

Phenylcyclohexyl mesogenic moieties를 함유한 고 열전도성 액정성 에폭시 수지의 개발

정이슬* · 김영수* · 고문주*[†]

Development of Highly Thermal Conductive Liquid Crystalline Epoxy Resins Bearing Phenylcyclohexyl Mesogenic Moieties

Iseul Jeong*, Youngsu Kim*, Munju Goh*[†]

ABSTRACT: The new liquid crystalline (LC) epoxy was designed by substituting the phenylcyclohexyl (PCH) mesogen moiety with an alkyl chain at the 2,5 position of the diglycidyl terephthalate. The mesomorphic properties were evaluated by differential scanning calorimetry (DSC) and polarized optical microscopy (POM). All LC epoxy derivatives exhibited an enantiotropic smectic phase upon heating and cooling process. The LC phase temperature range was widened by mixing the eutectic mixture of LC epoxies. Interestingly, the cured LC epoxy exhibited the highest thermal conductivity of $0.4 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$. The novel LC epoxy with high thermal conductivity might be used as a composite material for electronic and display devices.

초 록: Phenylcyclohexyl (PCH) mesogen을 diglycidyl terephthalate의 2,5 위치에 치환시킨 새로운 액정성 에폭시 수지를 설계하였다. 이 물질의 액정성은 DSC(differential scanning calorimetry)와 POM(polarized optical microscopy)으로 분석하였다. 모든 액정성 에폭시 유도체는 가열 및 냉각 시에 모두 smectic상을 나타내는 enantiotropic한 성질을 나타내었다. 액정성 에폭시의 공용 혼합물을 통하여 액정 온도구간을 확장시켰다. 경화된 신규 액정성 에폭시는 $0.4 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 의 높은 열전도도를 나타냈다. 높은 열전도도를 갖는 신규 액정성 에폭시는 전자 및 디스플레이용 복합소재로 이용될 것으로 기대된다.

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

1. 서 론

대표적 열경화성 수지인 에폭시 수지는 아민, 산, 산무수물, 페놀, 알코올 등과 같은 경화제와의 경화반응을 통해 3차원 가교 구조를 형성한 후 우수한 접착력, 내약품성, 내열성 및 기계적 특성을 가지며 다양한 산업 분야에서 사용

되고 있다[1-4].

그러나, 에폭시 경화물의 3차원 가교구조는 열전달 phonon의 산란을 일으키기 때문에, 에폭시수지 경화물의 열전도도 향상을 위해서는 3차원 가교구조의 단점을 극복할 수 있는 새로운 분자구조 설계 기술이 필요하다. 본 연구에서는 에폭시 수지가 갖는 3차원 가교 구조의 단점을 보완하여 에폭시 수지 경화물의 열전도도를 증가 시키기 위해 액정성

Received 24 August 2017, accepted 29 December 2017

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

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

에폭시 수지 중심의 연구 개발을 소개하고자 한다.

에폭시 경화물의 열 전달은 phonon 진동의 전달에 의해 발생하며 이는 Debye 방정식으로 표현된다.

$$\lambda = (1/3) \times C_v \times u \times l$$

λ : 에폭시 경화물의 열전도도, C_v : 정적 열용량, u : phonon의 평균속도, l : phonon의 평균 자유 행정 길이

C_v 는 수지의 성질에 의해 결정되지만, l 는 에폭시 경화물의 결정성 및 배향성에 의해 결정된다[5-9]. 따라서, 에폭시 경화물의 열전도도를 향상시키기 위해서는 열전달 phonon의 평균자유행정 길이를 증가시킬 필요가 있다. phonon의 평균자유행정을 증가시키기 위해서는 phonon의 동적 산란과 정적 산란을 최소화할 필요가 있으며, 이는 각각 에폭시 경화물의 결정성과 배향성에 의해 영향을 받는다. 특히, 에폭시 경화물의 결정성 향상을 통한 열전달 phonon의 평균자유행정의 길이를 증가시키는 것이 중요하다.

