

YAG:Tb³⁺ 형광체 분말의 수열합성과 발광 특성

김상문* · 지성훈 · 구자인 · 김태옥

*LG전자(주) Display사업본부 Display Device연구소
부산대학교 공과대학 무기재료공학과
(1999년 10월 14일 접수)

The Luminescence Properties of YAG:Tb³⁺ Phosphor Prepared by Hydrothermal Synthesis

Sang-Mun Kim,* Sung-Hoon Gee, Ja-In Goo and Tae-Ok Kim

Display Device Research Lab. LG Electronics Inc., Kumi, 730-030, Korea
Dept. of Inorg. Mat. Sci. and Eng., Pusan Nat. Univ., Pusan, 609-735, Korea
(Received October 14, 1999)

초 록

수열반응으로 YAG:Tb³⁺(Y_{3-x}Tb_xAl₅O₁₂) 형광체를 제조하고 FED용 green 형광체로의 적용을 연구하였다. 수열용매로 물을, 광화제로 NH₄OH를 사용하는 수열 system에서 발광중심 이온인 Tb³⁺의 농도와 수열조건을 변화시켜 형광체를 제조한 후 PL, CL 발광특성 및 color 특성을 평가하였다. 8 M NH₄OH의 광화제를 사용하여 350°C에서 12시간 수열반응시킨 결과 순수 YAG상을 갖는 0.2~1.0 μm의 미립자 형광체를 얻을 수 있었다. 발광중심 이온인 Tb³⁺의 첨가농도를 변화시킨 결과 0.25 mol 을 첨가 하였을 때 가장 우수한 PL 및 CL 발광 특성을 나타내었으며 x=0.35, y=0.56의 CIE1931 색좌표를 갖는 green의 발광색을 나타내었다.

ABSTRACT

YAG:Tb³⁺ as green phosphor were studied for the development of low voltage FED phosphor prepared by hydrothermal synthesis. We changed the concentration of luminescence center ion Tb³⁺ in hydrothermal reaction of which conditions were at 8 M NH₄OH as mineralizer, at 350°C for 12 hrs. As results, we could finally get the YAG:Tb³⁺ (Y_{3-x}Tb_xAl₅O₁₂) powder of which particle size was about 0.2~1.0 μm. The excitation spectra and the green emitted spectra of YAG:Tb³⁺ phosphor powder were observed. When we doped 0.25 mol Tb to YAG, we could observe the maximum cathodoluminescence from YAG:Tb³⁺ phosphor and the chromaticity coordinate of the phosphor was shown x=0.35, y=0.56 in CIE1931 diagram.

Key words : Phosphor, YAG:Tb³⁺(Y_{3-x}Tb_xAl₅O₁₂), FED, Hydrothermal synthesis

1. 서 론

가정용 TV, 오실로스코프 및 각종 스크린, 레이더 표시기 등과 같은 전자 표시장치인 디스플레이는 각종 표시 패널, 교통, 우주, 군사, 항공분야까지 응용분야가 광범위하게 확대 되고 있으며 이러한 발전의 추세에 따라 디스플레이는 선명한 화상, 밝은 색상, 우수한 색재현성, 컨트라스트 및 넓은 시야각 등과 같은 성능특성이 요구되고 저소비 전력, 가벼우면서 화면이 크고 평평한 것이 사용자 편의성 측면에서 요구되고 있다.¹⁾

최근들어 디스플레이는 종래 CRT의 대화면화로 인한 무게와 부피의 증가로 인한 사용상의 불편함을 극복한, 시야각이 넓으면서도 얇고 가벼운 LCD, PDP, FED, EL 등과 같은 평판형 디스플레이가 급격한 발전을 보이고 있다. 특히 국내외에서 연구개발이 급속히 가속화되고 있는 전계방출형 디스플레이 FED(Field Emission Display)는 종래의

