

## $\alpha$ -SiC 소결체의 특성에 미치는 소성조건에의 영향

정두화 · 김인술 · 김효준

산업과학기술연구소 내화물연구소

(1991년 8월 3일 접수)

### Influence of Sintering Condition on Characteristics of $\alpha$ -SiC Ceramics

Doo-Hoa Jeong, In-Sool Kim and Hyo-Joon Kim

Refractory Lab., Research Institute of Industrial Science and Technology (RIST)

(Received August 3, 1991)

#### 요 약

$\alpha$ -SiC(B : 0.4 wt%, C : 3 wt%)의 효과적인 소결조건을 구할 목적으로 GPS furnace를 이용하여 Ar분위기에서 2050°C부터 2200°C 영역에서 상압소결 및 분위기 가압소결을 행하고, 얻어진 소결체에 대한 물리적 기계적 특성의 시험 및 미세구조 관찰을 통하여 SiC 소결에 미치는 소결조건에의 영향을 조사하였다.  $\alpha$ -SiC는 상압소결에 의하여 이론밀도의 97.5%를, gas pressure sintering에 의하여 이론밀도의 98.8%를 얻을 수 있었으며, 꺾임강도는 각각 270~350 MPa, 420 MPa를 나타내었다.

#### ABSTRACT

$\alpha$ -SiC (B; 0.4 wt%, C; 3 wt%) was sintered in Ar atmosphere from 2050°C to 2200°C by means of pressureless sintering and gas pressure sintering in order to find optimum sintering condition of  $\alpha$ -SiC. Mechanical properties and microstructures of sintered bodies were investigated according to sintering method. The effect of sintering condition on sinterability of  $\alpha$ -SiC was also examined by using the dilatometer. 97.5% and 98.8% of theoretical density were obtained from pressureless sintering and gas pressure sintering of  $\alpha$ -SiC powder, respectively. And modulus of rupture was measured as 270~350 MPa and 420 MPa respectively.

#### 1. 서 론

1970년대 중반이후 碳化硅素(SiC)는 窒化珪素(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), Sialon과 함께 비산화물 요업체로서 본격적으로 연구되어 왔는데, SiC는 높은 경도, 우수한 고온강도와 높은 열전도율을 나타내어 연마재료나 내화물용 이외에 mechanical seal, 고온열교환기, nozzle, gas turbine blade, heat engine 등 고온구조재료로서 많은 용도가 개발되어 왔다<sup>1-6)</sup>.

그러나, SiC는 Si-C 결합의 약 87%가 공유결합성인 전형적인 난소결성 물질이므로, 소결조제를 사용하더라도 2000°C 이상의 고온이 되어야만 소결이 가능하다. 따라서, SiC의 소결성 증진을 위한 소결조제 및 소결방법에 대한 연구가 꾸준히 진행되어 왔다.

SiC 소결에 대하여는, 1956년에 R.A. Alliegro 등<sup>7)</sup>에

의하여 최초로 보고되었는데, 이때는 Hot-Press에 의하여 소결이 행해졌으며 Fe, Al 등의 금속첨가물이 SiC의 소결에 효과가 있음이 입증되었다. 또, 1975년에는 Prochazka<sup>8)</sup>에 의하여 boron과 carbon을 소결조제로 하는  $\beta$ -SiC의 상압소결법이 발견되어 이론밀도의 95~98%에 이르는 SiC 소결체가 얻어진 바 있다. 그러나,  $\beta$ -SiC는 소결온도를 높이거나 소결시간을 길게하면  $\alpha$ -SiC로 상전이<sup>9)</sup>가 진행되어 이상입성장이 일어나기 쉽기<sup>10)</sup> 때문에 최적 소결조건<sup>11)</sup>의 영역이 좁은 반면  $\alpha$ -SiC는 이상입성장이 적어서 비교적 넓은 온도영역에서 균일하고 미세한 조직을 얻기 쉬운 것으로 알려져 왔다.

그 후,  $\alpha$ -SiC의 소결성에 대하여 Coppola와 Mcmurry<sup>10)</sup>에 의해 보고된 바 있으며, SiC의 소결조제로 Al-C계<sup>11,12)</sup>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>계<sup>13)</sup>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>계<sup>14)</sup>, Al-B-C계<sup>12)</sup>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>계<sup>15)</sup>, BeO, B<sub>4</sub>C-C<sup>16)</sup>계 등이 알려져 있다.

