

질화알루미늄의 소결(I) : 상압소결

최상욱 · 이희철* · 이 전 · 이임창

인하대학교 무기재료공학과

*인하대학교 화학공학과

(1991년 2월 28일 접수)

Sintering of Aluminum Nitride (I): Pressureless Sintering

Sang-Wook Choi, Hee-Chul Lee*, Jhun Rhee and Im-Chang Lee

Dept. of Ceramic Eng., Inha Univ.

*Dept. of Chemical Eng., Inha Univ.

(Received February 28, 1991)

요 약

질화알루미늄은 우수한 열전도성과 전기절연성을 가지고 있으나, 소결이 어려우며, 공기 중의 수분과 반응하여 가수분해되는 결점을 가지고 있다.

본 연구에서는 질화알루미늄의 여러가지 소결조제 중 우수한 특성을 나타낸 CaCO_3 를 선택하였으며, 합성한 AlN과 시약급 AlN에 소결조제를 첨가하여 소결온도 및 소결시간을 변화시키면서 상압소결하고, 이로써 얻은 여러 시험편의 상대밀도, 쥐입강도 및 미소경도 등을 측정하여 그 결과를 비교하였다.

그 결과 CaCO_3 1.0 wt% (CaO 0.56 wt%)를 첨가한 경우 1800°C 에서 20분간 소결하였을 때 양호한 소결성을 나타내었는데, 이때 합성한 AlN과 시약급 AlN 소결체의 상대밀도는 각각 95.9%와 95.2%이었고, 미소경도는 10.3 GPa와 9.8 GPa이었다. 또한 합성한 AlN를 1800°C 에서 유지시간을 10분에서 60분까지 증가시킬 때 따라 상대밀도 값이 91.9%에서 96.5%까지 증가하였다.

AlN내에 함유된 금속 및 산소 등의 불순물은 저온(1600°C) 소결시 소결성에 크게 영향을 미치는 것으로 생각된다.

ABSTRACT

Aluminum nitride (AlN) has excellent properties such as high thermal conductivity and electrical resistivity, whereas it has some disadvantages such as low sinterability and tendency to be hydrolyzed by moisture at room temperature.

In the present work, the relative density, modulus of rupture and microhardness were examined for pressureless-sintered AlN (synthetic and commercial) bodies which were prepared under the conditions of various sintering temperatures, holding times and additions of CaCO_3 , which showed the best effect on sinterability among the various sintering aids.

As a result, the AlN bodies with 1.0 wt% CaCO_3 (0.56 wt% CaO) which were sintered at 1800°C for 20 min showed good densification. In this case, the relative densities were 95.9% and 95.2%, and microhardnesses were 10.3 GPa and 9.8 GPa for synthetic and commercial AlN respectively. And as the holding time at 1800°C was increased from 10 min to 60 min, the relative density was increased from 91.9% to 96.5%.

It was considered that impurities of metals and oxygen promoted the densification of AlN at low temperature (1600°C).

1. 서 론

질화알루미늄은 알루미늄의 5배가 넘는 우수한 열전도성과 전기절연성을 가지므로 정밀전자용 기기내에 방

열기판이나 IC, LSI 기판 및 package 등에 이용될 수 있는 재료로 알려져 있다¹⁻⁶⁾.

그러나 질화알루미늄은 상온에서 공기 중의 수분과 반응하여 $\text{Al}(\text{OH})_3$ 로 가수분해되고, 고온에서 분해되는

특성으로 인해 소결이 어렵다는 결점을 가지고 있다^{7,8)}. 이러한 결점을 보완하기 위하여 일정량의 소결조제를 첨가, 치밀질의 소결체를 만들고 있는데, 이러한 소결조제로는 알칼리토류 금속 산화물이나 희토류 금속 산화물 등이 보고되고 있다⁹⁾.

비교적 체계적인 연구를 행한 Komeya 등⁹⁾에 의하면 질화알루미늄 분말을 1800°C에서 30분 동안 상압소결할 때 소결조제로서 소결효과에 가장 좋은 영향을 준 것은 CaCO₃와 Y₂O₃ 등이라고 하였으며, 이들 소결효과의 평가는 상대밀도만으로 한 결과이다. 이때 사용한 질화알루미늄은 불순물이 거의 없는 시약급이었으며, 비교적 좁은 범위의 소결온도와 소결시간에서 실험하였다.