CRT의 장점을 유지하면서 얇고 가벼운 새로운 평판 디스플레이로 각광을 받고 있다.^{2,3)} FED의 실용화를 위하여 기관의 종류, 팁의 재료 및 제조기술, 진공패키지 기술, 구동방법, 형광체 개발 등의 연구가 진행되고 있으며 특히 형광체의 경우는 FED의 구동방식에 맞는 것이 요구되고 있는데 기존의 CRT용 형광체를 그대로 사용하기 위해서는 양극전위를 수만 볼트까지 올려야 하는데 이는 음극과 스크린간의 거리가 1 mm 미만으로 유지되는 FED 구조에서는 구동이 곤란하다. 따라서 저전압에서 구동되어야 하고 고휘도를 얻을 수 있는 저전압용 형광체가 요구되고 있다.^{4,7)} 종래의 CRT에 사용되던 황화물계 형광체는 전자에 의해 열화되기 쉽고 또 형광체에서의 outgasing으로 FED 소자의 진공도를 저하 emitter tip 오염 등의 문제가 발생되며 현재 발광 휘도가 낮기 때문에 FED에서는 열화특성이 우수하면서 발광 효율이 큰 형광체가 요구되고 있다.⁸⁾

발광중심 원소인 부활제(activator)로서 Tb이 미량 첨가된

YAG(Yttrium Aluminum Garnet: $Y_3Al_5O_{12}$) 형광체의 경우는 우수한 내열화 특성과 열적 안정성 및 높은 휘도 특성 때문에 CRT의 동작전압 보다 높은 고전압 Projection CRT 용 green 형광체로서 사용되어 왔으며 첨가되는 활성제(activator)의 종류에 따라서 fullcolor를 모두 구현할 수 있다고 알려져 있는 형광체이다.⁹⁻¹¹⁾ 하지만 FED에서의 응용에 대한 연구는 보고된 바가 많지 않으며 주로 고상반응으로 제조된 연구되었으며 입자경이 4~8 μm 정도이다. 이 정도 size의 형광체를 저전압 FED에 적용할 경우 형광체 표면으로의 전자선 침투 깊이에 비하여 형광막이 두껍고 형광막에서 형광체의 충전율이 낮기 때문에 형광체 발광효율이 떨어진다. 종래의 고상반응으로 제조한 형광체를 FED에 적용하는 위하여 형광체를 기계적 분쇄하여 미립자화 하는 방법이 시도되고 있지만 분쇄 시 표면 결함 및 불순물의 혼입으로 발광효율이 저하 되는 문제가 제기되고 있다. 이에 비하여 수열합성법은 저온 고압의 영역에서 형광체 합성이 가능하고, 수열용매와 광화제의 종류에 따라서 입자형상의 제어가 용이하며 분쇄공정이 필요치 않고 표면결함이 없고 분산성이 좋은 미립자 형광체를 제조할 수 있다는 장점이 있지만 수열합성법을 이용한 시도는 거의 없다. 따라서 수열합성법을 이용하여 형광체를 합성할 경우 미립자 형광체를 제조할 수 있기 때문에 FED에서 형광체의 발광면적을 크게하면서 형광체의 충전율을 높혀 발광 효율을 향상시킬 수 있을 것으로 기대된다. 본 연구자들은 수열합성으로 YAG 형광체 연구결과 YAG 형광체 모체의 수열합성에 대하여 보고하였으며^{12,13)} 본 논문에서는 형광체 모체인 YAG의 최적 수열합성 조건에서 발광 중심원소인 Tb함량 변화에 따른 $Y_{1-x}Tb_xAl_5O_{12}$ (YAG:Tb³⁺) 형광체를 제조하고 저전압에서의 발광특성을 평가하였다.

2. 실험방법

형광체 합성은 Fig. 1에 나타낸 순서에 따라 실시하였다. 출발시료로 $Y(NO_3)_3 \cdot 4H_2O$, $AlCl_3 \cdot 6H_2O$ 와 $Tb(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ 를 사용하였다. 먼저 $Y(NO_3)_3 \cdot 4H_2O$, $AlCl_3 \cdot 6H_2O$ 와 $Tb(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ 를 증류수에 넣어 용해를 시킨 후 NH_4OH 를 첨가하여 $Y(OH)_3$, $Al(OH)_3$, $Tb(OH)_3$ 로 침전시켜 수열반응의 출발물질인 수화물 현탁액을 만든 다음 침전과정에서 생성되는 NH_4NO_3 , NH_4Cl 을 제거하기 위하여 수세를 하였다. NH_4NO_3 , NH_4Cl 염들은 고온에서 용해도가 높다는 점을 감안하여 열수를 이용하여 수회 수세 후 여과하였다. 여과하여 걸러진 수화물들을 $Y_{1-x}Tb_xAl_5O_{12}$ 의 금속 반응종들의 화학양론적 조성에 맞추어 수열반응 용기인 autoclave의 vessel에 넣고 수열반응시켜 분말을 제조하였다. 이때 수열합성 조건은 본 연구자들에 의하여 이미 발표된 바와 같이¹²⁾ YAG결정상이 가장 잘 형성되는 조건으로 광화제 NH_4O 의 첨가량을 8 mol로 하고, autoclave vessel 내부온도는

