등방성이 약해져 배향이 잘 일어나지 않아, 도메인이 잘 형성되지 않고 강하게 정렬되지 않은 상태에서 경화되어 비정질 고분자 구조와 비슷한 구조를 가지게 되어 액정상에서 경화했을 때 보다 비교적 낮은 열전도도를 보였다.

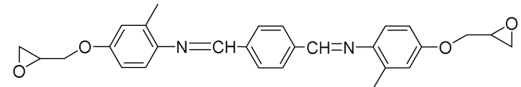
높은 열전도도를 갖는 액정성 에폭시에 filler로써 boron nitride(BN)을 첨가한 복합소재의 열전도도를 측정하였다. 복합체에 이용된 BN은 Platelets모양을 가지며 열전도도 60 W/mK를 사용하였다. Filler의 함량은 0~35 vol%까지 첨가하였으며, 이전과 같은 조건으로 DGEBA계 에폭시와 DGETAM 에폭시의 액정상과 Isotropic상에서의 경화물의 열전도도를 비교하였다. 모든 에폭시는 BN이 첨가됨에 따라 열전도도가 증가하는 경향을 보였다. 0.38 W/mK였던 DGETAM-액정상의 경화물은 35 vol%에서 2.5 W/mK까지 열전도도가 증가함 보였으며, 또한 isotropic상의 경화물은 BN이 첨가됨에 따라 0.35 W/mK에서 30 vol%에서 1.5 W/mK까지 증가를 보였으나, 그 이상의 filler함량의 경화물은 경화온도가 높아져 경화물을 제조할 수 없었다. DGEBA 에폭시 또한 BN함량이 35 vol%까지 증가함에 따라 열전도도가 1.8 W/mK로 증가함을 보였다. 액정상에서의 경화물과 isotropic상에서의 경화물의 열전도도는 BN함량에 따른 증가를 비교할 때 액정상에서의 경화물이 열전도도가 더 크게 증가하는 것을 관찰하였는데, 이는 비등방성에 의해 배향된 액정구조와 높은 열전도도를 가지는 BN의 aggregation에 의해 열전도도가 isotropic상에서 경화물의 열전도도 증가보다 더 높은 증가 폭을 보인다[9].

위의 선행된 연구들을 통해 액정성 에폭시를 사용할 경우가 상용되고 있는 에폭시보다 높은 열전도도를 나타내는 것을 알 수 있었으며, 또한 filler물질을 충전한 복합소재의 경우에도 상용에폭시를 이용한 복합소재 보다 뛰어난 열전도도 특성을 나타내는 것을 알 수 있었다.

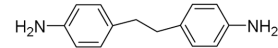
2.3 자기장의 효과

전술한 바와 같이 고분자의 평균자유행정길이를 증대 시키기 위해서는 동적산란과 정적산란을 감소시킬 필요가 있다. 액정성 에폭시는 분자간의 강한 π - π stacking으로 인한 자기조립 능력과 도메인 형성으로 인하여 일반 상용 에폭시보다 높은 결정성을 가짐을 알 수 있었다. 이는 고분자 물질의 정적산란을 감소시키는 역할을 담당했다. 본 책

$$K = \kappa * \rho * c \quad (\kappa: \text{Thermal diffusivity}, \rho: \text{Density}, c: \text{Specific heat})$$



(a) Diglycidyl ether of terephthalidene-(bis-4-amino-3-methylphenol) (DGETAM)



(b) 4,4'-diaminodiphenylethane (DDE)

Fig. 6. Molecular structure of DGETAM, DDE [11]

Table 3. Thermal properties of DGETAM/DDM by magnetic field [11]

	Without magnetic field	Magnetic field (10 T)	
		$H_{//}^e$	H_{\perp}^f
Thermal conductivity (W/mK) ^a	0.43	0.89	0.32
Thermal diffusivity ($10^{-5}\text{cm}^2\text{s}^{-1}$) ^b	256	545	193
Specific heat (J/gK) ^c	1.26	1.26	1.26
Density (g/cm^3) ^d	1.34	1.29	1.30

^{a)}Thermal conductivity (K): $K = \kappa * \rho * c$ (κ : Thermal diffusivity, ρ : Density, c : Specific heat)

^{b)}Thermal diffusivity was measured by laser flash method (LF/TCM-FA8510B, Rigaku)

^{c)}Specific heat was measured by laser flash method (LF/TCM-FA8510B, Rigaku)