**Table 1.** Characteristic of LONZA α-SiC UF-15

Characteristics		
Specific surface area (m <sup>2</sup> /g, typical value)		15.6
Grain size (μm)	X <sub>90</sub>	0.90
	X <sub>50</sub>	0.48
	X <sub>10</sub>	0.22
Chemical analysis (wt%)	O <sub>2</sub>	1.32
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.05
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.03
	C free	0.20
	Si met.	0.10
Green density in % of T.D. uniaxial at 400 MPa		54.0

본 연구에서는 α-SiC에 소결조제로서 B<sub>4</sub>C와 C를 첨가하여, 상압소결시 소결온도, 유지시간 및 승온과정 중의 진공처리가 α-SiC 소결체의 미세구조 및 기계적 성질에 미치는 영향을 조사하였다. 또한, 상압소결시 가장 높은 이론밀도를 나타내는 소결온도에서는 gas pressure sintering을 행하여 α-SiC의 소결성에 미치는 영향도 조사하였다.

## 2. 실험방법

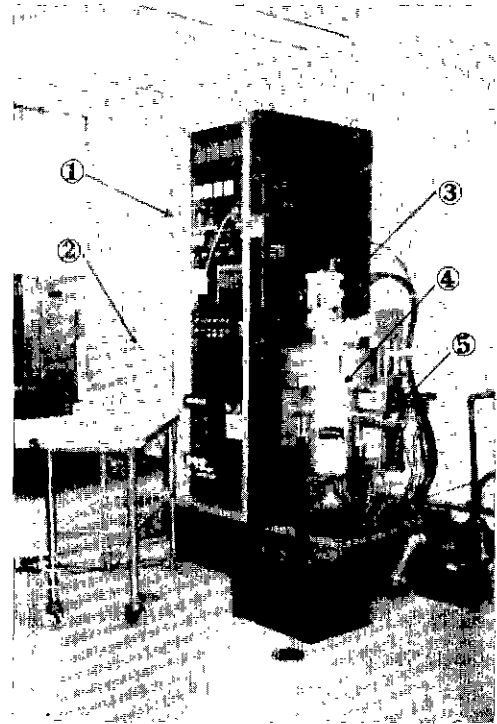
### 2.1. 성형 및 소성

SiC는 Acheson법으로 제조된 평균입경 0.48 μm의 α-SiC 분말\*을 사용하였으며, 소결조제로서는 H.C. Starck사의 B<sub>4</sub>C\*\*와 "K"사의 phenol resin\*\*\*을 사용하였다.

Table 1에 α-SiC 분말의 특성을 나타내었다.

SiC 분말에 B 0.4 wt%, C 3 wt%<sup>16)</sup>가 되도록 B<sub>4</sub>C와 phenol resin를 첨가하고 아세톤을 용매로 하여 polyethylene 용기에서 zirconia ball을 사용하여 24시간 ball milling하였다. 혼합물을 상온에서 건조하여 분쇄한 다음, 70 mesh체를 통과시켜 과립화하여 성형하였다.

시편은 5×5×15 mm, 15×15×60 mm의 크기가 되도록 금형몰드를 이용하여 약 80 MPa의 압력으로 일축 성형하였으며, 얻어진 성형체는 다시 300 MPa의 압력으로 약 5분간 냉간정수압성형하여 각각 dilatometer용



**Fig. 1.** Gas pressure sintering furnace with intergrated dilatometer. ① Control Panel ② Computer Control System ③ Pyrometer ④ Furnace ⑤ Dilatometer

시편과 물성시험용 시편으로 하였다.

이때 성형체는 이론밀도의 62%이었으며, 관상로를 이용하여 Ar분위기하, 800℃에서 2시간 가열하여 탈지하였다. 소성은 dilatometer 장치가 부착된 gas pressure sintering(이하 GPS라 함)용 furnace\*\*\*\*(Fig. 1)를 사용하여 Ar분위기하에서 행하였다.

α-SiC의 소결성에 미치는 소결온도 및 유지시간의 영향을 조사하기 위하여 소결온도는 2050~2200℃의 범위로 하고, 2100℃에서는 유지시간을 0~30분의 범위로 변화시켜 소성하였으며, 소성조건은 Fig. 2에 나타내었다.

또, 진공처리효과를 조사하기 위하여 승온과정 중 1500~1550℃에서 약 9.8×10<sup>-5</sup> Torr의 진공으로 10분간 유지하여 소성하였고, 소결온도는 소성시 SiC의 수축속도가 가장 빠른 1930℃ 및 상압소결시 수축이 종료되는 2100℃로 하였으며, 얻어진 소결체에 대하여 미세구조를 관찰하였다.