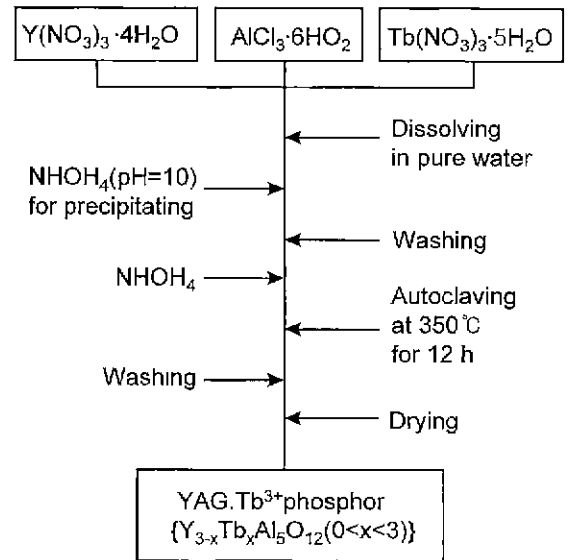


Fig. 1. Flow chart for YAG:Tb³⁺ phosphor prepared by hydrothermal reaction.

350°C. 수열반응 시간은 12 h으로 정하였으며 본 논문에서는 발광중심 원소인 Tb³⁺ 이온의 농도를 바꾸어 가면서 수열반응시켜 형광체를 제조하였다. 수열반응 후 냉각 시 150°C 부근에서 첨가된 수화물들 중 미반응된 금속종이 수화물로 형성되는 것을 방지하기 위하여 수열처리 후 급냉처리하였다.

분말 X-선 회절법을 이용한 X-선 회절분석으로 합성된 YAG:Tb³⁺ 형광체와 형광체 모체인 YAG 결정상을 비교 평가하였으며 주사전자 현미경(SEM)을 이용하여 수열합성된 형광체의 morphology를 관찰하였다.

Perkin Elmer사의 luminescence spectrometer LS50을 이용하여 Xe lamp를 광원으로하는 자외선을 YAG:Tb³⁺ 형광체에 조사하여 여기파장(excitation wavelength)과 발광파장(emission wavelength)을 측정하여 photoluminescence(PL) 특성을 평가하고 발광과정을 고찰하였다. PL측정에 있어서 측정 조건은 decay time 0.05 ms; gate time 1.00 ms; flash counter 1; cycle time 32 ms로 하였다.

0.16 g의 시료를 홀더에 넣어 형광막을 형성시켜 건조 후 진공 chamber에 넣고 10⁻⁷ torr의 진공을 만든 다음 chamber속에 장착된 전자발생원인 전자총의 cathode로부터 방출된 전자를 형광막 표면에 충돌시켜 형광면의 형광체를 여기 및 발광시킨 후 발광하는 빛을 형광막 뒤에서 luminance colorimeter로 cathodoluminescence(CL)를 측정하고 이 때의 발광색의 chromaticity를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

먼저 수열반응으로 제조된 YAG 형광체에 대하여 YAG 결정상을 확인하였다.

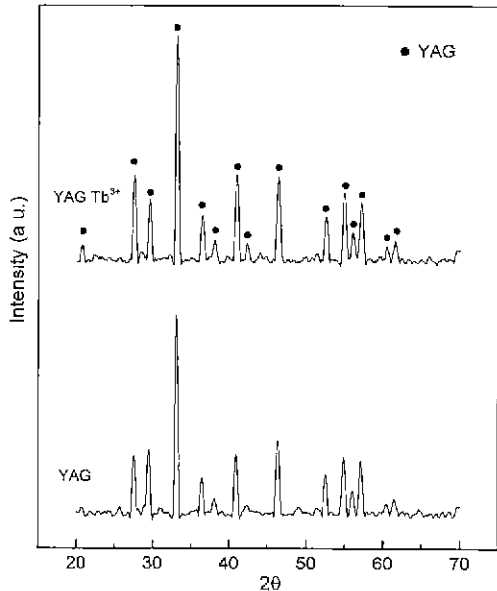


Fig. 2. X-ray patterns of YAG and YAG:Tb³⁺ prepared by hydrothermal synthesis at 350°C for 12 h.