본 연구에서는 금속 알루미늄으로부터 직접 질화반응시켜 만든 질화알루미늄 즉, 산소와 금속 등의 불순물이 다소 함유된 것을 상압소결시킴에 있어서 적당한 소결조제를 선택하고자 하였고, 소결온도(1600~1900°C) 및 소결시간(10~60분)을 좀더 넓은 범위로 변화시켰으며, 소결효과의 특성도 상대밀도 뿐만아니라 꺾임강도 및 미소경도 등의 기계적 특성을 측정하여 종합적으로 평가하고자 하였다. 한편 비교적 순수한 시약급 질화알루미늄에 대해서도 위와 같은 방법으로 소결하여 소결체의 물성을 서로 비교평가하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. AlN 원료

사용한 원료는 본 연구실에서 합성한 AlN 분말과 시약급 AlN 분말(순도 98% 이상, Aldrich사)을 사용하였다.

합성한 AlN 분말은 순도가 98% 이상인 알루미늄 분말(일본 Kanto사)을 1150°C 질소분위기에서 직접 질화반응시켜 합성한 것이다.

이 두 가지 원료분말의 금속 불순물을 ICP(Jobin Yvon 38+)로 분석하고, 질소와 산소의 함량을 NO분석기(Leco TC436)로 분석하여 그 결과를 Table 1에 나타내었다. 또한 이들 두 분말의 입자크기 분포를 입도분석기(Micromeritics Sedi Graph 5000ET)로 분석하여

Table 1. Elements Content in AlN Powders

AlN	Si	Fe	Cu	Mg	Ca	Mn	N	O
Synthetic	0.10	0.260	0.009	0.0003	0.0056	0.0010	34.4	3.135
Commercial	0.14	0.013	0.004	0.0003	0.0052	0.0009	34.2	0.901

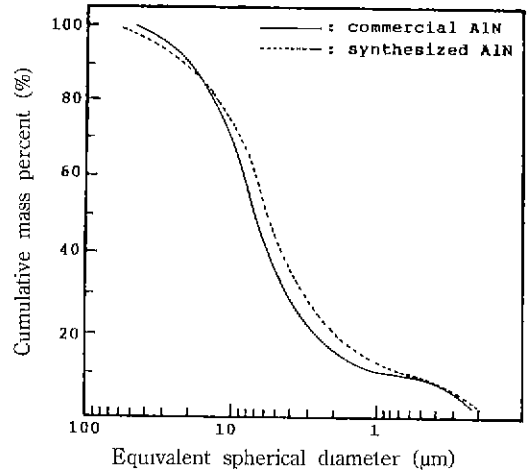


Fig. 1. Particle size distribution of AlN powders.

그 누적분포를 Fig.1에 나타내었고, 이들 분말의 평균 비표면적은 시약급 AlN이 3.85 m²/g, 합성한 AlN이 4.02 m²/g이었다.

2.2. 시편제조 및 소결

AlN의 소결조제에 대한 소결효과를 알아보기 위하여 9종류의 소결조제, 즉 CaCO₃, SrCO₃, BaCO₃, Y₂O₃, La₂O₃, NiCO₃, Al₂O₃, Nd₂O₃를 택하여 시약급 AlN에 각각 1.0 wt%씩 첨가하여 알루미늄이나 유발에서 1시간 동안 진식 혼합하였다. 이 원료분말을 3.5g 취하여 40 MPa의 압력으로 예비 성형하고 다시 80 MPa의 압력으로 정수압 성형을 하였다. 이 시편을 흑연도가니에 넣고, AlN과 BN 분말을 3 : 1로 섞은 것에 묻은 다음 상압소결로의 중심 위치에 넣고 질소가스를 흘려주면서 1800°C에서 20분 동안 소결하였다. 그리고 소결조제 중 소결효과가 가장 좋은 CaCO₃을 택하여 두 가지 AlN 분말에 각각 0 wt%, 1.0 wt% 및 4.0 wt%(CaO 0 wt%, 0.56 wt% 및 2.24 wt%)씩 첨가하고 위의 방법으로 1600°C~1900°C의 범위에서 온도 100°C 간격을 두고 변화시켜 가며 질소분위기로 10~60분간 상압소결하였다.

2.3. 물성측정

2.3.1. 상대밀도

각 시편은 석유에 함침시켜 Archimedes법으로 부피 비중과 참비중을 측정하여 상대밀도를 구하였다. 이때 참비중을 측정하기 위하여 시편을 분쇄하여 35 μm 이하 크기로 하였다.

2.3.2. 미소경도(Microhardness)

각 시편의 표면을 0.3 μm 크기의 알루미나 분말로 정면연마하여 Vickers 미소경도기(Tukon사)로 미소경도를 측정하였다. 이때 하중은 1 kg이고, 부하속도는 1 mm/min이었다.