GPS는 SiC의 수축속도가 0이 되는 2100℃에서 10 MPa의 Ar로 10분간 행하였으며, 얻어진 소결체로부터 GPS가 SiC 소결체의 미세구조 및 기계적 성질에 미치는

\*α-SiC: UF-15, LONZA-Werke GmbH, Switzerland

\*\*B<sub>4</sub>C: F 1500, H.C. Starck, Germany

\*\*\*Phenolic resin: CB-8081, Kangnam chemical Co., Ltd., Korea

\*\*\*\*GPS Furnace: Model FP W 100/150-2200-100-LA, KCE Special Furnace Co., Ltd., Roedenthal, Germany

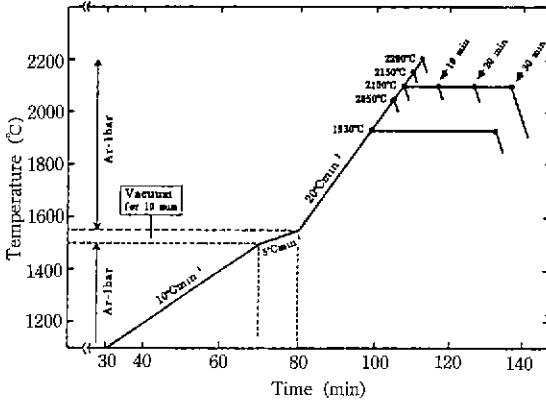


Fig. 2. Sintering program of  $\alpha$ -SiC.

영향을 조사하였다.

2.2. 시험 및 분석

$\alpha$ -SiC의 수축률 및 수축속도는 GPS furnace에 장착된 dilatometer를 이용하여 측정하였다. 얻어진 SiC 소결체의 겉보기 밀도는 Archimedes법으로 측정하였으며, 꺾임강도는 15  $\mu$ m-diamond wheel로 표면처리한 시편을 Instron\*을 이용하여 cross head speed 0.5 mm/min의 조건으로 측정하였다. 파괴인성은 시편을 1  $\mu$ m-diamond paste로 연마한 다음, indentation technique(136°의 Vicker's indenter)를 이용하여 하중 10 kg, 유지시간 20초의 조건으로 시험하였으며, 경도는 식 (1)에 의하여, 파괴인성은 식 (2)에 의하여 계산하였다<sup>17)</sup>.

$$H = 0.4636 \times (P/a^2) \tag{1}$$

단, H : 경도

P : 압입시의 하중

a : 압흔의 반경

$$\frac{K_{IC}}{H \cdot a^{1/2}} = 0.203 \cdot (c/a)^{-3/2} \tag{2}$$

단,  $K_{IC}$  : 파괴인성

c : 압흔 후의 길이

SiC 소결체의 미세구조 관찰을 위한 SEM 시료는 연마한 소결체의 표면을 약 380°C로 가열, 용융시킨 NaOH 용액 중에서 약 5분간 etching하여 준비하였으며, 소결체의 결정상조사를 위한 X-선 회절분석시료는 소결체를 vibration mill로 분쇄하여 분말상으로 준비하였다.

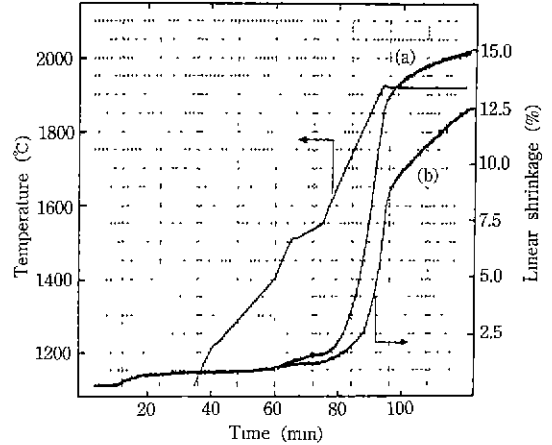


Fig. 3. Linear shrinkage of SiC during heating. (a) with vacuum treatment at 1500~1550°C, (b) without vacuum treatment

3. 결과 및 고찰

3.1. 진공처리의 영향

SiC를 소결할 때, 첨가하는 C의 역할 중 하나는 SiC 분말 표면에 생성된 SiO<sub>2</sub> 피막을 제거<sup>8,18)</sup>하는 것으로 알려져 있다. Table 1에 나타난 SiC 분말 중의 유리규소 (free SiO<sub>2</sub>)는 대부분이 SiC 표면의 산화물로 생각되는데, 실제로 입경이 작은 분말일수록 비표면적이 크고, 또 비표면적에 비례하여 free SiO<sub>2</sub>도 많아진다. 이것을 효과적으로 제거하기 위하여 식 (3)과 같이 파잉의 C가 필요하게 된다.