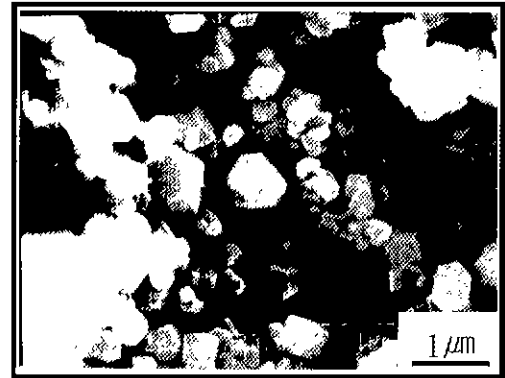
Fig. 2는 모결정 YAG(Y₃Al₅O₁₂)에서 Y의 일부를 Tb³⁺로 치환하고 수열반응시켜 형광체 Y_{3-x}Tb_xAl₅O₁₂(x=0.15)를 합성한 후 X선 회절 분석을 이용하여 결정상을 비교한 결과이다.

Fig. 2로부터 수열반응으로 제조한 YAG 분말과 YAG:Tb³⁺ 형광체 분말의 결정상에는 별 차이가 없으며 Tb³⁺이 별도의 산화물을 형성하지 않고 YAG 결정내에 고용되었음을 알 수 있다. 그리고 Tb³⁺가 미량 첨가됨으로써 X선 peak가 약간 shift 되는 것을 확인하였다. 이것은 Y³⁺의 이온반경은 0.109 nm이고 Tb³⁺의 이온반경은 0.106 nm이므로 이온 반경의 차이에 의해서 결정구조가 distortion된 것이라고 생각된다.

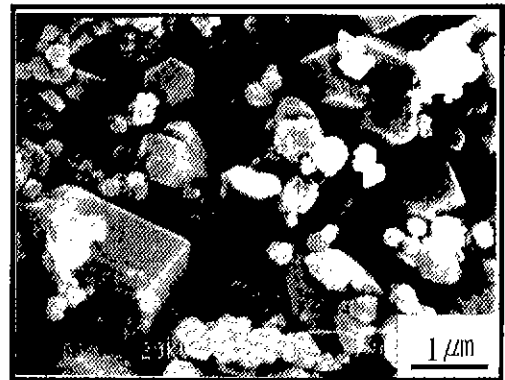
Fig. 3은 수열합성에 의해서 형성된 YAG 형광체 모체와 YAG:Tb³⁺ 분말의 SEM 사진이다. 수열합성한 분말은 모두 0.2~1.0 μm 정도이며 다면체의 형상을 하고 있다.

종래의 고상반응을 이용하여 제조된 형광체를 저속 전자선으로 발광시킬 경우 형광체 표면의 결함으로 인하여 발광 휘도 저하가 발생되고 있지만 수열반응으로 제조할 경우 350°C의 고압하에서 수화물들이 녹아서 결정의 형태로 석출되고 석출된 결정의 표면에서 지속적인 석출을 통한 결정 성장하는 과정을 거쳐 결정 표면의 결함이 거의 없는 단결정 미립자 형광체 분말이 제조된다.

스크린의 휘도는 형광체 크기의 균일성과 형광체의 표면 특성 및 스크린 상에서 형광체의 충전성에 따라 변하기 때문에 수열합성법으로 제조한 YAG:Tb³⁺의 경우는 표면성이 좋고 입자경이 작고 균일하여 저전압 FED의 스크린 형성 시 형광체의 충전성과 휘도특성에 좋은 영향을 미칠 것으로 생각된다.



(a)



(b)

Fig. 3. SEM photographs of TAG and YAG:Tb³⁺ prepared by hydrothermal synthesis at 350°C for 12 h.