액정 분자는 자기조립 능력을 가지고 있어 분자의 결정성 및 배향성을 향상시키고 phonon의 평균자유행정 길이를 증대시킬 수 있으므로 열전도도를 향상시킬 수 있다[10-17]. 실제로 일부 막대 모양의 액정성 에폭시 수지는 $\sim 0.4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 의 높은 열전도도를 보인다. 이 값은 비액정성인 기존의 Diglycidyl ether of bisphenol A (DGEBA)계 에폭시 수지에서 관찰된 열전도도 값보다 2배 더 크다. 따라서 액정성 에폭시 수지가 비액정성보다 열전도에 더 큰 영향을 줄 수 있음을 알 수 있다.

Thermotropic 액정성 에폭시 수지의 경화는 액정의 배열을 유지하기 위해 액정구간 내에서 일어나야 한다. 액정 구간의 온도 범위가 좁으면 발열로 인하여 경화 중 액정상이 파괴될 수 있고 그 결과 에폭시 경화물의 열전도도를 저하시킬 수 있다. 또한 열전도성 복합재료를 제조하기 위하여 액정성 에폭시 수지를 aluminum oxide와 graphene, boron nitride같은 충전제와 혼합하는데, 일반적으로 고분자 복합재료의 열전도도는 충전제의 임계농도에 도달할 때 percolation threshold의 영향을 받는다[18]. 그러나 액정 구간이 넓지 않은 경우, 충전제의 임계농도에 도달하기 전에 상분리가 일어나기 때문에 percolation threshold에 도달하는 것이 어려워, 높은 열전도도를 갖는 복합재료를 얻을 수 없다.

본 연구에서, 에폭시 그룹이 측면에 위치한 새로운 액정성 에폭시 수지를 합성하였고 그에 따른 구조적 특성을 논하였다. 또한 액정성 에폭시 분자의 alkyl chain 길이를 변화시켜 같은 액정상을 가지지만 다른 액정구간을 갖도록 하였다. 액정구간을 넓히기 위해 액정온도 구간이 좁은 액정성 에폭시의 공용 혼합물을 제조하여 넓은 구간에서 액정성을 발현하는 에폭시 시스템을 제조하였다. 또한, 이를 이용한 에폭시 경화물의 경화조건 등에 관한 연구를 진행하였으며 각 경화물의 열전도도를 측정하였다[9].

2. 신규 고 열전도성 액정성 에폭시

2.1 신규 에폭시의 합성 및 액정성

신규 액정성 에폭시 수지와의 비교를 위하여 가장 일반적인 에폭시 수지인 diglycidyl ether of bisphenol A (DGEBA)와 기존에 보고된 액정성 에폭시 diglycidyl ether of terephthalidene-(bis-1-amino-3-methylphenol),(DGETAM)을 준비하였다. DGEBA와 DGETAM의 경우 양 말단에 에폭시 그룹을 지닌 물질이다. 위의 두 물질과 달리 이 연구에서는 분자의 측면에 에폭시 그룹을 갖는 신규 액정성 에폭시수지 diglycidyl di(PCH30n) terephthalate (DGP30n), ($n = 4, 6, 8$)을 새롭게

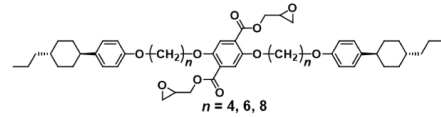
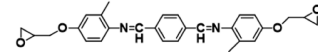
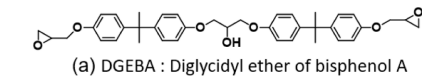


Fig. 1. (a) The molecular structure of DGEBA epoxy resin and typical liquid crystalline epoxy resin (b) DGETAM and (c) DGP30n ($n = 4, 6, 8$) [9,17]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