식 (3)은 1520°C에서  $\Delta G = 0$ 이므로 효과적인 SiO<sub>2</sub> 피막을 제거하기 위하여 본 실험에서는 1500~1550°C 영역에서 진공처리하였다. 일례로 SiC를 소결할 때, 진공조건하의 1200°C 부근에서 진공도가 떨어지는 것을 알 수 있는데, 이것은 방출되는 CO가스에 의한 영향<sup>19)</sup>으로 보이며, SiO<sub>2</sub> 함량이 많을수록 발생하는 CO량도 많아져 진공도에 미치는 영향은 커질 것으로 예상된다.

Fig. 3은 Ar분위기 중에서 SiC를 소결할 때 소결조제로서 C의 역할이 활발하다고 생각되는 1500~1550°C에서 10분간 진공으로 처리하였을 때와 진공처리없이 Ar분위기로 소성하였을 때의 SiC의 수축곡선을 나타낸 것이다.

여기서, 1500~1550°C에서 진공처리한 시료가 Ar분위기에서만 소성한 것보다 현저히 수축이 많이 일어나는 것을 볼 수 있는데, 이것은 진공분위기에 의하여 SiC가

\*Instron, Model-6025, England

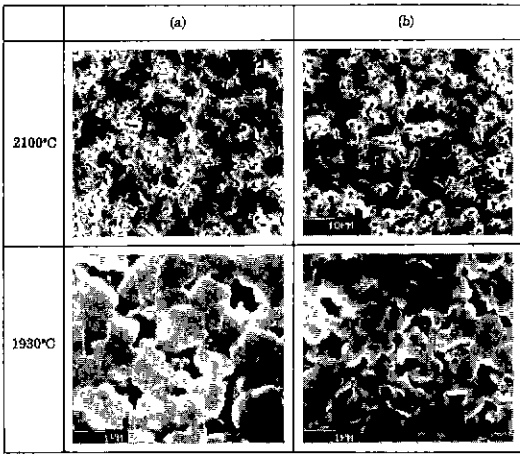


Fig. 4. Microstructures of SiC sintered at 2100°C and 1930°C. (a) with vacuum treatment at 1500~1550°C, (b) without vacuum treatment

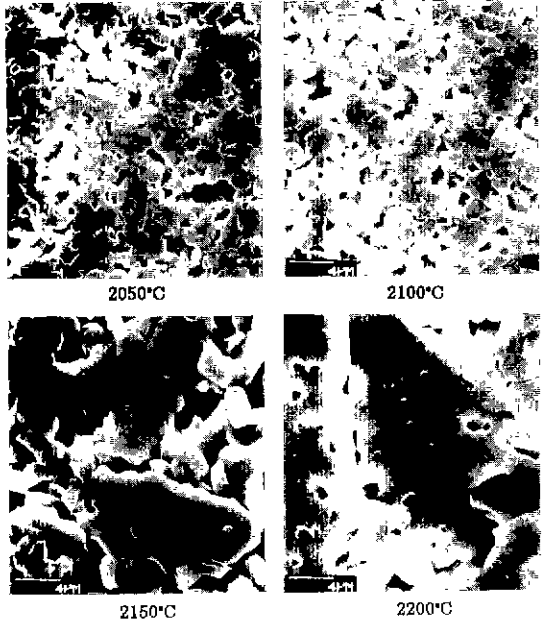


Fig. 6. Microstructures of SiC sintered at various temperatures.

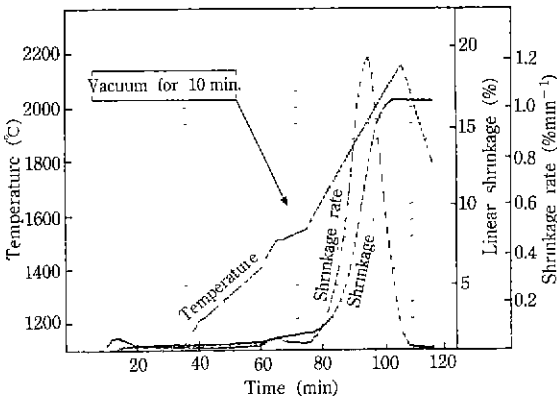


Fig. 5. Linear shrinkage and shrinkage rate of SiC during heating.

