

고기능성 열관리 복합소재 개발 동향



송상원

- 2023. 한양대학교 유기나노공학과 학사
- 2023-현재. 한양대학교 유기나노공학과 석사과정



정우재

- 2020. 경북대학교 섬유공학과 학사
- 2020-현재. 한양대학교 유기나노공학과 석박통합과정



신환수

- 2019. 한양대학교 유기나노공학과 학사
- 2019-현재. 한양대학교 유기나노공학과 석박통합과정



강동준

- 2019. 한양대학교 유기나노공학과 학사
- 2021. 한양대학교 유기나노공학과 석사
- 2024. 한양대학교 유기나노공학과 박사
- 2024-현재. 한양대학교 유기나노공학과 박사 후 연구원



한태희

- 2004. 한양대학교 섬유고분자공학과 학사
- 2006. KAIST 생명화학공학과 석사
- 2010. KAIST 신소재공학과 박사
- 2010. KIST 기능성고분자센터 Post-Doc.
- 2012. Northwestern Univ. Post-Doc.
- 2012-현재. 한양대학교 유기나노공학과 교수

1. 서론

사회 및 기술의 발전에 따라 시스템의 규모, 복잡성, 그리고 집적도 등이 고도화됨에 따라 필연적으로 시스템 내에 발생하는 열을 효과적이고 정밀하게 제어하는 열관리가 매우 중요한 이슈가 되고 있으며, 최근에는 이러한 문제를 해결하기 위한 고방열 성능의 복합소재에 대한 관심이 높아지고 있다[1]. 열관리는 시스템 내의 열의 생성, 제어 그리고 소실을 포함하는 개념이며, 특히 사용되는 소재의 전기 및 열적 특성이 매우 핵심적인 특성이기에 특정 기능성을 부여할 수 있는 소재에 대한 연구가 지속되고 있는 실정이다[2]. 따라서, 고기능성 소재의 적절한 방열을 통한 시스템의 열관리는 에너지 사용, 성능, 신뢰성 그리고 제품의 수명에까지 영향을 미친다.

방열은 시스템 내 국부적으로 열이 몰리지 않게 방출시키는 개념이며, 전자장비의 화재, 교통 및 통신망 제어시스템 마비 등으로 인한 인적·물적 손실과 이에 따른 사회복구비용을 절감할 수 있게 하는 중요한 기술이다[3]. 특히, 반도체 산업에서 전자기기 회로의 고집적화, 고출력에 따른 열발생으로 인한 문제는 제품

의 성능 및 수명 저하로 이어진다[4]. 따라서, 산업에서는 고 열전도도를 갖는 물질을 사용한 복합소재 개발에 속도를 올리고 있다[5].

방열 특성을 가진 소재는 다양한 분야에서 원하는 형상으로 활용하기 위해 주로 고분자를 매트릭스로 사용하는 복합소재로 제작된다[6]. 고분자는 분자량, 농도, 경화제, 가공 온도 설정을 통해 점도를 조절하여 다양한 구조체로 제작이 가능하여 매트릭스로 많이 사용되고 있다[7]. 하지만, 일반적인 고분자는 전기 저항이 매우 높아 부도체 특성을 갖고 있고, 열전도도가 낮기 때문에 자체적으로 열관리 소재로 활용하기에 제한이 있다[8]. 이를 보완하기 위해, 열전도성이 높은 금속, 세라믹, 탄소 필러들을 혼합하여 고분자의 높은 가공성을 유지하며, 필러의 높은 열전도도를 복합소재 내에 부여하는 방열 복합소재 연구들이 지속되고 있다[2]. 본 논고에서는 방열 성능 향상을 위해 근래에 이루어진 복합소재 개발 동향을 살펴보고, 수요가 높아지고 있는 열관리 복합소재 개발을 위한 연구 방향성을 분석해보고자 한다.

2. 본 론

2.1. 고 열전도도 필러를 활용한 방열 복합소재

복합소재에서 매트릭스로 사용되는 고분자는 일반적으로 1.0 W/mK 이하의 낮은 열전도도를 가지고 있다[4]. 따라서, 높은 열전도도를 갖는 복합소재를 제조하기 위해 고분자 매트릭스 안에 높은 열전도도를 가지는 필러를 도입하여 전체적인 열전도도를 높이는 연구가 지속 중에 있다. 높은 열전도도를 가지는 필러로는 대표적으로 금속, 세라믹 그리고 탄소 재료 등으로 구분할 수 있다. 하지만, 산업에서는 절연체를 사용하는 경우가 많기 때문에 필러의 전기적 특성에 따라 사용처가 분명하게 구별된다[9].