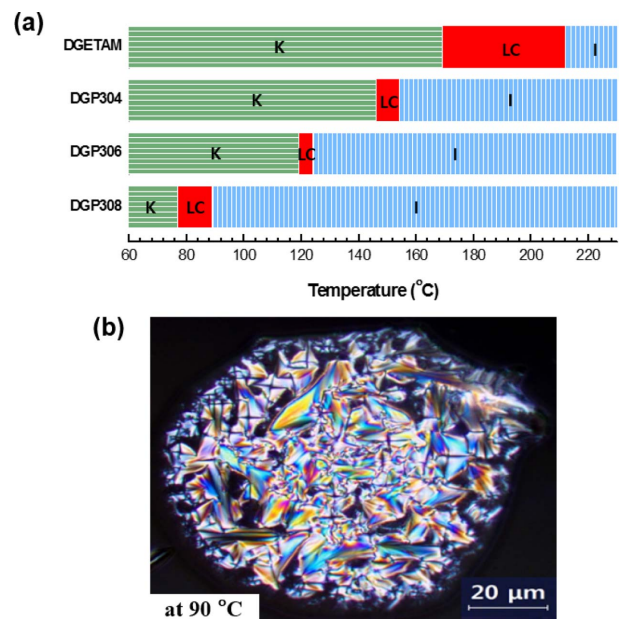


Fig. 2. (a) Phase transition temperatures of DGETAM and DGP30n ($n = 4, 6, 8$) epoxy and (b) polarized light microscope pictures of DGP306 [9]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

게 합성했다. Fig. 1에 DGEBA, DGETAM과 DGP30n, (n = 4, 6, 8)의 분자구조를 나타내었다.

신규 액정성 에폭시의 mesomorphic 특징은 POM 및 DSC 측정으로 조사하였다. 우선, DGETAM과 DGP30n (n = 4, 6, 8)의 상전이온도는 DSC 분석을 통해 확인할 수 있었다(Fig. 2a). DGP304의 상전이온도는 가열 및 냉각 과정에서 각각 K → 146°C (3 J/g) → S_x → 154°C (95 J/g) → I와 I → 102°C (95 J/g) → S_x → 88°C (1 Jg⁻¹) → K이다. 또한 DGP306의 상전이온도는 가열 및 냉각 과정에서 각각 K → 119°C (1 Jg⁻¹) → S_x → 124°C (78 Jg⁻¹) → I와 I → 94°C (76 Jg⁻¹) → S_x → 89°C (1 Jg⁻¹) → K이며 DGP308의 상전이온도는 가열 및 냉각 과정에서 K → 77°C (1 Jg⁻¹) → S_x → 89°C (32 Jg⁻¹) → I와 I → 74°C (30 Jg⁻¹) → S_x → 19°C (2 Jg⁻¹) → K이다. 여기서 K, S_x, I는 각각 결정상, smectic 상과 isotropic 상을 나타내고, 상전이온도와 연관된 엔탈피 변화는 괄호 안에 표시하였다. Fig. 2b에서 DGP306의 편광현미경 사진을 나타내었다. DGP306의 POM 사진에서 fan-shape texture가 관찰되었으며, 모든 DGP30n은 가열 및 냉각 시에 고도로 규칙화된 smectic 상을 나타냈다.

액정성 에폭시로부터 높은 열전도도를 얻기 위해서는 액정상이 갖는 배향성을 그대로 유지한 경화물을 얻을 필요가 있다. 액정성 에폭시의 열경화 시, 배향을 유지하기 위해 액정구간에서 경화시킬 필요가 있다[19]. 그러나, 기존의 열경화성 액정성 에폭시는 액정의 상전이온도 범위가 좁아 경화 반응 시 발생하는 발열 반응에 의해 액정상에서 등방성으로 상전이 되기 쉽다는 단점이 있었다. 즉, 사용 가능한 온도 범위가 좁아 항상 문제가 되어왔다. 본 연구에서 합성한 각각의 DGP30n이 안정한 smectic상을 나타냈지만 액정구간은 10°C 이하로 매우 좁은 것을 확인했다. 좁은 온도 범위는 경화 중 방출되는 열이 액정상을 파괴하고 등방

성으로 변환시킬 수 있기 때문에 에폭시 수지의 경화에는 적합하지 않다. 따라서 액정성 에폭시의 액정 온도 구간을 넓힘으로써 발열 경화 시 액정상을 유지하도록 해야 한다.