(a) Y₃Al₅O₁₂, (b) Y_{2.85}Tb_{0.15}Al₅O₁₂

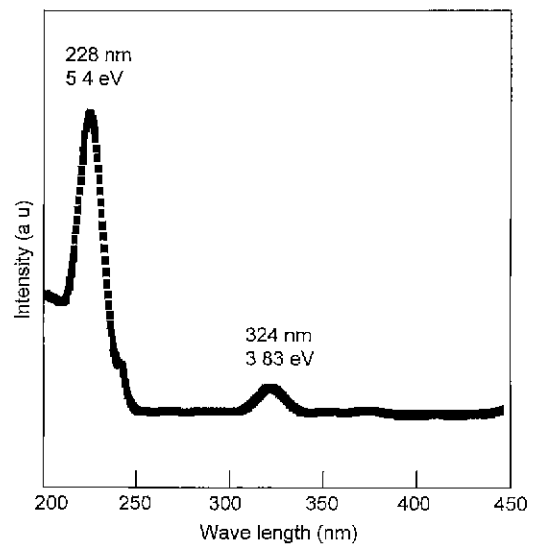


Fig. 4. PL excitation spectrum of YAG:Tb³⁺ prepared by hydrothermal process.

Fig. 4는 YAG:Tb³⁺ 형광체의 여기 스펙트럼을 측정 한 것이다. Fig. 4의 여기파장 228 nm에서 여기 peak는 5.44

eV의 에너지를 가지며, YAG:Tb³⁺의 형광체 모체의 band gap은 5.44 eV임을 고려해 볼 때 이 여기 peak는 형광체 모체의 가전자대에서 전도대로 여기 시 전도대에서의 전자의 광흡수에 기인한다고 생각된다. 그리고 323 nm에서의 여기 peak는 3.83 eV의 에너지를 가지며, 또 Tb³⁺이 ⁷F_j (j=0~6)→⁵D_i(i=1~3) 에너지 준위로 여기될 때 에너지 gap이 약 3.8 eV임을 감안해 볼 때 이것은 YAG의 가전자대의 전자가 전도대로 여기된 후 가전자대로 천이하여 전자와 정공이 재결합하여 방출되는 에너지가 Tb³⁺에 전달되어 에너지 준위 ⁷F_j(j=0~6)→⁵D_i(i=1~3)로 Tb³⁺을 여기시켜 나타난 것으로 생각된다.^{14,15)}

Fig. 5는 Fig. 4에서 측정된 여기파장을 228 nm로 고정시킨 상태에서 여기 후 발광스펙트럼을 평가한 것으로 545 nm에서 최대 발광 peak를 나타내고 있으며, 583 nm, 623 nm에서 약한 발광 peak를 나타내고 있다.

여기파장이 228 nm(=5.4 eV)인 여기원으로부터의 에너지가 형광체 모체에 흡수되고 이 에너지가 발광중심인 Tb³⁺에 전달되어 전자가 부활제 Tb³⁺의 에너지 준위인 기저상태에서 ⁵D_i(i=1~3) 에너지 준위로 여기되고 여기상태에서 ⁵D₄ 준위로 완화가 일어난 후 기저상태로 천이되어 광방출을 한 것이다. 이것은 발광중심 이온인 Tb³⁺이 YAG 결정 내에서 Tb³⁺ 이온의 i배도의 에너지 준위가 ⁷F_j(j=0~6) 준위로 분리가 일어나고 에너지 분리에 의해 생성된 energy level로부터 전자가 ⁵D_i(i=1~3) 에너지 준위로 여기된 후 ⁵D_i(i=1~3)의 여기에너지 준위에서 ⁵D₄ 에너지 준위로 완화하고 이것이 다시 ⁷F_j(j=0~6)의 기저상태로 천이하면서 천이 에너지가 545 nm, 583 nm, 623 nm에서 발광 되어 나타난 것이다.

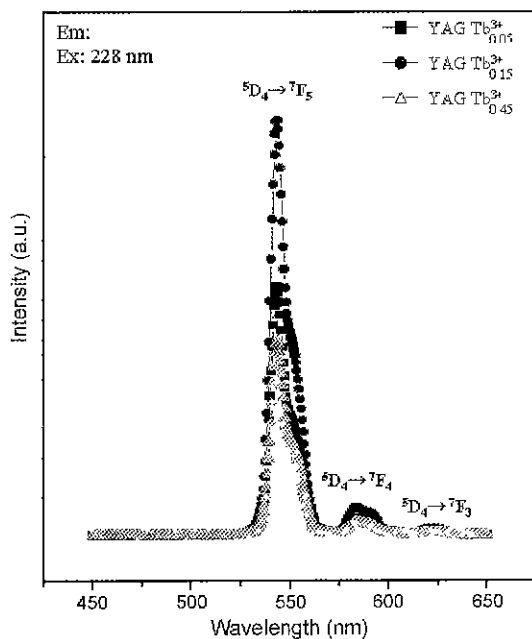


Fig. 5. PL emission spectra of YAG:Tb³⁺ vs. the concentration of Tb.

