

小特集 様々なプラズマプロセスによるダイヤモンドライクカーボン薄膜の作製とその評価

4. フィルタードアーク蒸着により DLC を創る

4. Fabrication of DLC Film by Filtered Arc Deposition

滝川 浩史

TAKIKAWA Hirofumi

豊橋技術科学大学

(原稿受付：2016年1月5日)

ダイヤモンドの成長にはラジカルが必要で、ダイヤモンドライクカーボン (DLC) の成長にはラジカルでなく、イオンが必要であることはよく知られている。DLC はその名の通りダイヤモンドに近い特性・物性を持つが、結晶ではなくアモルファス状であり、通常何らかの物体表面に膜状の形態で形成される。本章では、数ある形成・成膜方法の中で、工業的に利用可能で、かつ、高エネルギーのイオンを高密度に得ることのできる真空アーク蒸着法、およびその進化型であるフィルタードアーク蒸着法について概説する。また、それらの方法を用いて形成される DLC 膜の特徴や応用についても触れる。

Keywords:

vacuum arc deposition, filtered arc deposition, DLC film, tetrahedral amorphous carbon, application

4.1 はじめに

ダイヤモンドライクカーボン (DLC: diamond-like carbon) 膜を大別すれば、カーボンのみからなるものと、他の元素を含むものとの二つである。つまり、純カーボン DLC か、不純物含有 DLC か、ということである。DLC 膜の合成法[1, 2]としては、各種のプラズマ CVD (chemical vapor deposition) 法や、PVD (physical vapor deposition) の一種に分類されるイオン化蒸着法およびプラズマ支援イオン注入成膜法 PBIID (plasma based ion implantation and deposition) が主流である。これらの手法では、原料として炭化水素ガスや炭化水素蒸気を用いる。そのため形成できる DLC 膜は必ず水素を含んでいる。

一方、膜内に水素を含まない DLC を水素フリー DLC 膜と呼ぶことも多くなってきた。水素フリー DLC は、通常、水素だけでなく他の不純物も含まない「純カーボン DLC」を示す。水素フリー DLC の形成には、炭化水素ガスや蒸気を原料とするのではなく、水素を含まないカーボン材料、つまり、黒鉛 (グラファイト) を原料として用いる。黒鉛を蒸発源として利用できる工業的な手法は、真空蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタ蒸着、および真空アーク蒸着である。DLC 膜の形成にはイオンが必要であるため、主に原子によって膜形成が行われる真空蒸着法や電子ビーム蒸着法は不向きである。したがって、DLC 膜形成に利用できるのはスパッタ蒸着法か、真空アーク蒸着法ということになる。

水素フリー DLC 膜と水素含有 DLC 膜の特性を比べると、硬さ、密度、耐熱性、屈折率のいずれにおいても水素フリー DLC 膜の方が高い値を示す傾向が見られる。なお、他

Toyohashi University of Technology, Toyohashi, AICHI 441-8580, Japan

の元素 (Si, F, N, 各種金属, など) を含有した DLC もある。先に述べたように「水素フリー DLC」は、通常、これらの元素も含まない純カーボン DLC を示す場合が多い。

さて、話を成膜法に戻すと、水素フリー DLC の工業的成膜法としては、スパッタ蒸着法と真空アーク蒸着法であるが、スパッタ蒸着法の場合、イオンのエネルギーが低く、イオン密度 (フラックス) も低いことから、高硬度な DLC が得られない。また、スパッタガスである Ar が DLC 膜内に残留する。したがって、水素フリーではあるものの、純カーボン DLC とは言えないかもしれない。

水素フリー DLC (純カーボン DLC) は、 sp^3 構造リッチなテトラヘドラルアモルファスカーボン (ta-C: tetrahedral amorphous carbon) と sp^2 構造リッチなアモルファスカーボン (a-C: amorphous carbon) とに分類される。硬さ、密度、耐熱性は、ta-C の方が高く、よりダイヤモンドに近い特性を持つ。例えば、硬さについては、ta-C は 40~80 GPa、一般的な a-C は 20 GPa 前後と言ったところであろう。スパッタ蒸着法で得られる膜は後者である。一方、真空アーク蒸着法では雰囲気ガスを導入せずに膜を形成できるため、高いエネルギーのイオンが得られ、その結果、純カーボンから成る高硬度の ta-C が形成できる。