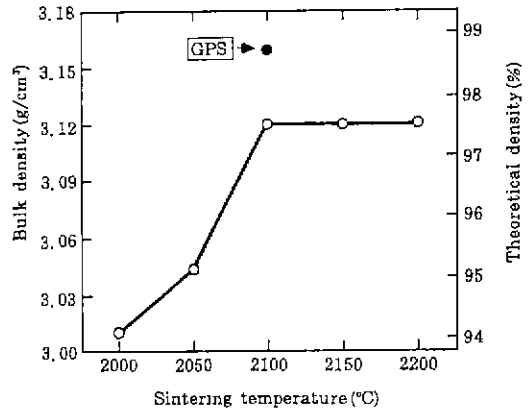


Fig. 7. Densities vs. sintering temperatures.

소결될 때 CO가스 방출이 용이하게 되어 SiC 분말의 표면에너지( $\epsilon_s$ )가 높아졌기 때문<sup>20)</sup>으로 생각된다.

Fig. 4에 1930°C와 2100°C로 소결한 SiC의 미세구조를 나타내었는데, 소성시 진공처리하지 않은 시료가 진공 처리한 것보다 이상입성장이 더 빨리 일어나는 것을 볼 수 있다. 즉, free SiO<sub>2</sub>의 함량이 많으면 이상입성장을 일으키기 쉬우므로<sup>21,23)</sup> SiC 소결시 1550°C 이하까지는 진공분위기로 소성하거나 소성과정 중 진공처리하는 것이 α-SiC의 소결밀도 향상 및 미세구조 제어에도 효과적이라고 생각된다.

### 3.2. 소성온도 및 유지시간의 영향

α-SiC(B : 0.4%, C : 3%)를 Ar분위기하에서 상압소결 하였을 때, 온도에 따른 수축율과 수축속도는 Fig. 5와 같이 나타났다. Fig. 5에서 α-SiC는 약 1200°C에서 소성 수축이 시작되고 약 1700°C부터 수축속도가 급격히 증가하여 1930°C에서 최대에 이르는 것을 알 수 있다. 수축곡선을 보면 2100°C까지는 온도와 비례하여 수축이 진행되지만, 2100°C가 되면 수축은 끝나고 그 이상의 온도에서는 거의 변화가 없음을 나타낸다. 즉, 소성온도와 수축곡선의 관계로부터 α-SiC(B : 0.4, C : 3 wt%)는

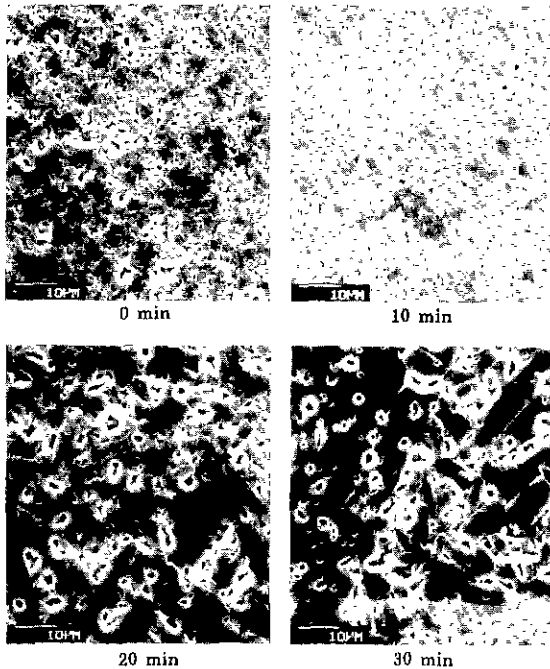


Fig. 8. Microstructures of SiC sintered at 2100°C for 0, 10, 20 and 30 min.

2100°C 이하에서 소결하되 1930°C를 전후에서 수축속도를 조절하면 탄화규소 소결체의 미세구조 제어가 가능할 것으로 생각된다.

$\alpha$ -SiC를 2050°C, 2100°C, 2150°C 및 2200°C의 각 소결 온도에서 유지시간없이 소결한 SiC의 미세구조는 Fig. 6에, 결보기밀도는 Fig. 7에 나타내었다.