^{d)}Density measured for the cured DGETAM/DDE sample bulk sample

^{e)}Parallel direction to the applied magnetic field

^{f)}Vertical direction to the applied magnetic field

터에서는 고분자 물질의 배향화를 통한 정적산란의 감소에 관하여 서술한다. 간사이 대학교 Miyouki Harada 교수팀은 액정성 에폭시에 자기장을 가해서 배향한 뒤 경화물을 제조하였을 때, 경화물의 열적 특성과 기계적 물성이 증가했던 연구를 참고하여[10], 자신이 종전에 합성했던 액정성 에폭시인 diglycidyl ether of terephthalidene-(bis-4-amino-3-methylphenol)(DGETAM)와, 경화제인 4,4'-diaminodiphenylethane(DDE)과 혼합하여 자기장으로 배향시킨 뒤 경화물을 제조하였다. 액정성 에폭시가 169~202 °C에서 nematic 상을 나타내기 때문에 이 온도범위에서 경화제와 혼합 후 0~10 Tesla (T)의 자기장을 가하여 170 °C에서 15분 동안 경화를 진행하였다.

열 확산계수의 측정은 Laser flash 기법으로 측정하였다. 열전도도 K는 다음과 같은 공식을 통해 계산하였고 그 결과를 Table 3에 나타냈다.

DGETAM/DDE를 자기장을 걸어주지 않고 경화를 진행하였을 때의 열전도도는 0.43 W/mK였다. 이결과는 기존 DGETAM/*m*-PDA 에폭시 경화물의 0.38 W/mK보다 향상된

값으로 에폭시 수지의 경화에 사용되는 경화제의 종류에 따라 에폭시 경화물의 열전도도가 다를 수 있다. DGETAM/DDE 에폭시 경화물의 자기장 인가 방향의 수평 방향과 수직방향에서의 열전도도의 이방성을 측정한 결과 자기장 인가방향과 수평 방향에서는 0.89 W/mK, 수직 방향에서는 0.35 W/mK가 측정되었다.

액정성 에폭시를 자기장으로 배향시킨 후 경화했을 때의 열전도도 값은 기존 에폭시인 DGEBA 에폭시의 열전도도인 0.2 W/mK보다 훨씬 높은 값을 보였다. 고분자의 열전도도는 phonon의 산란의 영향을 받는데, 경화 시 자기장을 이용하면 자기장의 인가방향과 수평하게 액정성 에폭시의 분자구조가 배향되며, 배향된 방향으로 phonon의 전달이 용이하여 phonon의 산란을 최소화 됨으로써 열전도도가 향상됨을 알 수 있다. 또한 자기장의 세기에 따른 에폭시의 정렬도와 열전도도의 관계에 연구하였는데, 0~10 T의 자기장을 가할 때, 액정성 에폭시들의 정렬 정도가 강해지고 또한 이에 따라 열전도도가 높아지는 것을 관찰하였다. 또한, 1 T 이상의 자기장의 인가로부터 액정분자의 배향이 충분히 달성되었으며 액정분자의 배향도 증가와 함께 열전도도가 증가함을 알 수 있었다.

액정화합물의 자기장에서의 배향원리는 메소젠그룹에 존재하는 벤젠고리의 수직방향과 수평방향으로의 자장에 의한 자화율(χ)의 이방성($\Delta\chi = \chi_{//} - \chi_{\perp}$)에서 유래한다. 그러므로 사용되는 액정화합물에 존재하는 벤젠환의 개수와 벤젠환의 배향 형태에 따라서 액정화합물을 배향시키는데 필요한 자기장의 세기가 달라진다. 보통 네마틱 액정상의 액정화합물의 경우 1 T 이상의 자장에서 배향시킬 수 있는 것이 보고되고 있다[11].

3. 요약

액정성 에폭시를 활용하여 선행된 많은 연구를 통해 액정성 에폭시가 가지는 비등방성을 이용하여 배열한 뒤 경화시킴으로 기존 에폭시보다 높은 열전도도를 얻을 수 있다. 자기장 인가를 통해 액정성 에폭시 모노머를 고도로 정렬시킬 수 있으며, 배향상태에서 에폭시를 경화시켜 정렬 형태를 유지한 경화물을 얻을 수 있었다. 이렇게 배향된 에폭시 경화물은 배향방향으로 보다 높은 열전도도 값을 가질 수 있다[11]. 또한 액정성 에폭시와 열전도성이 높은 filler인 CNT[12], alumina[13], BN[9,14] 등을 이용한 고방열소재 복합체 제조 연구도 활발히 진행되고 있다. 향후 고열전도도를 가지는 다양한 종류의 액정성 에폭시를 합성하여, 자기장을 이용해 강하게 정렬한 뒤 BN이나 alumina 등 높은 열전도도를 가지는 filler와 복합체를 경화를 수행한다면 더 높은 열전도도를 지니는 복합재료를 만들 수 있을 거라 예상된다.