2.1.1. 금속 필러를 활용한 방열 복합소재

금속 필러의 경우 은, 구리, 알루미늄 그리고 액체 금속인 갈륨 등이 필러로 활용되고 있다. 특히, 금속 필러는 높은 열전도도와 함께, 세라믹, 탄소 재료에 비해 뛰어난 전기전도성을 가지고 있어 복합소재로 제조 시, 전체적인 열전도도와 전기전도도를 함께 증가시킬 수 있다는 장점이 있다.

최근 한 그룹은 기계적으로 높은 연신률을 갖고 있는 엘라스토머에 뛰어난 열전도성을 갖고 있는 액체 금속을 혼합하여

높은 신축성을 갖고 있는 고 열전도성 금속-엘라스토머 복합소재를 개발했다[10]. 이 복합소재는 매트릭스로 쓰인 엘라스토머(0.20 ± 0.01 W/mK)에 대비하여 50배 높은 열전도도(9.8 ± 0.8 W/mK)를 나타냈다. 또한, 지속적인 기계적 변형 후에도 구조 변형 없이 초기 상태를 유지할 수 있어 다양한 어플리케이션으로의 적용 가능성을 보여준다.

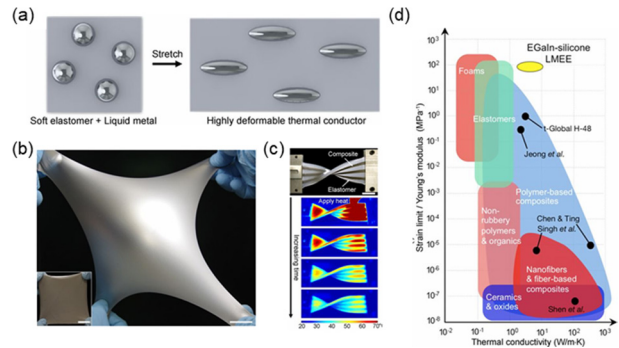


Figure 1. (a) 신축 시 액체 금속-엘라스토머 복합체 내부 액체 금속의 변형을 보여주는 계략도, (b) 높은 신축성을 가진 액체 금속-엘라스토머 복합소재를 보여주는 사진, (c) 엘라스토머와 복합소재의 고대 스트립의 가열시 IR 이미지, (d) 제작된 복합소재의 우수한 열전도도-영률 그래프[10].

2.1.2. 세라믹 필러를 활용한 방열 복합소재

세라믹 필러는 소재가 갖고있는 형상, 크기, 그리고 고충진화 등의 장점으로 복합소재의 필러로서 많은 사용이 이루어지고 있지만, 분산이 어렵다는 단점이 존재한다. 따라서 세라믹을 이용한 복합소재의 경우, 매트릭스와 세라믹 필러 간의 상호작용 조절을 통해 필러 간의 응집을 방지하여 최적의 열전도 네트워크를 구성하는 것이 중요하다[11].

특히, 질화붕소 나노시트(BNNS)는 2차원 나노구조를 갖고 있어, 높은 표면적을 갖고 있음과 동시에, 열전도도가 높은 소재로 많은 연구가 이루어지는 물질이다. Nan Jiang 그룹에서는 최근 연구에서 BNNS와 폴리스타이렌을 활용하여 만든 마이크로캡슐로 복합소재를 제조했다[12]. BNNS-폴리스타이렌 복합소재는 고온에서 압축하는 것으로 복합소재 내에서 BNNS를 균일하게 분산시켜 폴리스타이렌 고분자의 열전도도를 개선했다. BNNS 함량이 늘어날수록 복합소재의 열전도도가 증가하여, BNNS가 33.3 wt.%일 때 최대 열전도도 0.94 W/mK에 도달했으며 이는 순수 폴리스타이렌 열전도도의 626% 수치에 해당한다.

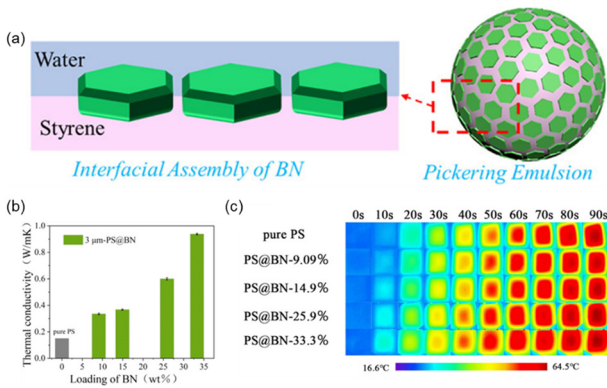


Figure 2. (a) 질화붕소 나노시트와 폴리스타이렌을 활용한 마이크로캡슐의 제작 및 제작된 마이크로캡슐의 개략도, (b) 질화붕소 나노시트 함량에 따른 복합소재의 열전도도 변화, (c) 가열 중 질화붕소 나노시트 함량에 따른 복합소재의 IR 사진[12].