545 nm에서의 발광 peak는 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₅로의 천이에 의한 것이며, 583 nm에서의 발광 peak는 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₄로의 천이에 의한 것이며, 623 nm에서의 발광 peak는 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₃로의 천이에 의한 것이다. 발광 스펙트럼 중 545 nm에서 발광이 가장 크게 일어나기 때문에 녹색 형광특성을 나타내고 있지만 583 nm와 623 nm에서는 적색계통의 발광색의 영향을 받는 green색을 나타내고 있다.^{14,15)}

그리고 Tb³⁺ 이온의 첨가에 따른 YAG 형광체의 PL발광 특성을 살펴보면 다음과 같다. Tb³⁺ 이온을 0.15 mol 사용할 경우 PL발광 특성은 0.05 mol, 0.45 mol 첨가하였을 때 보다 휘도가 높게 나타나고 있다. Tb³⁺ 이온이 0.05 mol 첨가되었을 경우는 충분한 양의 Tb³⁺ 이온이 첨가되지 않아서 발광휘도가 낮게 나타나며 0.43 mol 첨가되었을 경우는 Tb³⁺ 이온이 적정 첨가량 이상으로 첨가되어 적정량을 초과하는 양만큼의 Tb³⁺ 이온이 형광체 내에서 killer로 작용하여 소광을 일으켜 PL발광 휘도가 감소된 것으로 생각된다.

Fig. 6은 Tb³⁺ 이온의 첨가에 따른 YAG 형광체의 cathodoluminescence(CL) 발광 특성을 1 kV 이하의 저전압에서

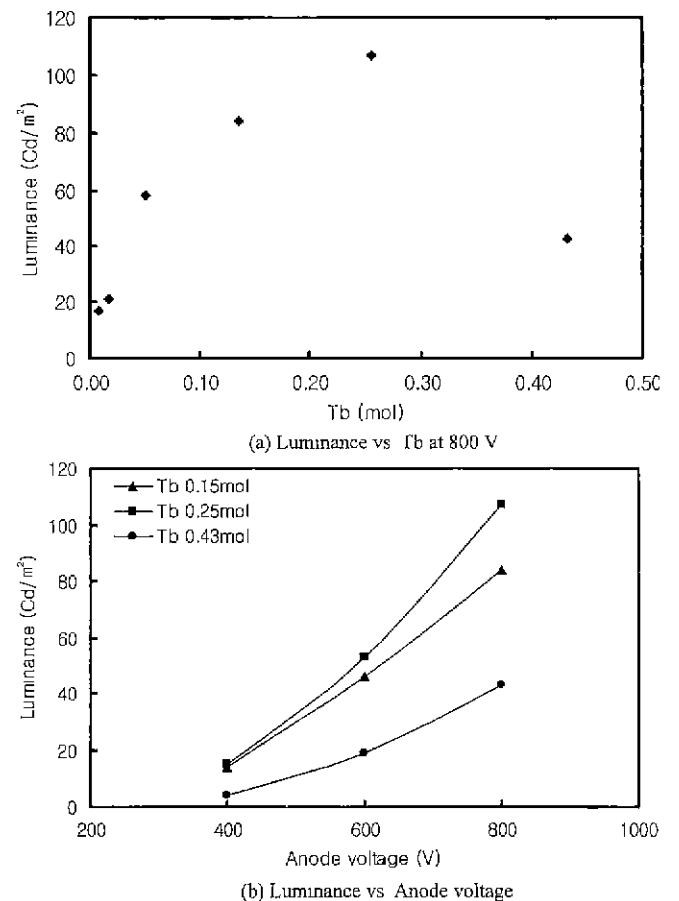


Fig. 6. CL properties of YAG:Tb³⁺ vs. the concentration of Tb.

평가한 것이다. 전반적으로는 동작 전압이 상승함에 따라 발광휘도가 증가하는 경향을 보이고 있으며 Tb³⁺ 이온의 농도가 0.25 mol일때 최대 발광휘도를 보인다. 0.25 mol 이상 첨가되면 CL발광 휘도가 감소한다. 그 이유는 Fig. 5에서와 같이 과량의 Tb³⁺ 이온이 첨가될 경우 과잉의 이온이 killer로 작용하여 CL발광 휘도가 감소된 것으로 생각된다.