2.3.3. 파괴인성(Fracture toughness)

미소경도시험시 시편 표면에 생긴 균열의 길이를 측정하여 다음과 같이 파괴인성을 계산하였다.

$$T = 0.0726 \times \frac{P}{(a)^{3/2}}$$

여기서 T : 파괴인성(MPa·m^{1/2})

P : 하중(N)

a : 균열길이의 1/2(m)

2.3.4. 길이수축율

상압소결한 시편의 지름을 소결전의 지름과 비교하여 길이수축율을 계산하였다.

2.3.5. 꺾임강도

꺾임강도는 시험편을 다이아몬드 절단기로 15 mm×4 mm×2 mm 크기로 잘라 지지점간 거리를 12 mm로 하고, 만능시험기로 0.2 mm/min의 부하속도를 주어 파괴될 때까지의 하중을 측정하여 구하였다.

2.3.6. 주사전자현미경 관찰

각 시편을 끊는 인산(80%)속에서 약 20초간 부식시킨 다음 주사전자현미경(Hitachi X650)을 사용하여 각 시편의 조직을 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 소결조제의 선택

여러가지 소결조제 중 소결효과가 가장 좋은 것을 1종 선택하기 위하여 시약급의 AlN 원료분말(3.5g)에 대하여 9종류의 소결조제, 즉 CaCO₃, SrCO₃, BaCO₃, Y₂O₃, La₂O₃, NiCO₃, Al₂O₃, CeO₂, Nd₂O₃를 각각 1.0 wt%씩 첨가하고, 성형한 다음 1800℃에서 20분간 상압소결하였으며, 이들 시험편에 대하여 상대밀도, 미소경도 및 파괴인성을 측정하여 그 결과를 Table 2에 나타내었다.

CaCO₃를 첨가한 것이 상대밀도가 95.21%로 치밀화가 가장 잘 되었고, 미소경도와 파괴인성도 9.8 GPa과 2.33 MPa·m^{1/2}로 우수한 편이었다. CaCO₃는 고온에서 AlN의 표면에 존재하는 미량의 알루미나와 반응하여 알루미늄 산화물을 형성하는 것으로 알려져 있는데⁹⁾ 이것이 고온에서 액상으로 존재하여 AlN을 치밀화시키는 것으로 생각된다.

이외에도 Y₂O₃, SrCO₃, CeO₂ 및 Nd₂O₃ 등을 첨가한

Table 2. Properties of Pressureless Sintered Commercial AlN bodies with Various Additives (at 1800 °C for 20 min).

Additives (1.0 wt%)	Relative density (%)	Hardness (GPa)	Toughness MPa·m ^{1/2}
CaCO ₃	95.21	9.8	2.33
SrCO ₃	90.61	8.1	3.01
BaCO ₃	89.20	8.5	2.90
Y ₂ O ₃	91.20	9.9	2.32
La ₂ O ₃	89.79	8.2	2.94
NiCO ₃	87.01	7.2	3.78
Al ₂ O ₃	82.15	3.1	—
CeO ₂	93.24	10.2	2.14
Nd ₂ O ₃	91.21	9.7	2.98
without Additive	77.72	—	—

것은 비교적 양호한 소결효과를 나타내었지만, Al₂O₃는 가장 좋지 못한 효과를 나타내었다. 이는 고온에서 Al₂O₃가 AlN과 반응하여 AlN polytypes를 형성하기 때문으로 생각된다.

본 연구에서는 AlN의 소결조제로서 소결효과가 가장 좋고, 구하기가 용이한 CaCO₃를 선택하여 여러 조건에서 상압소결한 다음 그 최적의 소결조건을 찾고자 하였다.

3.2. 소결온도에 의한 영향

소결온도에 의한 영향을 알아보기 위하여 AlN은 본 실험실에서 합성한 것과 시약급을 사용하여 별도로 실험하였다.

즉 합성한 AlN에 CaCO₃를 각각 0 wt%, 1.0 wt% 및 4.0 wt%씩 첨가하여 1600~1900℃의 온도범위에서 100℃ 간격으로 20분간 상압소결한 시험편의 상대밀도를 측정하였으며, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다

CaCO₃를 첨가하지 않고 AlN 단독으로만 소결한 경우 소결온도를 상승시킴에 따라 상대밀도가 69.3%에서 87.2%까지 거의 직선적으로 증가하였지만, 비교적 낮은 값을 나타내어 치밀화가 좋지 못하였다. 그러나 CaCO₃를 1.0 wt% 첨가한 경우에는 소결온도를 상승시킴에 따라 상대밀도가 83.1%에서 96.4%까지 거의 직선적으로 증가하였고, CaCO₃를 4.0 wt% 첨가한 경우에도 소결온도를 상승시킴에 따라 상대밀도가 87.9%에서 97.8%까지 거의 직선적으로 증가하였다.