2.1.3 탄소 재료를 활용한 방열 복합소재

탄소 필러는 금속이나 세라믹 필러에 비해 낮은 비중으로 산업에서 많이 이용중인 필러이다. 특히, 탄소나노튜브 및 그래핀은 열전도도 및 기계적 물성이 매우 높은 탄소나노재료이고, 중횡비가 매우 크다는 장점을 이용하여 적은 양의 필러만 추가하더라도 열전도도를 증가시킬 수 있다는 장점이 존재한다[13]. 또한 중횡비가 크다는 장점은 필러의 배향성을 조절하여 복합소재의 전체적인 열전도도를 향상시킬 수 있다는 특징이 있다[9]. 최근 그래핀의 나노시트의 크기에 따라 구조체 조립 시 변화하는 내부구조를 이용하여 효과적인 열전 네트워크를 형성한 연구가 진행됐다[14]. 이때, 복합소재 내부의 그래핀이 quasi-

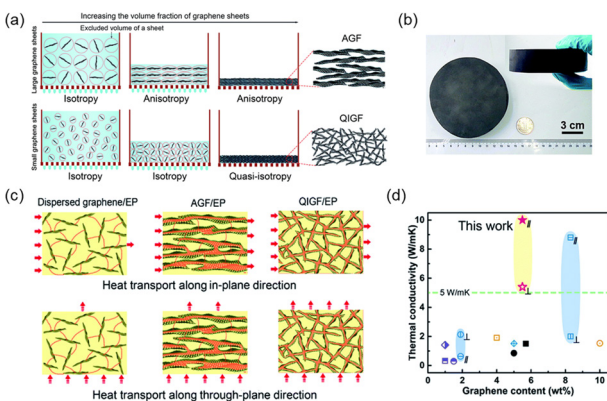


Figure 3. (a) 그래핀 나노시트의 크기에 따라 형성되는 전도성 네트워크의 개략도, (b) 제작된 그래핀 복합소재의 사진, (c) quasi-isotropy 구조를 갖는 그래핀 복합소재의 면내, 외 방향 열 전달 경로의 개략도, (d) 제작된 그래핀 복합체의 함량에 따른 열전도도 그래프[14].

isotropy 구조를 형성할 때, 복합체의 수직 방향으로 더 높은 열전도도를 보였다. 이러한 탄소 복합체는 타 물질 대비 적은 양의 혼합으로 매트릭스로 쓰인 고분자에 대비하여 면 내 방향으로 55배, 면 외 방향으로 29배 높은 열전도도 수치를 나타냈다.

2.2. 매트릭스 내 필러 네트워크 조절을 통한 복합소재의 열전도도 개선 사례

복합소재의 열전도도는 복합소재를 구성하는 매트릭스와 필러의 열전도도 등이 관여하며, 열이 잘 전달되기 위해서는 필러들이 매트릭스 내부에서 특정 네트워크를 형성할 수 있어야 한다[15]. 이러한 네트워크의 형성에는 필러의 함량, 입자의 형태, 입자의 크기, 계면 상호 작용 등이 관여한다.

일반적으로 복합소재의 열전도도는 낮은 필러 함량에서는 열전도도 증가가 상대적으로 더디게 나타나고, 필러의 함량이 특정한 임계점을 지났을 때 급격한 증가가 관찰된다[2]. 이러한 현상은 특정한 함량에서 필러들 간의 열전도성 네트워크가 형성되기 때문이다. 하지만, 필러의 함량이 높아지면 복합소재의 열전도도는 계속해서 높아지지만, 점도 상승으로 인해 가공성이 감소하는 문제점이 발생한다[4]. 따라서, 최근에는 적은 양의 필러를 이용하여 매트릭스 내부에 열전도 네트워크를 형성시키는 비용 및 공정 효율적인 개발이 지속적으로 이루어지고 있다.

2.2.1. 2차원 나노 필러를 활용한 열전 네트워크 개선 사례

평면 형태의 2차원 나노 물질은 높은 중횡비를 갖고, 표면적이 매우 넓다는 특징으로 적은 양의 첨가를 통해 매트릭스 내부의 열전도 네트워크를 형성할 수 있다는 장점이 있다. 단위 부피당 필러의 표면적이 넓어지면 열이 2차원 나노 물질이 형성한 네트워크에 따라 이동할 수 있는 통로가 많아지게 되면서 복합소재의 열전도도가 상승하게 된다[16]. 또한, 2차원 나노 물질은 면 내외 방향으로 열전도성이 각각 다르다는 특성을 이용하여 방향성을 조절해 특정 목적을 가진 어플리케이션에 응용할 수 있다는 장점이 있다[17].