액정성 에폭시 수지의 상전이온도를 넓히기 위하여 각각의 DGP30n 수지의 공용 혼합물을 제조하였으며 각각의 혼합 비율은 Fig. 3a에 나타내었다.

혼합물 시스템의 상전이온도는 DSC 분석에 의해 확인하였고 그 결과를 Fig. 3b에 나타내었다. System 1과 System 3, System 4는 가열 및 냉각 시 액정구간에서 두 가지 액정상을 나타냈다. 그러나 System 2는 가열 및 냉각 시에 하나의 안정한 액정상을 나타냈다. 또한 System 2는 98°C와 145°C 사이의 넓은 온도 구간에서 액정성을 발현하는 것을 확인하였다. 이 온도 범위는 최적의 경화제를 선택하고 경화 온도를 조사할 수 있을 만큼 충분히 넓은 액정온도 구간으로써 경화제를 이용한 최적의 경화조건을 찾기 위해 System 2를 이용하였다.

2.2 액정성 에폭시의 경화

경화제의 선택은 수지의 선택만큼 중요하다. 경화제가 네트워크 구조의 일부가 되기 때문에 이를 신중하게 고려해야 한다. 특히, 배향을 유지하기 위해, 액정성 에폭시의 경화반응은 액정구간 범위에서 발생해야 한다. 따라서 액정성 에폭시의 최적의 경화 조건은 경화제의 선택 및 경화 온도에 의해 결정될 수 있다. 먼저 액정성 에폭시의 액정구간에서 경화반응이 발생하는 적합한 경화제가 선택하고 앞서 선택된 경화제와의 가장 효과적인 경화 온도를 결정해야 한다.

이 연구에서는 액정성 에폭시와 아민계 경화제를 이용하여 경화반응을 진행했다. DGETAM에서 사용된 경화제는 *m*-Phenylenediamine (*m*-PDA)이며, System 2의 경우 *p*-Phenylenediamine (*p*-PDA)를 사용하였다. Fig. 4에서 사용된 경화제의 종류 및 분자구조를 확인할 수 있다.

경화제를 선택하기 위해 System 2와 경화제를 혼합하여 열적 거동을 DSC로 조사했다. Fig. 5a는 System 2와 *p*-PDA의 열적 거동을 DSC 측정을 통해 확인한 결과이다.

p-PDA와의 열적 거동에서 액정 온도 범위 구간과 경화 온도 구간이 겹치는 것을 확인하였고, 이 온도 구간인 105,

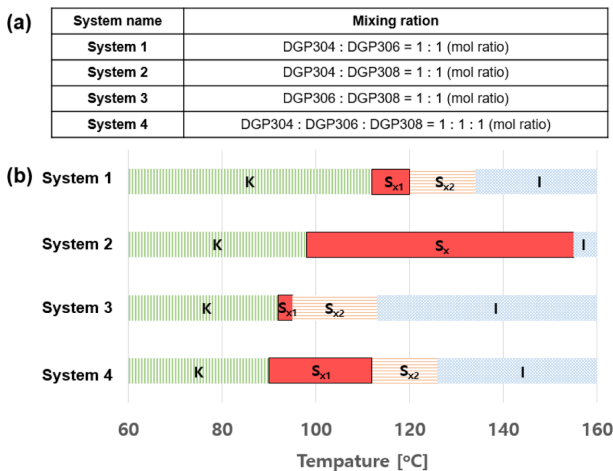


Fig. 3. (a) The mixing ratio of DGP30n (n = 4, 6, 8) epoxy resin and (b) the phase transition temperature of each system [9]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