한편 시약급의 AlN에 CaCO₃를 각각 0 wt%, 1.0 wt% 및 4.0 wt%씩 첨가하여 1600~1900℃의 온도범위에서 100℃ 간격으로 20분간 상압소결한 시험편의 상대밀도를 측정하고, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다.

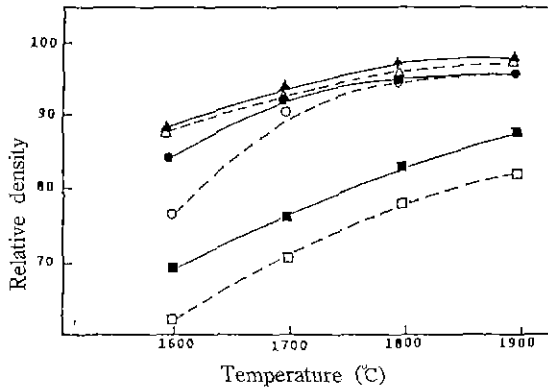


Fig. 2. Changes in relative densities of pressureless-sintered AlN bodies with the addition of CaCO₃ as a function of sintering temperature (for 20 min in N₂ gas).
 ■—■: pure AlN
 ●—○: 1.0 wt% CaCO₃ addition
 ▲—△: 4.0 wt% CaCO₃ addition
 - - - : synthetic AlN
 — : commercial AlN

CaCO₃를 첨가하지 않고 AlN만으로 소결한 경우에는 소결온도를 상승시킴에 따라 상대밀도를 62.3%에서 81.7%까지 거의 직선적으로 증가하였지만, 비교적 낮은 값을 나타내어 치밀화가 좋지 못하였다.

1.0 wt%의 CaCO₃를 첨가한 경우 1600°C에서는 치밀화가 좋지 못하였지만(상대밀도 약 77%), 소결온도가 상승함에 따라 빠르게 치밀화되어 1700°C에서는 90.4%의 상대밀도를 보였으며, 그 이후 상대밀도는 1800°C에서 95.2%, 1900°C에서는 95.8%로 증가하였다. 이와 같이 1700°C에서 급격히 치밀화가 이루어지기 시작한 것은 이 온도에서 치밀화의 원인이 되는 액상이 많이 생성되어 입자의 공극을 메우기 때문인 것으로 생각된다.

4.0 wt%의 CaCO₃를 첨가할 경우에는 소결온도를 1600°C에서 1900°C로 상승시킴에 따라 상대밀도값은 84.8%에서 96.9%로 거의 직선적으로 증가하였다.

합성한 AlN과 시약급 AlN의 소결 후의 길이 수축율을 Fig. 3에 나타내었는데 두 경우 모두 소결조제를 첨가하지 않은 경우는 온도에 따른 길이 수축율의 차이가 작은 편이었고, 소결조제를 첨가한 경우는 온도에 따른 길이 수축율의 차이가 클 뿐만 아니라 소결조제의 양에 따라 서로 길이 수축율의 차이가 크게 나타났다. 이것은 소결조제가 고온에서 액상을 이루어 소결에 관여하기 때문인 것으로 판단된다.

합성한 AlN 소결체의 소결온도에 대한 미소경도측정

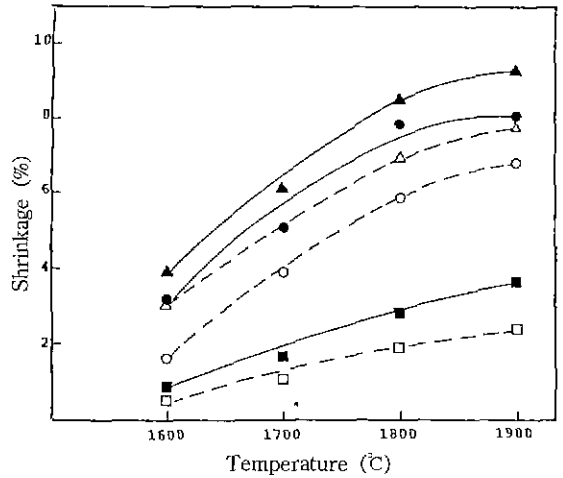


Fig. 3. Changes in linear shrinkage of pressureless-sintered AlN bodies with the addition of CaCO₃ as a function of sintering temperature (for 20 min in N₂ gas).
 ■—■: pure AlN
 ●—○: 1.0 wt% CaCO₃ addition
 ▲—△: 3.0 wt% CaCO₃ addition
 - - - : synthetic AlN
 — : commercial AlN