Hao Bai 그룹이 최근 발표한 연구에서는 BNNS를 필러로 사용하여, 방향성을 조절해 열전도성을 조절하였다. 해당 연구에서는 무 배향, 일축 배향, 그리고 이축 배향에 따른 열전도도를 분석하였다. 일축으로 배향된 복합소재의 경우, 가장 높은 면내 방향 열전도도를 나타내었고, 이축 방향으로 배향된 복합소재의 경우, 무 배향된 복합소재에 비하여 높은 면내외 방향 열전도도를 나타냈다[18]. 본 연구는 2차원 형상을 갖는 나노

물질을 이축 배향하는 새로운 접근법을 사용하여 기존의 면외 방향의 열전도성을 높힐 수 있는 새로운 접근 방식을 보여준다.

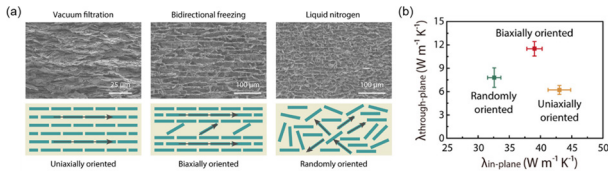


Figure 4. (a) 제작 방법에 따라 배향된 BNNs 복합소재의 SEM 이미지 및 내부 구조 개략도. (b) 배향에 따른 열전도 네트워크 차이로 인한 복합소재의 면내외 방향에 따른 열전도도 그래프[18].

BNNs는 넓은 표면적과 높은 자체 열전도도로 복합재료 필러로서 많은 가능성을 보였지만, 분산이 쉽지 않다는 문제로 인해 사용에 제약사항이 많이 존재했다. 따라서, 매트릭스 내부에 효율적이고 균일한 열분산을 위해, 최근 한 그룹은 친환경 소재인 셀룰로오스 나노크리스탈을 분산제로 사용하여 BNNs를 매트릭스 내부에 효과적으로 분산시킨 복합소재를 개발했다[19]. 복합소재 내부 BNNs는 셀룰로스 나노크리스탈과 함께 초음파분산을 통한 방법으로 분산되어 복합체 내부에 규칙적인 열 전도 경로를 형성하며 뛰어난 방열 성능을 나타냈다. 또한, BNNs의 함량이 증가함에도 높은 분산성은 유지되고, 동시에 복합소재의 열전도도가 높아졌으며, BNNs와 셀룰로스 나노크리스탈의 질량 비 25:1에서 순수 PDMS 고분자보다 26배 이상 높은 7.3 W/mK의 높은 열전도율을 달성했다. 또한 해당 복합소재는 셀룰로스 나노크리스탈로 인해 기계적 유연성 또한 증가되어 유연 소자의 열관리 응용 분야에서 활용 가능성을 나타냈다.

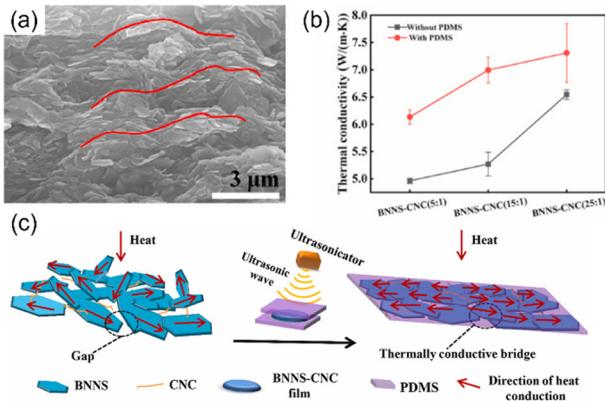


Figure 5. (a) BNNs-셀룰로스 나노크리스탈/PDMS 복합소재의 SEM 이미지. (b) BNNs 함량에 따른 복합소재의 열전도도 변화 그래프. (c) 복합소재의 제조 과정[19].

Jiang 그룹은 최근 salt를 이용한 프레임워크를 제작하여 3차원 열전도성 복합소재를 제조했다[20]. 해당 연구에서는 3차원 폼(foam) 형상으로 제작된 NaCl 프레임워크 안에 BNNs와 benzoxazine 혼합 용액을 압력을 통해 주입하여 고화시킨 뒤, 프레임워크를 녹여낸 후 탄화시켜 3차원 열전도 네트워크를 제작했다. 그 후, 폼 형태의 BNNs-carbon 열전도 네트워크에 고분자를 주입시켜 3차원 열전 네트워크를 갖는 고분자 복합소재를 개발했다. 이 복합소재는 3차원 네트워크를 형성하여 고분자 단독 사용에 대비하여 19.4배 높은 열전도도 특성을 나타냈다.