4.2 真空アーク蒸着・フィルタードアーク蒸着

4.2.1 真空アーク蒸着 ([3-8])

真空アーク蒸着法 (VAD: vacuum arc deposition) は、文献などでは陰極アーク法 (cathodic arc deposition)、陰極真空アーク蒸着法 (CVA: cathodic vacuum arc deposition) などとも表現されている。産業界では、アークイオン

author's e-mail: takikawa@ee.tut.ac.jp

レーティング (AIP: arc ion plating) とかアーク PVC とか呼ばれており、特に前者の AIP は産業界で名が通っている。

まず、真空アーク蒸着について説明する。真空アーク蒸着法は、真空中でのアーク放電を利用したものである。大気中のアーク放電は、陽極・陰極ともに電極点が形成され、双方とも活性であるのに対し、真空中のアーク放電は、一般に、陰極のみ活性であり、陽極は不活性である。陰極表面上には 1 個もしくは数個の微小な陰極点が形成され、陰極材料の激しい蒸発を伴うが、陽極はその蒸発物を受け取るだけである。したがって、陰極には蒸発させたい物質を用いるが、陽極の素材は気にしなくてもよい。陽極は、通常、真空チャンバ (成膜チャンバ) 本体とする。陰極点は高温となるため、大量の熱電子が同時に放出される。陰極点からの蒸発物質はこの熱電子によって、蒸発直後にイオン化される。陰極点近傍ではこのイオンがイオン雲として集積し、電氣的にポテンシャルハンプを形成する。イオンは、そのハンプの傾きで加速され、陽極方向に向かうイオンは高エネルギーを得る。真空アークの放電電圧は 30 V 前後であり、電子エネルギーもたかだか 2 eV であるが、イオンエネルギーは 50~150 eV もある。したがって、高エネルギーイオンが必要な ta-C の形成にはうってつけの方法ということになる。

真空アーク蒸着法の利点の一つは、固体蒸発源であり、チャンバ自体を対電極として利用できるため、複数の蒸発源を自在に配置できるということもあり、多数蒸発源を配置すれば、高速成膜が可能となる。一方、高品質の膜を得ようとする場合、同法の欠点は、陰極点からドロップレットと呼ばれる陰極材料のマクロ微粒子が副次的に放出されることである。このドロップレットが生成膜に付着すると、膜の平坦性、均一性、均質性を損なうほか、膜剥離や性能劣化を誘引する起点となる可能性がある。

DLC 膜形成には黒鉛陰極を利用するが、その陰極点の様子を図 1 に示す。陰極点の周りに灼熱したドロップレットが放出されている様子がわかる。

4.2.2 ドロップレットの抑制

ドロップレット問題への対策法として、ドロップレット自体を発生させないようにする方法とドロップレットの付着を防止する方法とがある。前者の有力な方法は、ステアド法 (steered method) であり、どの直流真空アーク蒸着装置にも採用されている。ステアド法とは、陰極表面に磁

界を印加し、陰極点を陰極表面で強制的に運動させる方法である。陰極点が陰極表面の一点にとどまっていると、陰極点周りの過熱が進むことで大量のドロップレットが放出されるようになる。陰極点を移動させることで、陰極点周りの過熱を防ぎ、ドロップレットの発生量を抑制するものである。磁界に絡む陰極点の運動は、電子の挙動ではなく、前述のイオン雲から陰極へ戻ってくるイオンの挙動に左右されるため、フレミングの法則で予測される方向とは逆の方向に運動する。これを逆駆動 (retrograde motion) と呼ぶ。ステアド法は、Ti や TiAl, Cr などの陰極に対しては陰極点運動が高速となりドロップレットの微小化、発生量抑制に有効であるが、融点の高い黒鉛の場合には、磁界によって陰極点があまり駆動されないため、ドロップレットの発生抑制には有効な手段とは言い難い。なお、ステアド法には、陰極点の減り方を制御するという意味もあり、次のフィルタードアークでも採用している。