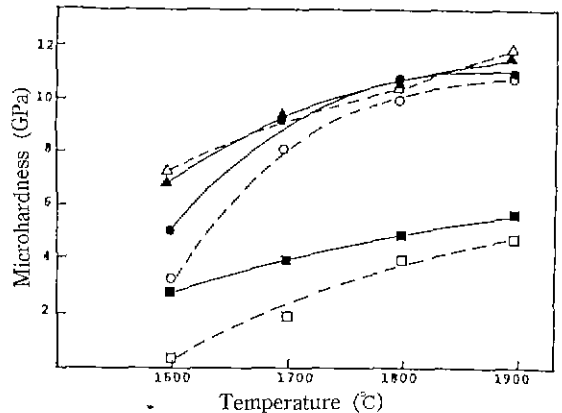


Fig. 4. Changes in Vicker's microhardness of pressureless-sintered AlN bodies with the addition of CaCO₃ as a function of sintering temperature (for 20 min in N₂ gas).
 ■—■: pure AlN
 ●—○: 1.0 wt% CaCO₃ addition
 ▲—△: 3.0 wt% CaCO₃ addition
 - - - : synthetic AlN
 — : commercial AlN

결과를 Fig. 4에 나타내었는데 이것은 Fig. 2의 이 시험편들의 상대밀도측정 결과와 매우 비슷한 경향을 나타

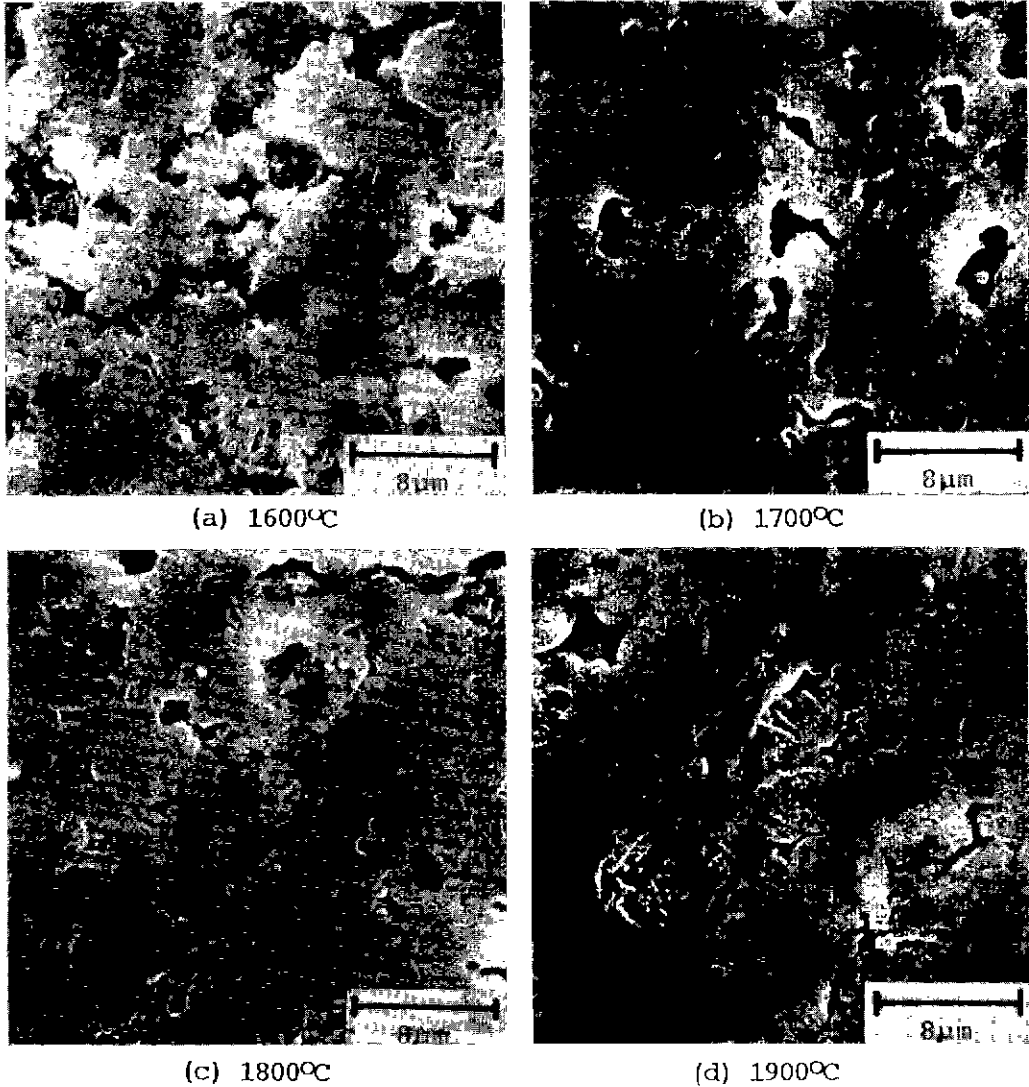


Fig. 5. Scanning electron micrographs of the etched surface of pressureless-sintered synthetic AlN bodies with 1.0 wt% CaCO_3 (for 20 min. in N_2 gas).