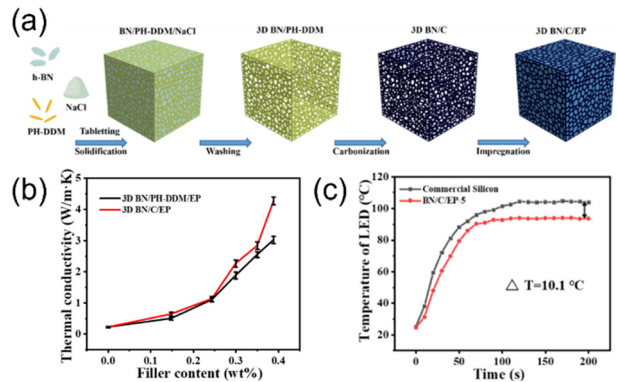


Figure 6. (a) Salt 프레임워크를 통한 복합소재 제조 과정. (b) BNNs 함량에 따른 복합소재의 열전도도 변화 그래프. (c) 제작된 복합소재와 상용 복합소재의 열전도도를 비교하기 위한 LED 칩의 온도 상승 비교 그래프[20].

2.2.2. 1차원 나노 필러를 활용한 열전 네트워크 개선 사례

1차원 필러는 탄소나노튜브, 금속 나노와이어 등이 있으며 1차원 필러의 방향에 따라 긴 열전도 경로를 구성하여 적은 양으로 복합소재 내부에서 네트워크 구조를 형성하여 열전도도를 크게 향상시킬 수 있다. Bin Shan 그룹에서는 시뮬레이션을 통해 탄소나노튜브의 배열된 정도에 따른 열전도도를 연구했다[21]. 복합소재의 열전도도는 탄소나노튜브가 정렬된 방

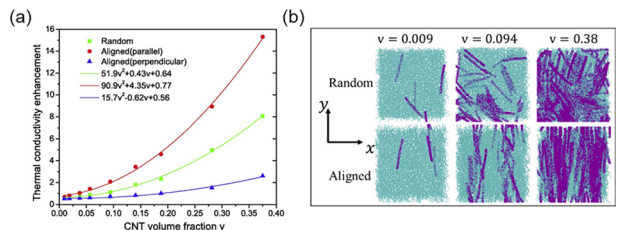


Figure 7. (a) 탄소나노튜브의 배향 정도가 다른 구조체들의 부피 분율에 따른 열전도도 변화 그래프. (b) 탄소나노튜브의 부피 분율에 따라 무작위로 배열되었을 때와 정렬되었을 때의 열전도 네트워크 형상 차이[21].

향으로 15.3 W/mK의 열전도도를 갖게 되어 무작위로 분산된 상태보다 더 높은 값을 나타냈다. 해당 연구에서는 탄소나노튜브의 정렬도에 따른 열전도도를 조사하여 복합소재의 열전도도에 대한 이해를 제공했다.

2.2.3. 0차원 필러를 활용한 열전 네트워크 개선 사례

0차원 형상을 갖고 있는 구형의 필러는 대표적으로 알루미늄이나, 질화 알루미늄 등이 사용되며 구형 필러의 경우 다른 형태에 비해서 중형비가 작지만 복합소재의 점도를 크게 높이지 않는다는 장점이 있다. 불규칙한 필러의 경우, 모서리에서 매트릭스와 많은 마찰이 발생하지만, 이와 다르게 0차원 필러는 구형의 모양과 매끄러운 표면으로 인해 매트릭스와 마찰을 줄여 복합소재의 점도를 크게 높이지 않고 가공 성능을 향상시킬 수 있다. 또한 알루미늄 필러의 경우 불규칙한 모양일 때보다 구형인 경우에 복합소재의 열전도도가 더 높게 나타나는데, 이는 구형이 매끄러운 표면과 낮은 비표면적을 가져 포논 산란을 최소화하여 열전도도가 높게 나타나기 때문이다[22]. Jinhong 그룹에서는 서로 다른 직경의 입자로 채워진 구형 알루미늄을 활용한 고분자 복합소재를 제조했다. 본 구조체는 알루미늄 폼 내부의 알루미늄 입자를 혼합한 뒤, 고분자 용액에 침지하여 효율적인 3차원 열전도 네트워크를 형성하였으며, 복합소재의 열전도도는 4.1 W/mK로 사용된 고분자의 열전도도보다 20배 이상 증가했다[23]. 또한 다양한 크기의 알루미늄이 효과적으로 복합소재 내부 공간을 차지하는 것으로, 대부분의 에폭시 기반 복합소재보다 열팽창 계수가 낮아 해당 전력이 다양한 반도체 패키징 응용 분야에 사용될 수 있는 가능성을 나타냈다.