4.2.3 フィルタードアーク蒸着 ([1-13])

ドロップレットを生成膜に付着させないようにする手法として、フィルタードアーク法 (FAD: filtered arc deposition) がある。Aksenov [9] によりトーラス状の方式が提案されて以来、多くのフィルタ形状が提案されている。当初、Ti などの金属陰極のドロップレットの付着防止のトーラスフィルタが提案された。金属陰極のドロップレットは溶融状態にあるため、フィルタダクト壁に付着させるというものである。フィルタードアークでは、陽極は真空チャンバでなく、陽極近傍に独立して設置される。陰極と陽極との間で発生したアークプラズマを、ダクトに沿って配置した電磁コイルで形成した磁界によって基板方向へ輸送するものである。軽い電子が磁界によるローレンツ力によって輸送され、その電子が作るパスに沿ってイオンがクーロン力で輸送されるというものである。結果として、ビーム状のプラズマとなる。イオンの輸送効率を最適化するためには、ダクトへ逃げる電子を抑制するため、ダクトにもバイアスを印加する。つまり、フィルタードアークでは電磁界によって、真空アークで発生したプラズマをビーム状に基板方向へ輸送し、その途中でドロップレットをトラップし、クリーンプラズマビームを得る。なお、フィルタードアークの場合、原子や分子などの中性粒子は輸送されないため、イオン量の多いプラズマ成膜方法である。

ところが、黒鉛陰極のドロップレットは固体状であるため、ダクト壁で付着せず、ダクト自体がかえってガイドになってしまう。そこで考案されたのが、FCVA (filtered cathodic vacuum arc) や T-FAD (T-shaped filtered arc deposition) [10] である。前者は、シンガポール NTI 社のオフプレーンダブルベンド (off-plain double bend) 型フィルタードアーク蒸着装置の通称である。同装置はハードディスクドライブの磁気ピックアップの保護膜として実用されている。文献などでも利用されているのをよく見かける。FCVA は、2 個のトーラス状ダクトを 3 次元的に捻って接続した形を呈している。ダクト内には蛇腹状のバッフルが設置されており、このバッフルでドロップレットのダクト内進行を抑制している。

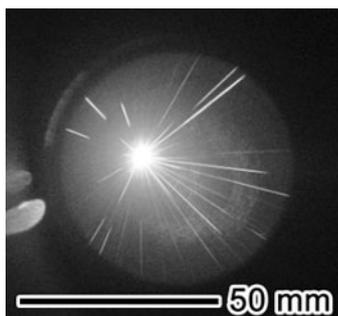


図 1 黒鉛陰極点の様子 [8].

T-FADは筆者らの開発装置である。黒鉛のドロップレットをプラズマ中から除去するために考案したものである。同装置のイメージを図2に示す。T-FADは、T字状のフィルタダクトを有し、プラズマをT字箇所まで直角に曲げて輸送し、ドロップレットは陰極と直面する方向のダクトで回収するものである。これまでのフィルタードアーク装置とは異なり、ダクト内壁や蛇腹バツフルでドロップレットを捕集するのではなく、ドロップレットを陰極と直面するダクト全体で捕集するものであり、特に固体内壁で反射する黒鉛ドロップレットの除去に効果的である。以下、装置の機能と動作の概略を簡単に説明する。T字状のフィルタダクトの一端に、黒鉛陰極と金属陽極とを配置し、その間で直流真空アーク放電を発生させる。陽極の外部に設けた電磁コイルが発生する磁界によって、陰極-陽極間で発生したアークプラズマをダクト方向にビーム状に引き出す。T字部の外部に配置した電磁コイルが発生する磁界によって、プラズマビームを屈曲し、成膜チャンバ・基板方向へ導く。ダクトとチャンバとの接続箇所配置した2組の電磁コイルを用い、プラズマビームを上下左右にスキャンし、成膜範囲を確保したり、均一分布を得たりする。