내었다. 1.0 wt%의 CaCO_3 를 첨가한 경우 1600°C에서 1900°C로 소결온도를 상승시킴에 따라 미소경도가 5.7 GPa에서 11.0 GPa로 약 2배 증가하였고, 4.0 wt%의 CaCO_3 를 첨가하였을 경우에는 1600°C에서 1900°C로 소결온도를 상승시킴에 따라 6.9 GPa에서 11.7 GPa로 약 1.7배 증가하였다. 반면 소결조제를 첨가하지 않은 경우에는 1900°C에서도 5.6 GPa 정도로 4.0 wt% CaCO_3 를 첨가한 것의 48%에 불과하였다.

한편 시약급 AlN 소결체의 경우 소결온도에 대한 미소경도 측정결과를 Fig. 4에 나타내었다. 이것도 역시 Fig.

2의 이 시험편들의 상대밀도 측정결과와 매우 비슷한 경향을 나타내었으며, CaCO_3 4.0 wt%를 첨가하고 1900°C에서 소결한 시험편이 11.4 GPa로 가장 큰 미소경도를 나타내었다.

합성한 AlN에 CaCO_3 를 1.0 wt% 첨가하여 상압소결한 시험편의 표면을 경면연마하고 굽는 인산(80%)에서 약 20초간 부식시킨 후 주사전자현미경으로 관찰한 결과를 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 2의 합성한 AlN의 상대밀도 결과에서 알 수 있듯이 1600°C 소결시험편의 경우 소결성이 좋지 못하고 기공이 많은 것을 확인하였다. 그러나