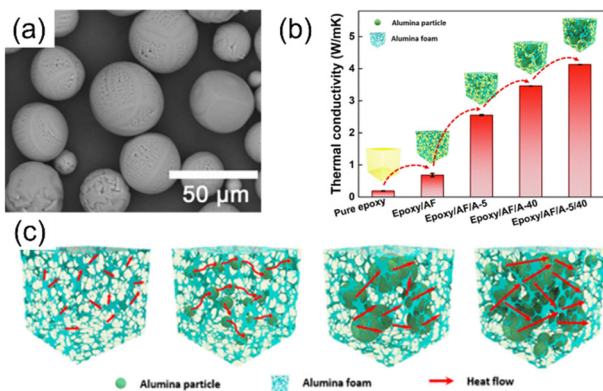


Figure 8. (a) 알루미늄 입자의 SEM 이미지 (b) 다양한 크기의 알루미늄 필러 사용을 통한 복합소재의 열전도도 증가, (c) 복합소재 내에서 알루미늄 필러 열전도 경로 형성 개략도[23].

2.2.4. 이중 필러를 활용한 열전 네트워크 개선 사례

필러들의 계열, 형상, 표면 특성은 매우 다양하며 각각의 필러들은 복합소재에서 특성이 모두 다르게 나타난다. 이중 이상의 필러들을 같이 사용하는 경우, 각각의 필러가 가지는 특성을 선택적으로 사용할 수 있다는 장점이 존재한다. 특정 농도에서 2차원 필러는 고분자 매트릭스 안에서 평면 방향으로 정렬되려 하는 특징이 있는데, 0차원 또는 1차원 필러와 혼합하는 경우 2차원 필러의 수직 방향으로 열전도 네트워크를 형성하여 면내 방향뿐만 아니라, 면 외 방향으로도 열전도도를 높일 수 있다는 장점이 있다[24].

Wang 그룹은 에폭시, 질화 알루미늄, BNNS를 사용하여 고분자 매트릭스의 낮은 열전도도를 보완한 반도체 패키징 물질을 개발했다. 0차원 형상의 질화 알루미늄과 2차원 형상의 BNNS를 매트릭스 무게 대비 총 50 wt.%, 그리고 질화 알루미늄과 BNNS의 비율을 14:1로 하였을 때 복합소재의 점도를 크게 증가시키지 않고 효과적인 열 전달 경로를 형성하는 것을 확인했다[25]. 또한 매트릭스 표면을 개질하여 매트릭스와 필러 계면 간 상호작용을 증가시켜 열전도도를 높였다. 복합소재는 열전도도가 3 W/mK로 기존 매트릭스의 열전도도(0.22 W/mK)에 비하여 약 10배 이상 증가했으며, 상용화되고 있던 반도체 패키징 물질의 열전도도(1 W/mK)보다 더 높은 결과를 나타냈다. 이는 BNNS 단독으로 사용했을 때와 비교하여, BNNS 사이 경계에 0차원 물질인 BNNS가 효과적으로 네트워크를 형성했기 때문이다.

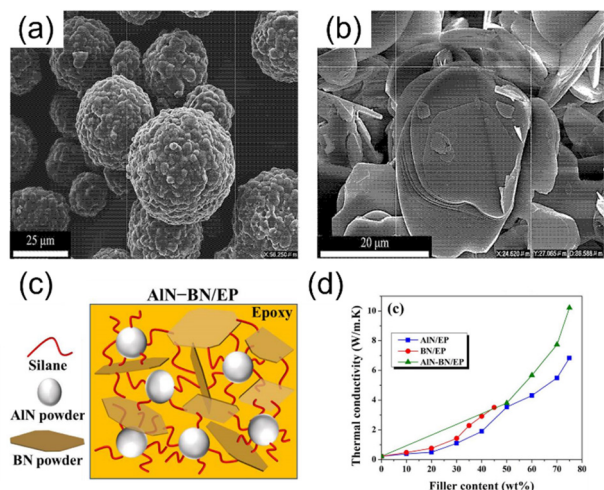


Figure 9. (a) 질화 알루미늄과 (b) BNNS의 SEM 이미지, (c) 매트릭스 내부에서 질화 알루미늄과 BNNS가 형성하는 열전 네트워크 개략도, (d) 필러의 함량에 따른 복합소재의 열전도도 상승 그래프[25].

Lifei Chen 그룹은 알루미늄 입자와 그래핀 시트를 사용한 서멀 페이스트를 제작했다[26]. 그래핀은 평면 방향으로 2,000 ~ 5,200 W/mK의 매우 높은 열전도도 값을 갖고 있기 때문에, 열전도성 필러로서 매우 우수한 특성을 갖고 있다. 기존 서멀 페이스트는 실리콘 입자를 사용하여 제작하지만, 본 연구에서 전기적 퍼콜레이션이 발생하지 않도록, 그래핀을 소량 첨가하는 것으로 3차원 열전달 네트워크를 형성하여 기존 서멀 페이스트에 비해 3.45 W/mK라는 높은 열전도도를 달성했다.