Fig. 6에서 SiC는 소성온도 2100°C까지는 평균입경 3  $\mu\text{m}$  정도로 균일한 입성장을 보이는 반면, 2150°C부터는 30~50  $\mu\text{m}$ 로 현저한 이상입성장을 나타내는데 이상입성장한 입자는 aspect ratio가 클수록 입내기공이 많아지고 커지는 것을 보여준다. Fig. 7에의 결보기밀도 역시 2100°C까지는 증가를 보이지만 2100°C 이상에서는 3.12  $\text{g}/\text{cm}^3$ 으로, 더이상 증가하지 않는다. 따라서, Fig. 5, 6 및 7로부터 SiC의 최적 소결온도는 2100°C 부근이라고 생각된다.

Fig. 8은 2100°C에서 유지시간을 0분에서 30분까지 변화시켰을 때 SiC 소결체의 미세구조를 나타낸 것으로, 유지시간 10분까지는 미세하고 균일한 조직을 보이지만 10분 이상이 되면 Fig. 6의 2150°C 이상으로 소결한 것과 같이 이상입성장이 현저함을 알 수 있다.

X선 회절분석을 통하여 SiC 소결체의 결정상을 조사한 결과를 Table 2에 나타내었는데, 15R-SiC와 6H-SiC의

Table 2. XRD Intensity Ratio of 15R/6H According to Sintering Temperature and Time

Sintering temperature (°C)	Sintering time (min)	$I_{15R(104)}/I_{6H(102)}$
2050	0	0.06
2100	0	0.21
	10	0.26
	30	0.41
2150	0	0.54
2200	0	0.47

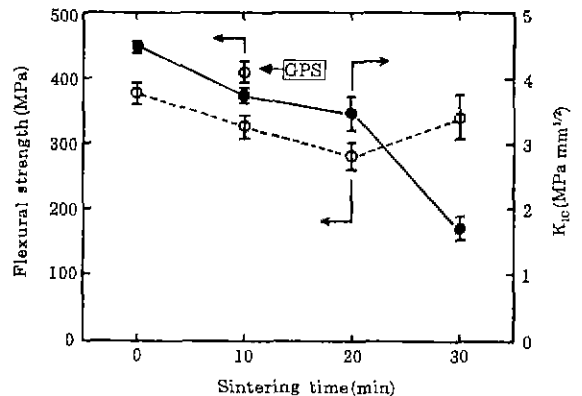


Fig. 9. Flexural strength and fracture toughness as a function of sintering time in SiC sintered at 2100°C.

존재량은 각각 (104)면과 (102)면의 회절강도를 이용하여  $I_{15R}/I_{6H}$ 비로부터 정성적으로 구하였다. SiC를 2150°C 이상으로 소결하면 15R로의 전이량이 많아지는데, 2100°C에서 10분 이상 소결할 경우도 이와 비슷한 양상을 나타내고 있다.

이것은 SiC 소결시 이상입성장이 일어남(Fig. 6)에 따라 6H에서 15R로의 상전이라도 함께 일어나는 것을 나타내므로, 소결시간이 길어질수록 오히려 균일한 미세 조직을 얻을 수 없게 됨을 알 수 있다.

### 3.3. 소결체의 기계적 성질

Fig. 9에 2100°C에서 유지시간 변화에 따른 SiC 소결체의 꺾임강도값과 파괴인성을 나타내었는데, 꺾임강도와 파괴인성은 유지시간이 길어질수록 저하하는 것을 보인다. 그러나, 30분 유지한 소결체는 다시 강도의 증가와 함께 파괴인성의 현저한 저하를 나타낸다. 이것은 Fig. 8에서 알 수 있듯이 10분 이상 유지시 이상입성장이 많아져서 SiC 입경이 커지고, 또, 커진 입내 기공으로

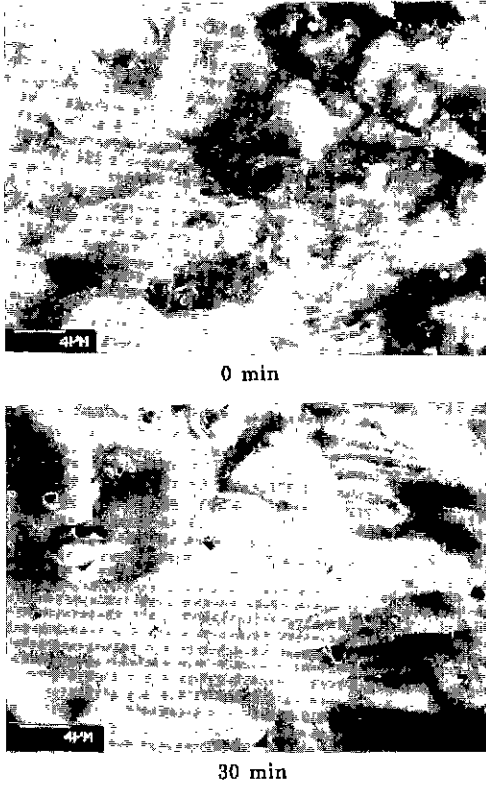


Fig. 10. Fractured surface of SiC sintered at 2100°C for 0 min and 30 min.