4.3 膜質制御と応用例

4.3.1 制御パラメータ

真空アーク蒸着法において、DLC膜を形成する場合、重要な制御パラメータは次のとおりである。

- ・陰極黒鉛材料
- ・運転圧力・雰囲気
- ・アーク電流
- ・基板印加バイアス
- ・成膜プロセスレシピ
- ・ダクト印加磁界・バイアス

これらは自ら制御できるため、一次パラメータである。電極材料はものによっては、陰極点が電極表面を運動せず潜り込んでしまっただ陰極の均一消耗が困難であったり、ドロップレットの発生量が多かったり、アーク放電の自己消弧が頻繁に発生したりする。このような点を踏まえて適切なものを利用する必要がある。圧力は低ければ低いほど、発生したイオンのエネルギーを損失しないし、不純物の混

入になるため、硬く純度の高いta-Cが形成できる。また、チャンバ壁面に水分が付着していると水素含有DLCになりかねないので注意が必要である。アーク電流は、大きいほどイオンフラックスが高くなり、成膜速度が速くなるが、ドロップレット発生量も増える。基板印加バイアスは、DLCの密度を制御できる。ダクト印加磁界・バイアスは、輸送するイオンフラックスを制御する。イオンフラックスはイオン電流としてダクト出口で計測する場合が多い。

二次パラメータとして極めて重要なのは、基板温度、厳密に言えば、成膜しているあるいは成長している膜自体の温度である。膜温度の直接計測・連続計測は容易ではないため、通常サーモラベルで到達温度をモニタする。経験的に成膜到達温度が100℃を超えるとDLCの密度が減少する。つまり、軟化する。150℃を超えると高性能ta-CとはいにくいDLCとなる。つまり、a-Cになる。生産現場では成膜到達温度がモニタされ管理されているが、学術論文などではそれらの記述がないものが多く、モニタされていないと想像されるものが多く、注意を要する。基本的には、成膜速度を増加する、すなわち、アーク電流を増加したり、イオンフラックスを増加したりすれば、成膜温度は増加する。すなわち、成膜速度の向上とDLCの高密度化とは表裏の関係である。両方を満足するためには、適切な装置構成と適切な成膜レシピが必要である。

なお、真空アーク蒸着において、ta-Cとa-Cとは、基板バイアスと成膜温度とを制御して作り分けられる。ta-Cを形成するには、基板バイアスを数十~150 eV、かつ、基板温度100℃程度以下。a-Cを形成するには、基板バイアスを200 eV以上、あるいは、基板温度を200℃以上にする。なお、これらのバイアスは直流の場合である。パルスバイアスの場合には条件がやや異なる。

4.3.2 均一分布と膜厚制御 ([14-16])

DLC膜に限ることではないが、一般に、高機能薄膜を高精度で利用しようとする場合、平面だけでなく曲面物体に対して、均一な分布が要求されることもある。また、その均一な分布の膜厚が所定通りである必要もある。例えば、レンズの反射防止膜などである。DLC膜に対しても同様な要望がある。

レンズ金型やSiウエハなどへのta-C膜形成に対し、均一分布と膜厚制御を行うシステムを開発した。均一分布を得るために開発したワークテーブルを図3に示す。従来の生産機においては、1軸導入の自公転ワークテーブルが用いられる。これに対し、今回開発したものは、3軸導入の3モーションシステムである。同機は、ワークの面回転、振り、公転の3モーションができる。同写真では、横を向いている4個の円状フランジにワークを固定する。均一分布制御の場合、ワーク固定フランジを回転させながら、固定フランジの振りモーションとプラズマビームのスキャンモーションとを連動させた成膜を行う。