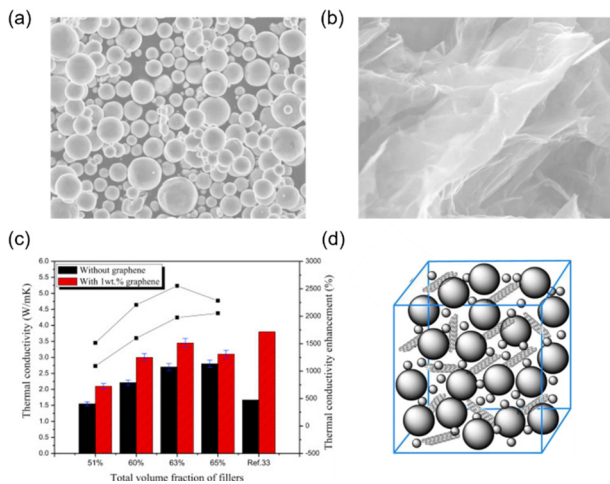


Figure 10. 서멀 페이스트 제작에 사용된 (a) 알루미늄 입자와 (b) 그래핀의 SEM 이미지. (c) 서로 다른 필러 함량에서 그래핀이 포함된 서멀 페이스트와 포함되지 않은 서멀 페이스트의 열전도도 비교 (d) 페이스트 내 알루미늄과 그래핀의 필러 분포에 대한 개략도[26].

3. 결 론

전자 기기의 소형화, 전자 소자의 고집적화에 따라 더욱 많은 열이 발생하고 있으며, 이를 해결하기 위해 가공성이 높은 고분자와 열전도도가 높은 필러를 활용하여 제작한 복합소재의 수요가 높아지고 있다. 하지만, 복합소재의 가공성 및 경제성 등을 고려하여 높은 열전도도를 갖는 필러의 양을 무조건 늘릴 수 없기 때문에, 최근 연구는 복합소재 내부에 적은 양으로 효율적인 열전달 경로를 형성하는 연구가 주를 이루고 있다. 특히, 복합소재의 열전도도는 필러의 형상, 크기, 및 자체의 열전도도와 함께, 매트릭스로 사용되는 고분자와의 계면 저항, 분산성 그리고 필러 혼합으로 인한 점도 조절 등 다양한 요소에 영향을 받기 때문에 재료 공학뿐만 아니라, 금속 공학, 유체 역학 등을 포함한 다학제적인 연구를 통해 현재의 복합소재를 바탕으로 새로운 개념의 고효율 방열소재를 위한 연구가 진행되어야 할 것이다.

참고문헌

1. Maqbool, M., Aftab, W., Bashir, A., Usman, A., Guo, H., and Bai, S. Engineering of polymer-based materials for thermal management solutions. *Composites Communications*, Vol. 29, pp. 101048, 2022.
2. Chen, H., Ginzburg, V. V., Yang, J., Yang, Y., Liu, W., Huang, Y., ... & Chen, B. Thermal conductivity of polymer-based composites: Fundamentals and applications. *Progress in Polymer Science*, Vol. 59, pp. 41–85, 2016.
3. Ying, J., Tan, X., Lv, L., Wang, X., Gao, J., Yan, Q., ... & Dai, W. Tailoring highly ordered graphene framework in epoxy for high-performance polymer-based heat dissipation plates. *ACS nano*, Vol. 15, No. 8, pp. 12922–12934, 2021.
4. Wen, Y., Chen, C., Ye, Y., Xue, Z., Liu, H., Zhou, X., ... & Mai, Y. W. Advances on thermally conductive epoxy-based composites as electronic packaging underfill materials—A review. *Advanced Materials*, Vol. 34, No. 52, p. 2201023, 2022.
5. Moore, A. L., & Shi, L. Emerging challenges and materials for thermal management of electronics. *Materials Today*, Vol. 17 No. 4, pp. 163–174, 2014.
6. Hu, Y., Du, G., & Chen, N. A novel approach for Al₂O₃/epoxy composites with high strength and thermal conductivity. *Composites Science and Technology*, Vol. 124, pp. 36–43, 2016.
7. Jin, F. L., Li, X., & Park, S. J. Synthesis and application of epoxy resins: A review. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, Vol. 29, pp. 1–11, 2015.
8. Han, Z., & Fina, A. Thermal conductivity of carbon nanotubes and their polymer nanocomposites: A review. *Progress in Polymer Science*, Vol. 36, No. 7, pp. 914–944, 2011.
9. Hong, J. P., Yoon, S. W., Hwang, T., Oh, J. S., Hong, S. C., Lee, Y., & Nam, J. D. High thermal conductivity epoxy composites with bimodal distribution of aluminum nitride and boron nitride fillers. *Thermochimica Acta*, Vol. 537, pp. 70–75, 2012.
10. Bartlett, M. D., Kazem, N., Powell-Palm, M. J., Huang,