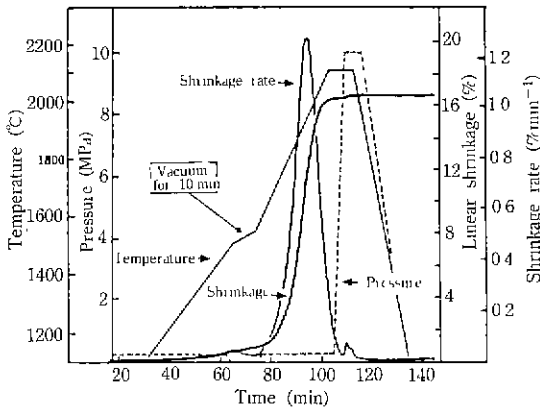


Fig. 11. Shrinkage and shrinkage rate of SiC during heating with GPS.

인하여 구조적으로 소결체가 취약해지기 때문이라 생각된다. 꺾임강도 측정 후의 파단면은 Fig. 10에 나타내었는데, 모두 입내파괴를 보여준다.

### 3.4. Gas pressure sintering

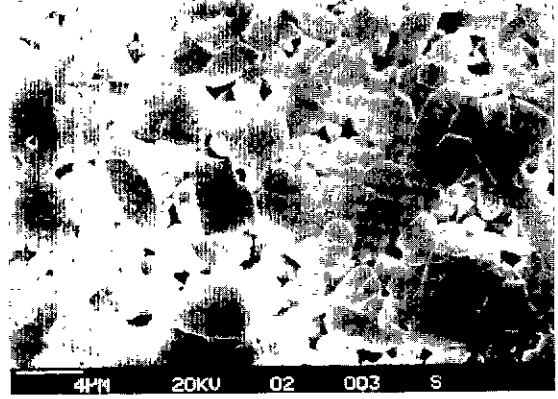


Fig. 12. Microstructure of SiC sinter and gas-pressure-sintered at 2100°C.

SiC를 2100°C로 소결할 때 수축속도가 0이 되는 시점<sup>23)</sup>에서 10 MPa의 Ar로 가압하여 소결한 결과를 Fig. 11에 나타내었는데, GPS에 의한 수축속도와 수축율의 증가가 확인되었으며, 얻어진 소결체의 미세구조는 Fig. 12와 같다.

Fig. 12에서와 같이 GPS에 의하여 결정립크기가 3~5 μm 정도의 균일한 미세구조를 갖는  $\alpha$ -SiC 소결체가 얻어졌으며, 상압소결하였을 때(3.12 g/cm<sup>3</sup>, 이론밀도 97.5%)보다 약 1.3% 높은 3.16 g/cm<sup>3</sup>(이론밀도 98.8%)의 겉보기밀도를 나타내었다 꺾임강도도 상압소결한 것보다 약 50 MPa 정도 높은 420 MPa로 측정되었다.

## 4. 결 론

$\alpha$ -SiC 분말의 최적 소결조건을 구한 목적으로 소결 조제로 B 0.4%, C 3 wt%가 되도록 B<sub>4</sub>C와 phenol resin을 첨가하여 GPS furnace에서 2050~2200°C 범위로 소결하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. Ar분위기하에서 상압소결할 때 소성과정 중 1500~1550°C에서 진공처리하는 것이 SiC의 소결에 있어서 보다 효과적이다.

2.  $\alpha$ -SiC를 Ar분위기하에서 상압소결할 때 소결온도 2100°C, 유지시간 약 10분이 최적 소결조건이었으며, 결정립의 크기가 균일하고, 이론밀도 97.5%, 꺾임강도 370 MPa의 SiC 소결체를 제조할 수 있었다.

3. 2100°C의 소결온도에서 GPS한 결과, 상압소결한 경우보다 밀도(98.8%) 및 꺾임강도(420 MPa)가 향상되었으며 미세구조가 균일한 SiC 소결체 제조가 가능하였다.