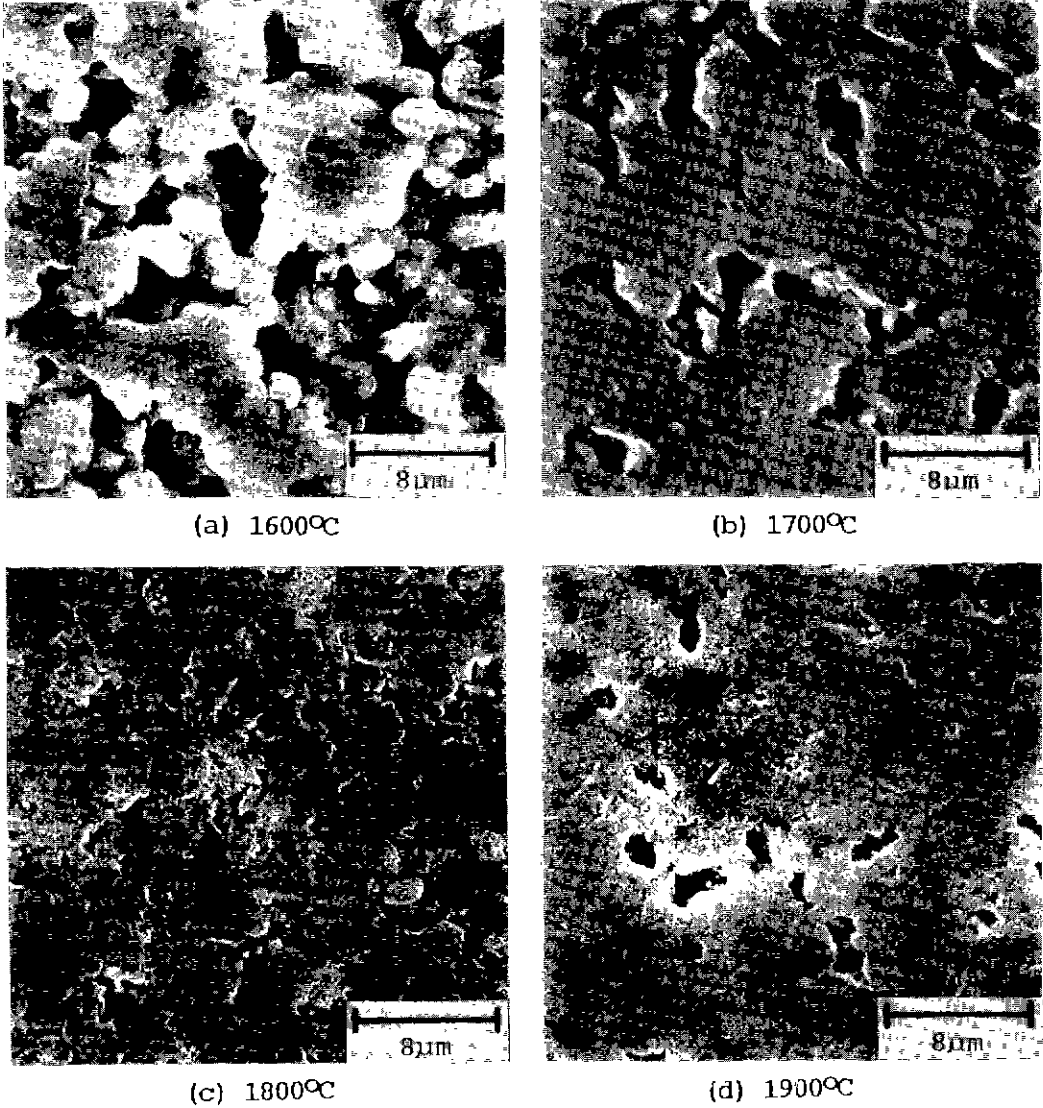


Fig. 6. Scanning electron micrographs of the etched surface of pressureless-sintered commercial AlN bodies with 1.0 wt% CaCO₃ (for 20 min. in N₂ gas).

소결온도가 증가할수록 기공이 고립화 되면서 작아져서 치밀화가 증진되고 있음을 알 수 있었다.

시약급 AlN에 CaCO₃를 1.0 wt% 첨가하여 상압소결한 시험편을 같은 방법으로 부식시켜 관찰한 주자전자현미경 사진을 Fig. 6에 나타내었다. 역시 소결온도가 증가할수록 기공의 크기가 작아지고 있는데 Fig. 2의 상대밀도의 결과를 뒷받침하고 있으며, 1600°C 소결체의 경우 합성한 AlN보다 훨씬 다공질임을 보여주고 있다.

합성한 AlN에 CaCO₃를 1.0 wt% 첨가하여 1600~1900

°C로 상압소결한 시험편의 쥐임강도시험 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 앞서 상대밀도의 결과(Fig. 2)에서 예측할 수 있듯이 소결온도가 올라갈수록 치밀질의 소결체가 되었으며, 쥐임강도값은 1600°C에서는 170 MPa이었던 것이 1900°C에서는 350 MPa로 크게 증가되었다.

3.3. 소결시간의 영향

합성한 AlN에 1.0 wt%의 CaCO₃를 첨가하고, 소결시간을 10~60분으로 변화시켜 가며, 1800°C, 질소분위기

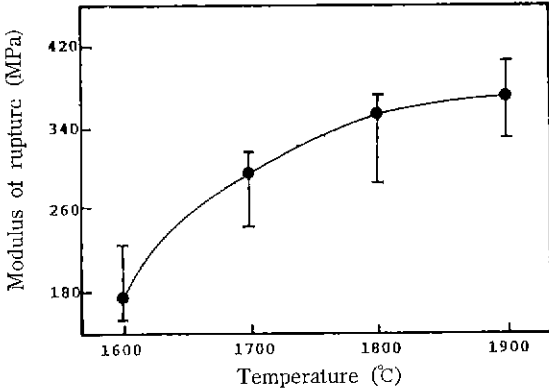


Fig. 7. Modulus of rupture of pressureless-sintered synthetic AlN bodies with the addition of 1.0 wt% CaCO₃ as a function of sintering temperature (20 MPa for 20 min in N₂ gas).

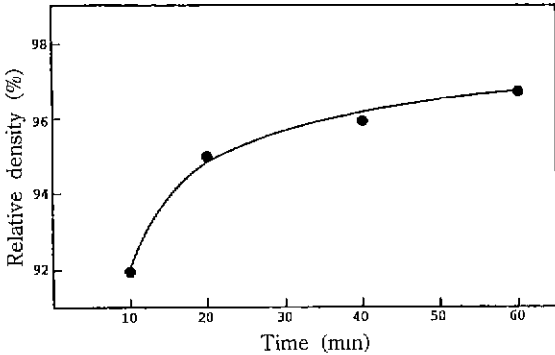


Fig. 8. Changes in relative density of synthetic AlN bodies with the addition of 1.0 wt% CaCO₃ as a function of sintering time (pressureless-sintered at 1800°C in N₂ gas).

에서 상압소결한 소결체의 상대밀도를 Fig. 8에 나타내었다. 10분 동안 상압소결한 시험편의 상대밀도값은 91.9% 정도이었으나, 소결시간을 20분으로 증가시키면 상대밀도값이 95.9%로 급속히 증가하고, 그 이후에는 소결온도의 증가에 따른 치밀화 증가가 완만해져 60분 소결시에 96.5%의 상대밀도값을 나타내었다.