- X., Sun, W., Malen, J. A., & Majidi, C. High thermal conductivity in soft elastomers with elongated liquid metal inclusions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, Vol. 114, No. 9, pp. 2143–2148, 2017.
11. Xia, Z. P., & Li, Z. Q. Structural evolution of hexagonal BN and cubic BN during ball milling. *Journal of alloys and compounds*, Vol. 436, No. 1–2, pp. 170–173, 2007.
 12. Wang, T., Wang, M., Fu, L., Duan, Z., Chen, Y., Hou, X., ... & Yu, J. Enhanced thermal conductivity of polyimide composites with boron nitride nanosheets. *Scientific reports*, Vol. 8, No. 1, p. 1557, 2018.
 13. Tu, H., & Ye, L. Thermal conductive PS/graphite composites. *Polymers for advanced technologies*, Vol. 20, No.1, pp. 21–27, 2009.
 14. Hou, H., Dai, W., Yan, Q., Lv, L., Alam, F. E., Yang, M., ... & Lin, C. T. Graphene size-dependent modulation of graphene frameworks contributing to the superior thermal conductivity of epoxy composites. *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 6, No. 25, pp. 12091–12097, 2018.
 15. Zhou, H., Zhang, S., & Yang, M. The effect of heat-transfer passages on the effective thermal conductivity of high filler loading composite materials. *Composites Science and Technology*, Vol. 67, No. 6, pp. 1035–1040, 2007.
 16. Hill, R. F., & Supancic, P. H. Thermal conductivity of platelet-filled polymer composites. *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 85, No. 4, pp. 851–857, 2002.
 17. Gao, T., Yang, Z., Chen, C., Li, Y., Fu, K., Dai, J., ... & Hu, L. Three-dimensional printed thermal regulation textiles. *ACS nano*, Vol. 11, No. 11, pp. 11513–11520, 2017.
 18. Zhao, N., Li, J., Wang, W., Gao, W., & Bai, H. Isotropically ultrahigh thermal conductive polymer composites by assembling anisotropic boron nitride nanosheets into a biaxially oriented network. *ACS nano*, Vol. 16, No. 11, pp. 18959–18967, 2022.
 19. Zhang, X., Zhang, H., Li, D., Xu, H., Huang, Y., Liu, Y., ... & Sun, J. Highly thermally conductive and electrically insulating polydimethylsiloxane composites prepared by ultrasonic-assisted forced infiltration for thermal management applications. *Composites Part B: Engineering*, Vol. 224, p. 109207, 2021.
 20. Jiang, J., Sun, H., ShangGuan, J., Fu, F., Liu, X., & Zhao, S. Facile strategy for constructing highly thermally conductive epoxy composites based on a salt template-assisted 3D carbonization nanohybrid network. *ACS Applied Materials & Interfaces*, Vol. 14, No. 38, pp. 43815–43824, 2022.
 21. Zhou, B., Luo, W., Yang, J., Duan, X., Wen, Y., Zhou, H., ... & Shan, B. Thermal conductivity of aligned CNT/polymer composites using mesoscopic simulation. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 90, pp. 410–416, 2016.
 22. Yeo, H., Islam, A. M., You, N. H., Ahn, S., Goh, M., Hahn, J. R., & Jang, S. G. Characteristic correlation between liquid crystalline epoxy and alumina filler on thermal conducting properties. *Composites Science and Technology*, Vol. 141, pp. 99–105, 2017.
 23. Wang, H., Li, L., Wei, X., Hou, X., Li, M., Wu, X., ... & Yu, J. Combining alumina particles with three-dimensional alumina foam for high thermally conductive epoxy composites. *ACS Applied Polymer Materials*, Vol. 3, No. 1, pp. 216–225, 2020.
 24. Teng, C. C., Ma, C. C. M., Chiou, K. C., & Lee, T. M. Synergetic effect of thermal conductive properties of epoxy composites containing functionalized multi-walled carbon nanotubes and aluminum nitride. *Composites Part B: Engineering*, Vol. 43, No. 2, pp. 265–271, 2012.
 25. Lee Sanchez, W. A., Li, J. W., Chiu, H. T., Cheng, C. C., Chiou, K. C., Lee, T. M., & Chiu, C. W. Highly thermally conductive epoxy composites with AlN/BN hybrid filler as underfill encapsulation material for electronic packaging. *Polymers*, Vol. 14, No. 14, p. 2950, 2022.
 26. Yu, W., Xie, H., Yin, L., Zhao, J., Xia, L., & Chen, L. Exceptionally high thermal conductivity of thermal grease: Synergistic effects of graphene and alumina. *International Journal of Thermal Sciences*, Vol. 91, pp. 76–82, 2015.