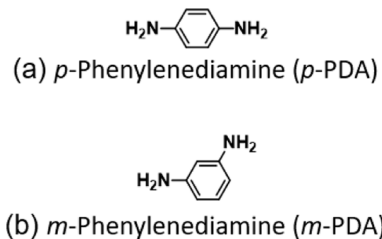


Fig. 4. The molecular structure of curing agents [9,17]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

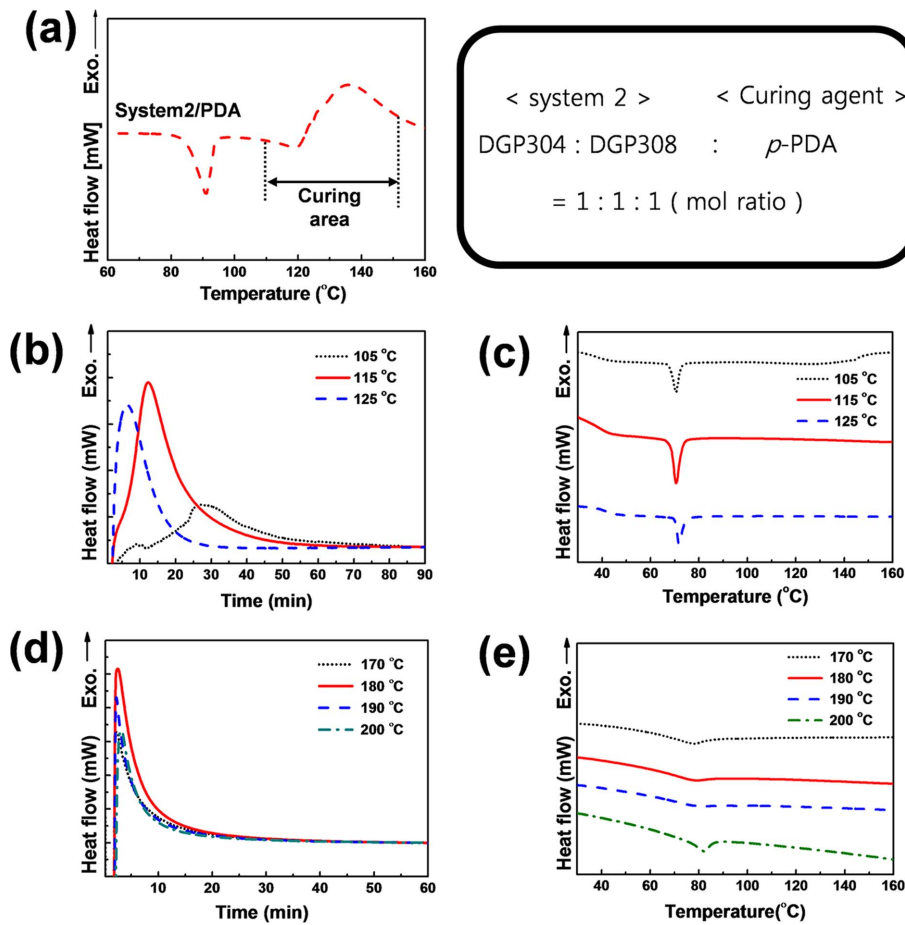


Fig. 5. (a) DSC thermogram results of System 2 and *p*-PDA, (b) optimal pre-cure isothermal heat, (c) DSC thermogram of epoxy resin after pre-cure, and (d) optimal post-cure isothermal heat, (e) DSC thermogram of epoxy resin after post-cure [9]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

115, 125°C에서 isothermal을 측정하여 적합한 pre-cure 시간을 설정하였다(Fig. 5b). 또한 Fig. 5c에서 2nd heating 시에 녹는점(T_m)을 확인할 수 있었다. T_m 에서의 열량을 확인해 본 결과 125°C에서 3.3 J/g의 가장 낮은 흡열 엔탈피를 가진 것을 확인했다. 125°C에서 경화된 에폭시 수지는 견고한 고체 상태를 나타냈다. 가교 반응을 증가시키기 위해 DSC 분석을 통해 170, 180, 190 및 200°C에서 pre-cure된 에폭시 수지를 사용해 post-cure 조건을 조사했다(Fig. 5d,e). 최대 발열 엔탈피는 180°C에서 관찰되었다. 따라서 pre-cure의 적합한 온도와 시간은 125°C에서 30분, post-cure는 180°C에서 30분임을 확인했다.