次に、膜厚制御について概説する。膜厚を制御するためには、膜厚を計測する必要がある。後述するように、DLC膜は光学特性[16]を有するため、これを利用することにし

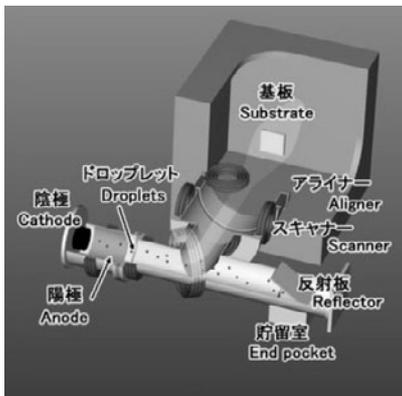


図2 T字状フィルタードアーク蒸着装置T-FADのイメージ図[2].

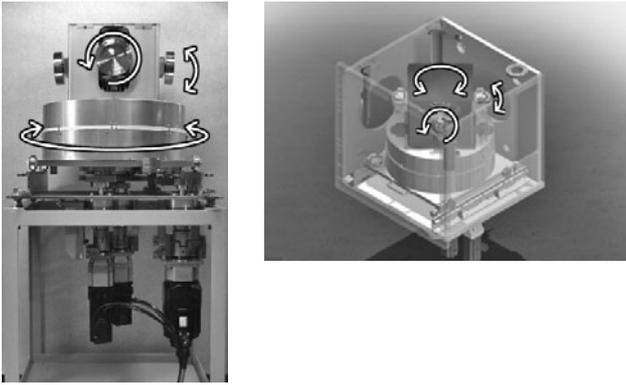


図3 3軸ワークテーブル (左:実機, 右:チャンバ内イメージ).

た。つまり、成膜チャンバ内にある膜の反射率を、図4のように計測し、その干渉パターンから膜厚を求めるといものである。真空アーク蒸着において、陰極点が自己消弧したり、陰極材料が方減りしたりするなどが原因で、他の条件が同じでも成膜速度が一定にならない。そこで、追込み成膜で所望の膜厚を得ることにした。追込み成膜とは次のようなものである。初回成膜は最大成膜速度を仮定した成膜時間を設定し、膜厚90%を目標として成膜する。その後、膜厚を計測して、その時の成膜速度を算出する。2回目はその成膜速度をもとに、残りの膜厚の90%を目指して成膜する。このようにすると大凡2回の成膜で概ね所望膜厚の誤差-5%以内を実現できる。3回目を行えば、-1%以内も可能である。

4.3.3 DLCの特性

水素フリーのDLCを分類して理解する場合、硬さ、密度、光学定数を把握するのが適当であろう。これらはもちろん相互に関係しており、ダイヤモンドやグラファイト(黒鉛)とも関連している。

図5は、膜密度と硬さとの関係を示したものである。硬さおよび密度は、それぞれ、ナノインデントおよびXRR(X線反射率法)で計測した。図中のta-C(H)とta-C(S)は、それぞれ、硬めおよび柔らかめのta-Cであり、基板バイアスを変えて作り分けた。同図から、高密度であれば硬いという関係が明確である。水素フリーDLC(ta-C, a-C)に関しては、その関係がほぼ直線的である。水素が入ると密度が低くなり、硬さも小さくなる。

図6に可視光顕微ラマン分光計測における I_D/I_G 比(強度)と膜密度との関係を示す。一部公開データ[17]を用いた。スパッタ法、通常アーク法(VAD)、およびFADで作製したDLC(a-Cおよびta-C)膜は、両者の関係が直線的であることがわかる。図中には経験式を記載した。図5および図6の関係を用いれば、比較的計測が容易なラマン分析計測の結果から、大凡の硬さや密度を推定することができる。

図7に光学定数を示す[18]。屈折率については、水素フリーDLC(ta-C, a-C)は、概ねダイヤモンドとグラファイト(黒鉛)との間の値を取ることがわかる。それらの材料に関し、密度と屈折率が負の傾きのほぼ直線的な関係にある。消衰係数は、グラファイト、a-C, ta-C, ダイヤモン