Fig. 7은 0.15 mol과 0.05 mol의 Tb³⁺ 첨가에 따른 YAG:Tb³⁺ 형광체의 CL(cathodoluminescence) 발광 스펙트럼을 anode 동작전압 800 V에서 평가한 것이다. CL발광은 PL 발광과 같이 545 nm에서 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₅로의 천이에 의한 발광 peak, 583 nm에서 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₄로의 천이에 의한 발광 peak와 623 nm에서 에너지 준위 ⁵D₄→⁷F₃로의 천이에 의한 발광 peak가 관찰되며 0.15 mol의 Tb³⁺를 첨가하였을 경우 0.05 mol보다 높은 발광휘도를 얻을 수 있다.

Fig. 8은 0.15 mol의 Tb³⁺과 8 mol의 NH₄OH를 첨가하여 수열합성한 YAG:Tb³⁺ 형광체에 대하여 CL(cathodoluminescence) 특성을 측정하였을 때 발광하는 형광체의 color를 CIE1931 색좌표에 나타낸 것이다. Fig. 8로부터 YAG:Tb³⁺ 형광체의 경우는 x=0.35, y=0.56으로 green색을 나타내고 있다. 이것은 Tb³⁺의 전자천이에 의하여 시감도 특성이 우수한 545 nm에서의 주발광 스펙트럼 이외에 584 nm, 623 nm에서 발광하는 red색의 영향을 받아서 yellow green색을 띠고 있다. CRT green 형광체는 경우 x=0.301, y=0.614로서 색순도 특성이 더 좋기 때문에 YAG:Tb³⁺ 형광체의 경우 색순도 향상이 향후 FED에서 응용 시 개선되어야 할 것으로 생각된다.

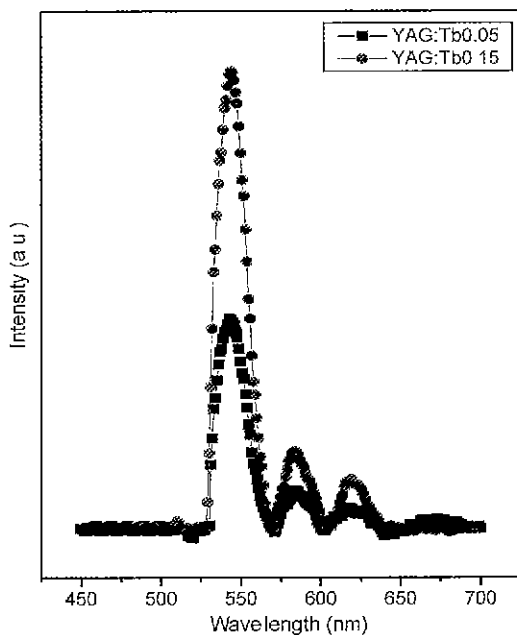


Fig. 7. CL spectra of YAG:Tb³⁺ vs. the concentration of Tb at anode voltage 800 V.

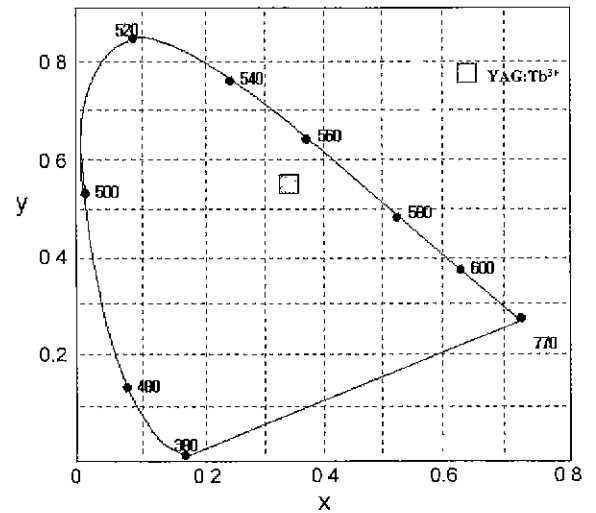


Fig. 8. CIE chromaticity diagram showing coordinate of YAG:Tb³⁺ phosphor prepared by hydrothermal process.