2.3 에폭시 경화물의 열전도도 측정

액정성 에폭시의 제작은 다음과 같다. 액정성 에폭시는 액정 전이까지 결정상을 나타내기 때문에 고체 분말상태로 경화제 *p*-PDA와 직접 혼합했다. System 2 및 *p*-PDA 각각을 500 rpm에서 hammer mill(Polymix, PX-MFC 90 D)을 사용해 분쇄했다. 그 다음 분쇄된 분말을 mixer (Thinky, SR-

500)를 사용해 2000 rpm에서 3분 동안 혼합해 상분리 없이 균질한 혼합물을 얻었다. 얻어진 혼합분말을 SUS mold(내경: 20 mm, 두께: 2 mm)에 넣은 뒤, heating press(Ocean Science, COAD. 1006c)를 사용해 125°C에서 5 MPa의 압력으로 30분 동안 pre-cure시켰다. 그 후 180°C에서 30분 동안 vacuum oven에서 post-cure를 진행했다. Post-cure 후에 완전히 경화된 샘플을 절단하고 적절히 연마(직경: 20 mm, 두께: 2 mm)하여 열전도도를 평가했다.

경화된 액정성 에폭시 수지의 열전도도는 ISO 표준 22007-2에 따라 transient plane source 방법으로 측정했다. 비액정성인 DGEBA 에폭시/*m*-PDA와 액정성 에폭시 수지인 DGETAM/*m*-PDA, System 2/*p*-PDA의 열전도도를 Table 1에 나타내었다. DGEBA/*m*-PDA, DGETAM/*m*-PDA와 System 2/*p*-PDA의 열전도도는 각각 $0.20 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $0.38 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $0.4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 였다. 경화된 System 2의 열전도도는 결정성 에폭시/*m*-PDA의 열전도도보다 2배 가량 더 큰 것을 확인할 수 있었다.

결과적으로 이 연구에서 개발된 액정성 에폭시는 기존

Table 1. Curing conditions and thermal conductivity of DGEBA/*m*-PDA, DGETAM/*m*-PDA, and system 2/*p*-PDA [9,17,19]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

	Pre-cure	Post-cure	Thermal Conductivity
DGBEA/ <i>m</i> -PDA	80°C, 60 s	80°C, 2 h +180°C, 2 h	0.20 W m ⁻¹ K ⁻¹
DGETAM/ <i>m</i> -PDA	180°C, 30 s + 160°C, 60 s	120°C, 2 h +160°C, 40 min	0.38 W m ⁻¹ K ⁻¹
System 2/ <i>p</i> -PDA	125°C, 30 min	180°C, 30 min	0.40 W m ⁻¹ K ⁻¹

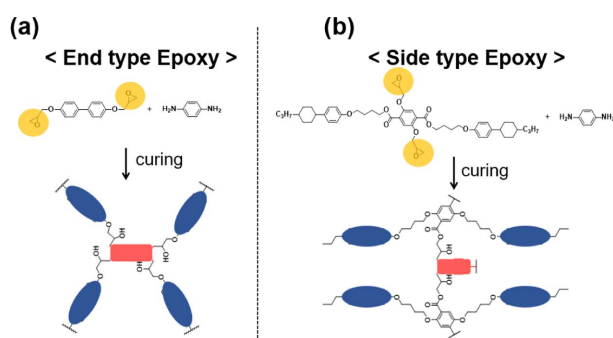


Fig. 6. (a) Molecular alignment of the end type epoxy and (b) molecular alignment of the side type epoxy [9]. Reproduced with permission from ref. 9. Copyright 2017 Royal Society of Chemistry

의 비액정성 에폭시 수지보다 더 높은 열전도도를 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 이는 분자 배향의 관점에서 설명할 수 있다. 열 경화 후에 액정성 에폭시 분자의 배향을 유지하기 위해 분자 측면 위치에 diglycidyl 부분을 갖는 새로운 액정성 에폭시가 설계되었다(Fig. 6).