4. 결 론

본 연구에서는 질화알루미늄의 소결특성을 알아보기 위하여 본 실험실에서 금속 알루미늄을 질화반응시켜 얻은 질화알루미늄과 시약급의 질화알루미늄을 원료분말로 사용하고, 소결조제의 효과를 비교하기 위하여 여

러가지 소결조제를 첨가한 후 정수압 성형하여 얻은 성형체를 질소분위기에서 1800°C로 상압소결시켰다. 여기서 가장 좋은 소결조제를 선택하여 그 첨가량, 소결 온도 및 소결시간을 변화시켜 가며 상압소결하고 그 상대밀도, 꺾임강도 및 미소경도를 측정하였다. 여기서 얻어진 결과는 다음과 같다.

(1) 여러가지 소결조제 중 Al₂O₃를 제외한 CaCO₃, Y₂O₃, SrCO₃, CeO₂ 및 Nd₂O₃ 등이 비교적 좋은 소결효과를 나타내었는데, 이 중 CaCO₃가 가장 좋은 효과를 나타내었다.

(2) 각 소결체의 치밀도(상대밀도)는 소결조제의 첨가량 및 소결온도에 비례하였고, 합성한 AlN이 시약급 AlN보다 더 소결성이 좋았으며, 이런 경향은 소결온도가 낮을수록, 소결조제의 양이 적을수록 그 차이가 심하였다. 특히 1.0 wt% CaCO₃를 첨가하여 1800°C에서 소결한 시험편의 경우 상대밀도가 급격히 증가하여 합성한 AlN의 소결체가 95.9%, 시약급 AlN의 소결체가 95.2%를 나타내었다.

(3) 소결체의 미소경도값은 소결조제의 첨가량 및 소결온도에 비례하였다. 합성한 AlN을 1600°C에서 소결한 경우 소결조제 CaCO₃의 양을 1.0 wt%에서 4.0 wt%로 증가시키에 따라 미소경도는 5.7 GPa에서 6.9 GPa로 증가하였다. 또한 합성한 AlN에 CaCO₃를 1.0 wt% 첨가하고 소결한 경우 소결온도를 1600°C에서 1900°C로 올림에 따라 미소경도는 5.7 GPa에서 11.0 GPa로 증가하였다.

(4) 소결체의 꺾임강도는 소결온도를 높일수록 증가하였으며, 합성한 AlN에 CaCO₃를 1.0 wt% 첨가하고 소결한 경우 소결온도를 1600°C에서 1900°C로 올림에 따라 꺾임강도가 170 MPa에서 350 MPa로 증가하였다.

(5) 소결조제의 양과 소결온도를 각각 1.0 wt%와 1800°C로 고정시키고 소결시간을 10~60분 범위로 변화시키면서 소결한 합성 AlN 소결체의 상대밀도를 측정하는 결과 20분 소결시 상대밀도의 급격한 증가를 보였고, 그 이후에는 큰 변화가 없었다.

감사의 글

본 연구는 88년도 문교부 신소재분야 연구지원(Ministry of Education Research Fund for Advanced Materials)에 의해 이루어졌음.

REFERENCES

1. 高見澤秀男, 鎌田 徹, "窒化アルミニウムセラミックスの特

- 性とその應用,” *エレクトロニク セラミックス*, **3**, 9-15 (1985).
2. 創元信行, “高熱傳導性 AlN 基板,” *ibid.*, **11**, 45-48 (1986).
3. 宮原健一郎, “高熱傳導セラミックスについて,” *ibid.*, **11**, 65-67 (1986).
4. 安齊和雄, “AlN 基板,” *ibid.*, **3**, 22-27 (1985).
5. 高橋 孝, “高熱傳導性 AlN,” *ibid.*, **11**, 33-36 (1986).
6. 内木楊文男, 澤村健太郎, “高熱傳導性 AlN 基板,” *ibid.*, **11**, 37-40 (1986).
7. J.W. Mellor, “Comprehensive Treatise on Inorganic and Theoretical Chemistry, Vol. VIII, Nitrogen and Phosphorus,” pp.97-144, Longmans, Green, and Co., New York (1928).
8. G.V. Samsonov, “非金屬窒化物.” 日・ソ通信社出版部, pp.121-151 (1971).
9. K. Komeya, H. Hiroshi, A. Tsuge, “Effect of Various Additives on Sintering of Aluminum Nitride,” *J. Ceram. Soc. Japan*, **89**, 330-336 (1981).