4. 결 론

물을 수열용매로 하는 수열반응에서 YAG 형광체의 발광 중심 이온인 Tb³⁺ 함량을 변화시켜 형광체를 수열합성한 결과 다음과 같은 결론에 도달하였다.

1. 광화제로 8 M NH₄OH를 사용하고 350°C에서 12시간 수열반응시켰을 때 YAG 결정상을 갖는 약 0.2~1.0 μm의 크기의 다면체형의 형광체가 합성되었다.
2. 여기파장 228 nm에서 형광체 모체의 여기가 일어나고 324 nm에서 발광중심 이온 Tb³⁺의 여기가 일어난 후 에너지 천이에 의하여 545 nm, 598 nm, 623 nm에서 발광 스펙트럼이 확인되었다.
3. Tb³⁺ 이온의 첨가량을 변경시켜 PL 및 CL 발광특성 평가한 결과 0.25 mol 첨가하였을 경우 발광특성이 가장 우수하였다.
4. YAG:Tb³⁺ 형광체는 545 nm 파장에서 녹색 발광특성을 나타내나, 598 nm, 623 nm와 같은 적색영역의 빛도 함께 나타내는 관계로 yellow green색을 나타내며 CIE1931 색좌표에서 x=0.35, y=0.56의 값을 나타내었다.

REFERENCES

1. K. Derbyshire, "Beyond AMLCDs Field Emission Display?," *Sol. Stat. Technol.*, **94**(11), 55-59 (1994).
2. C. Curtine and C. Infant, "Fundamentals Emission Displays," *Proc. SID 97 short course*, s-3, Boston, 1997.
3. K. Yokoo, "Prospect of Field Emission Display Development," *Monthly Display*, **8**, 48-51 (1997).
4. T. Shumojo, "Recent Trend of FED," *Monthly Display*, **11**, 15-18 (1998).
5. S. M. Jacobsen, S. Yang, F. L. Zhang and C. J. Summers,

- "Late News Paper: Improved Performance of Low Voltage Phosphor of Field Emission Display." *Proc. SID 95 Digest*, 631-633 (1995).
6. 권오경, "평판디스플레이의 기술동향," *오리온전기 기술동향*, **95**(9), 18-28 (1995).
 7. H. Tanner, A. Vecht, D. W. Smith, C. S. Gibbons and D. C. Worth, "High Resolution Phosphor: Characterization and Assesment," *Proc. SID 95 Digest*, 623-627 (1995).
 8. W. J. Dawson, "Hydrothermal Synthesis of Advanced Ceramic Powder," *Ceram. Bull.*, **67**(10), 1673-1678 (1988).
 9. W. Berkstresser, J. Shmulovich, T. C. D. Huo and G. Matulis, "Growth Parameter Optimization and Tb^{3+} Sensitization of Ce^{3+} Activated $Y_3Al_5O_{12}$ Phosphor," *J. Electrochem. Soc.*, **134**(10), 2624-2628 (1987).
 10. D. J. Bobbins, B. Cockayne, J. L. Glasper and B. Lent, "The Temperature Dependence of Rare-Earth Activated Garnet Phosphor." *J. Electrochem. Soc.*, **126**(7), 1221-1228 (1979).
 11. K. Ohno, T. Abe and K. Ohno, "The Synthesis and Particle Growth Mechanism of Bright Green Phosphor YAG:Tb." *J. Electrochem. Soc.*, **141**(5), 1252-1254 (1994).
 12. S. H. Gee, S. M. Kim, J. H. Lee, J. I. Goo and T. O. Kim, "Characteristics of Green Emitting YAG:Tb³⁺ Phosphors by Hydrothermal Synthesis for FEDs," *Proc. IDW'98*, 637-640 (1998).
 13. S. H. Gee, S. M. Kim, J. I. Goo and T. O. Kim, "The Shape Control of YAG Powder Prepared by Hydrothermal Reaction," published (1999)
 14. L. Ozawa. "Cathodoluminescence. Theory and Application." Kodansha, Tokyo, 1990.
 15. T. Hase, S. Kamiya, E. Nakazawa, K. Narita, K. Ohno, M. Tamatani, M. J. Weber and H. Yamamoto, "PHOSPHOR HANADBOOK," Vol. I, S. Shionoya, W. M. Yen, 194-195, CRC Press, New York, 1998.