기존의 액정성 에폭시는 glycidyl 부분이 막대모양의 끝 부분에 존재하며, 이는 amorphous한 네트워크 구조를 형성한다. 이러한 기존 액정성 에폭시는 end type epoxy로 분류된다(Fig. 6a). 이런 에폭시 화합물을 amine 유도체로 경화시키면 C-N-C 공유결합 사이의 이면각으로 인해 mesogen core 부분의 배향 구조가 파괴된다. 그러나 에폭시 그룹이 측면 위치에 있는 “side type epoxy”는 경화 후에도 mesogen core의 3차원적으로 정렬된 구조를 유지할 수 있다(Fig. 6b). 이러한 경화물의 배향된 구조는 phonon 진동에 의한 열 전달 시 phonon의 평균자유행정(mean free path)를 효과적으로 향상시키고 결과적으로 에폭시 경화물의 높은 열전도성을 나타낼 수 있을 것으로 사료된다.

3. 결론

기존의 에폭시 수지는 경화 후 3차원 가교 결합된 네트

워크 구조를 형성하여 phonon 산란을 발생시키고 그 결과 열전달을 취약하게 한다. 우리는 이러한 3차원 네트워크 구조가 가지는 단점을 보완하고자 분자구조를 변형시킨 액정성 에폭시 수지를 이용하였다. 또한, 고 열전도성 액정성 에폭시 수지를 개발하기 위해 분자 측면에 에폭시 그룹을 가지는 새로운 액정성 에폭시 수지를 합성하였다. Alkyl chain 길이를 변화시켜 합성한 유도체들의 공유 혼합물을 통해 액정구간을 넓혔다. 이 신규 공유 혼합물과 기존 전형적인 비액정성 에폭시 수지인 DGEBA의 열전도도를 비교한 결과, 기존 비액정성 신규 액정성 에폭시 경화물은 기존 비액정성 에폭시 수지의 열전도도 보다 약 2배 가량 향상된 0.4 W m⁻¹ K⁻¹의 높은 열전도도를 보였다. 이러한 우수한 열전도도는 액정분자의 자발적 배향과 3차원 네트워크 구조의 방향성 증가에 따른 phonon 산란의 감소로 인한 것이라고 추론할 수 있다.

후 기

본 연구는 2016년도 한국과학기술연구원(KIST)의 기관 고위사업, 산업통산자원부 지역산업기술개발사업(R0004423), 산업통산자원부 소재부품기술개발사업(10076464, 자연모사기반 20W/mK급 경량 고방열 회로시판 제조기술개발) 사업의 일환으로 수행하였으며, 지원에 대해 진심으로 감사드립니다.

REFERENCES

- (Book) Pilato, L.A., and Michno, M.J., *Advanced Composite Material*, Springer Science & Business Media, Germany, 1994.
- (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, No. 1, 2016, pp. 36-43.
- (International Journal) Choi, J.H., Song, H.J., Jung, J., Yu, J.W., You, N., and Goh, M., “Effect of Crosslink Density on Thermal Conductivity of Epoxy/carbon Nanotube Nanocomposites,” *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 134, No. 4, 2017, 44253(pp. 1-7).
- (International Journal) Gao, J., Huo, L., and Du, Y., “Nonisothermal Cure Kinetics and Diffusion Effect of Liquid-crystalline Epoxy Sulfonyl bis(1,4-phenylene)bis[4-(2,3-epoxypropyloxy) benzoate] Resin with Aromatic Diamine,” *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 125, No. 5, 2012, pp. 3329-3334.
- (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 and Science*, Vol. 12, No. 3, 1972, pp. 204-208.
- (International Journal) Akatsuka, M., and Takezawa, Y., “Study of High Thermal Conductive Epoxy Resins Containing Con-