## REFERENCE

1. 日本 科學技術廳 無機材質研究所 研究報告書 第1號, "炭化珪素에 관한 研究," (1972).
2. 日本 科學技術廳 無機材質研究所 研究報告書 第52號, "炭化珪素에 관한 研究," (1987).
3. John B. Wachtman, JR, "Structural Ceramics," Vol. 29, Academic press., Inc., (1989).
4. S. Somiya, Y. Inomata, "SiC Ceramics," pp.409-425 UCHIDA ROKAKUHO 1988.
5. E.M. Lenoe, Joseph L. Meglen, "International Perspective on Ceramic Heat Engines," *Ceram. Bull.*, **64**(2), 271-275 (1985).
6. D.R. Johnson, A.G. Schaffnauser, V.J. Tennery, E.L. Long, Jr., "Ceramic Technology for Advanced Heat Engines Project," *Ceram. Bull.*, **64**(2), 276-281 (1985).
7. R.A. Alliegro, L.B. Coffin and J.R. Tinklepaugh, "Pressure-Sintered Silicon Carbide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **39** (11), 386-389 (1956).
8. S. Prochazka, "The Role of Boron and Carbon in the Sintering of Silicon Carbide," pp.171-181 in Special Ceramics. Vol.6, British Ceramic Assoc., 1975.
9. H. Tanaka, Y. Inomata *et al.*, "Normal Sintering of  $\beta$ -SiC Powder," *J. Japan. Ceram. Soc.*, **92**(8), 461-465 (1984).
10. J.A. Coppola and C.H. McMurty, "Substitution of Ceramics for Ductile Materials in Design," National Symposium on Ceramics in the Service of Man, Carnegie Institution, Washington (1976).
11. T. Hase, H. Suzuki and T. Iseki, "Sinterability of Submicron SiC Prepared from Siliconization of Carbon Black under Presence of Al Additives," *J. Japan. Ceram. Soc.*, **87**(11), 576-582 (1979)
12. 田中英彦, 猪股吉三, 川端治雄, "Al과 B를 添加하여 加壓燒結한 炭化珪素의 強度," 日本窯業協會誌, **88**(9), 570-580 (1980).
13. F.F. Lange, "Hot-Pressing Behavior of Silicon Carbide Powder with Additions of Aluminium Oxide," *J. Mat. Sci.*, **10**, 314-320 (1975).
14. M. Shimada, K. Sakai and M. Koizumi, "Fabrication and Characterization of AlN-SiC Ceramics," Proc. Int. Symp. on Ceramic Components for Engine, pp.466-472, KTK Scientific Publ., Tokyo (1984).
15. T. Mizutani, M. Hayashi and A. Tsuga, "Effects of Adding Fluid Boron Aids in the Normal Sintering of Alpha-SiC," *J. Japan. Ceram. Soc.*, **96**(2), 211-216 (1988).
16. T. Mizrah, M. Hoffmann and L. Gauckler, "Pressureless Sintering of  $\alpha$ -SiC," *Metallurgy International*, **16** (5), 217-220 (1984).
17. 新原晴, 第21回 窯業基礎討論會 講演要旨集, 福岡, **59** (1983).
18. W. van Rijswijk, Daniel J. Shanefield, "Effects of Carbon as a Sintering Aid Silicon Carbide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**(1), 148-149 (1990).
19. M. Ohkohchi and Y. Ando, "Pressureless Sintering of Ultrafine SiC Powder Produced by Gas Evaporation Method," *J. Japan. Ceram. Soc.*, **94**(1), 26-44 (1986).
20. Y. Inomata, "Free Energy Theory of Material Transport for Sintering and Diffusional Creep," in Proc. Int. Smp. on Ceramic Components for Engine, ed. by S. Somiya *et al.* KTK Scientific Publ., Tokyo, 1984.
21. T. Sasaki, Y. Fukatsu and T. Iseki, "Oxidation Behavior of Submicron SiC Powder and its Sinterability," *J. Japan. Ceram. Soc.*, **95**(6), 646-662 (1987).
22. H. Tanaka, "Sintering of Silicon Carbide, pp.155-173 in "SiC Ceramics. ed. by S. Somoya and Y. Inomata, Publ. by UCHIDA ROKAKUHO Publ. Co., Ltd., 1988.
23. H.U. Kessel and P. Engel, "Gas Pressure Sintering with Controlled Densification," *cfi/Ber. DKG 66*, No. 5 /6, pp.227-234 (1989).