후 기

본 연구는 2016년도 한국과학기술연구원(KIST)의 기관 고유사업 (2Z05020), 산업통산자원부 지역산업기술개발사업 (R0004423), 중소기업청에서 지원하는 2016년도 산학협력 기술개발사업 (C0396268)의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

- (Book) Pilato, L.A., and Michno, M.J. In *Advanced Composite Material*, Springer Science & Business Media. 1994.
- (International Journal) Choi, J.H., Song, H.J., Jung, J., Yu, J.W., You, N.H., and Goh, M., "Effect of Crosslink Density on Thermal Conductivity of Epoxy/Carbon Nanotube Nanocomposites," *J. Appl. Polym. Sci.* Vol. 134, 2017, pp. 4453 (1-7).
- (International Journal) Yu, J., Jung, J., Choi, Y., Choi, J., Yu, J., Lee, J., You, N., and Goh, M., "Enhancement of the Crosslink Density, Glass Transition Temperature, and Strength of Epoxy Resin by Using Functionalized Graphene Oxide Co-curing Agents," *Polymer Chemistry*, Vol. 7, 2016, pp. 36-43.
- (International Journal) Hansen, D., and Bernier, G.A., "Thermal Conductivity of Polyethylene: The Effects of Crystal Size, Density and Orientation on the Thermal Conductivity," *Polymer Engineering & Science*, Vol. 12, 1972, pp. 204-208.
- (International Journal) Choy, C.L., Luk, W.H., and Chen, F.C., "Thermal Conductivity of Highly Oriented Polyethylene," *Polymer*, Vol. 19, 1978, pp. 155-162.
- (International Journal) Choy, C.L., and Young, K., "Thermal Conductivity of Semicrystalline Model," *Polymer*, Vol. 18, 1977, pp. 769-776.
- (International Journal) Akatsuka, M., and Takezawa, Y., "Study of High Thermal Conductive Epoxy Resins Containing Controlled High-order Structures," *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 89, 2003, pp. 2464-2467.
- (Book) Mossety-Leszczak, B., and Włodarska, M., "Liquid Crystallinity in Polymers—liquid Crystalline Epoxy Resins," *Liquid Crystalline Organic Compounds and Polymers as Materials of the XXI Century: from Synthesis to Applications*, Transworld Research Network, India, 2011.
- (International Journal) Harada, M., Hamaura, N., Ochi, M., and Agari, Y., "Thermal Conductivity of Liquid Crystalline Epoxy/BN Filler Composites having Ordered Network Structure," *Composites: Part B*. Vol. 55, 2013, pp. 306-313.
- (International Journal) Barklay, G.G., McNamara, S.G., Ober, C.K., Papathomas, K.I., and Wang, D.W., "The Mechanical and Magnetic Alignment of Liquid Crystalline Epoxy Thermoset," *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*, Vol. 30, 1992, pp. 1845-1853.
- (International Journal) Harada, M., Ochi, M., Tobita, M., Kimura, T., Ishigaki, T., Shimoyama, N., and Aoki, H., "Thermal-conductivity Properties of Liquid-crystalline Epoxy Resin Cured under a Magnetic Field," *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, Vol. 41, 2003, pp. 1739-1743.

12. (Korean Journal) Oh, Y., You, B.I., Ahn, J.H., and Lee, G.W., "Investigation of Thermal Stability of Epoxy Composite Reinforced with Multi-walled Carbon Nanotubes and Micrometer-sized Silica Particles," *Journal of the Korean Society for Composite Materials*, Vol. 29, 2016, pp. 306-314.
13. (International Journal) Wu, X., Jiang, P., Zhou, Y., Yu, J., Zhang, F., Dong, L., and Yin, Y., "Influence of Alumina Content and Thermal Treatment on the Thermal Conductivity of UPE/ Al_2O_3 Composite," *J. Appl. Polym. Sci.* Vol. 131, 2014.
14. (International Journal) Donnay M., Tzawalas, S., and Logakis, E., "Boron Nitride Filled Epoxy with Improved Thermal Conductivity and Dielectric Breakdown Strength," *Composites Sci and Tech.* Vol. 441, 2015, pp. 152-158.