- trolled High-order Structures," *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 89, No. 9, 2003, pp. 2464-2467.
7. (International Journal) Cao, B.Y., Li, Y.W., Koing, J., Chen, H., Xu, Y., Yung, K.L., and Cai, A., "High Thermal Conductivity of Polyethylene Nanowire Arrays Fabricated by an Improved Nanoporous Template Wetting Technique," *Polymer*, Vol. 52, No. 8, 2011, pp. 1711-1715.
 8. (International Journal) Kim, G., Lee, D., Shanker, A., Shao, L., Kwon, M.S., Gidley, D., Kim, J., and Pipe, K.P., "High Thermal Conductivity in Amorphous Polymer Blends by Engineered Interchain Interactions," *Nature Materials*, Vol. 14, 2014, pp. 295-300.
 9. (International Journal) Kim, Y., Yeo, H., You, N.H., Jang, S.G., Ahn, S., Jeong, K.U., Lee, S.H., and Goh, M., "Highly Thermal Conductive Resins Formed from Wide-temperature-range Eutectic Mixtures of Liquid Crystalline Epoxies Bearing Diglycidyl Moieties at the Side Positions," *Polymer Chemistry*, Vol. 8, 2017, pp. 2806-2814.
 10. (International Journal) Chien, L.C., Lin, C., Fredley, S., and McCargar, J.W., "Side-chain Liquid-crystal Epoxy Polymer Binders for Polymer-dispersed Liquid Crystals," *Macromolecules*, Vol. 25, 1992, pp. 133-137.
 11. (International Journal) Mallon, J.J., and Adams, P.M., "Synthesis and Characterization of Novel Epoxy Monomers and Liquid Crystal Thermosets," *Journal of Polymer Science: Part A: Polymer Chemistry*, Vol. 31, 1993, pp. 2249-2260.
 12. (International Journal) Ortiz, C., Kim, R., Rodighiero, E., Ober, C.K., and Kramer, E.J., "Deformation of a Polydomain, Liquid Crystalline Epoxy-Based Thermoset," *Macromolecules*, Vol. 31, 1998, pp. 4074-4088.
 13. (International Journal) Lee, J.Y., Jang, J., Hong, S.M., Hwang, S.S., and Kim, K.U., "Relationship between the Structure of the Bridging Group and Curing of Liquid Crystalline Epoxy Resins," *Polymer*, Vol. 40, 1999, pp. 3197-3202.
 14. (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.
 15. (International Journal) Li, Y., Badrinarayanan, P., and Kessler, M.R., "Liquid Crystalline Epoxy Resin Based on Biphenyl Mesogen: Thermal Characterization," *Polymer*, Vol. 54, No. 12, 2013, pp. 3017-3025.
 16. (International Journal) Li, Y., and Kessler, M.R., "Liquid Crystalline Epoxy Resin Based on Biphenyl Mesogen: Effect of Magnetic Field Orientation during Cure," *Polymer*, Vol. 54, No. 21, 2013, pp. 5741-5746.
 17. (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.
 18. (Book) Stauffer, D., and Aharony, A., *Introduction to Percolation Theory: Revised Second Edition*, Taylor & Francis, UK, 1994.
 19. (Korean Journal) Kim, Y., Jung, J., Yeo, H., You, N.H., Ahn, S., Lee, S.H., and Goh, M., "Development of Highly Thermal Conductivity Liquid Crystalline Epoxy Resins for High Thermal Dissipation Composites," *Composites Research*, Vol. 30, No. 1, 2017, pp. 1-6.