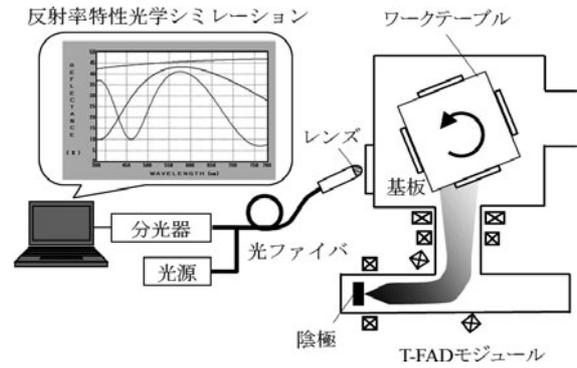


図4 膜厚計測システム[16].

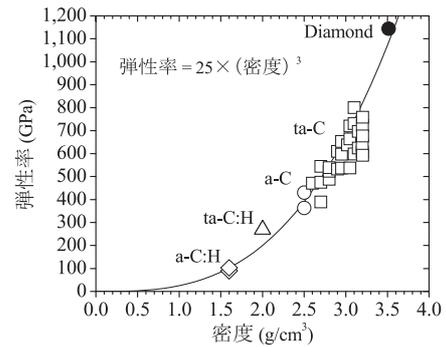
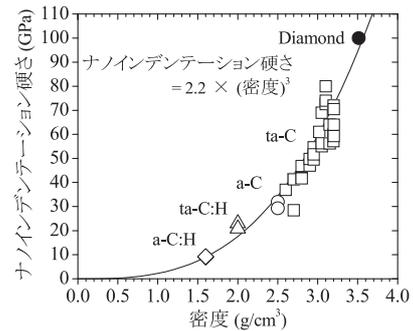


図5 各種DLC膜の密度と硬さおよび弾性率.

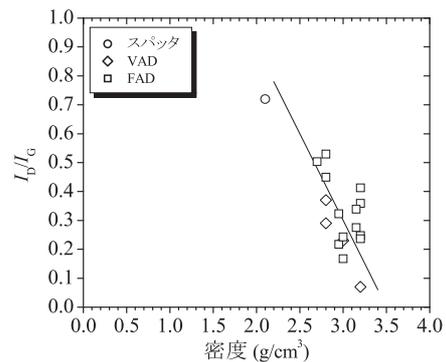


図6 各種DLC膜の I_D/I_G 比と密度との関係.

ドの順に、密度と負の関係を持って低くなるということがわかる。つまり、ダイヤモンドに近いほど、消衰係数が小さく、透明であるということである。なお、水素が入ると、屈折率は大きく減少し、消衰係数も小さくなる。このようなDLC膜は、膜厚およそ1μm以下であれば、膜厚によって、干渉に起因して独特の色を呈する。製造現場での経験者は、形成膜を見て大凡の膜厚を判断している。

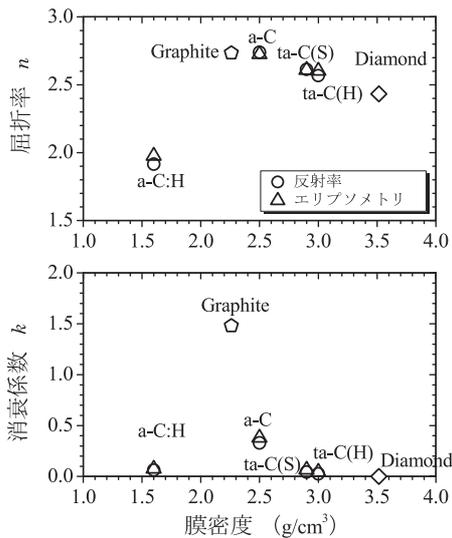


図7 各種 DLC 膜の光学定数[19].

4.3.4 応用例[17-23]

DLC 膜の応用は数多い。特に FAD で形成したドロップレットフリーの高品質 ta-C 膜に関し、現時点での有効な実用的応用は、主に次の二つである。

- (1) 切削工具への保護膜・摺動性膜
- (2) ガラスレンズモールドプレス用金型への離型性保護膜

その他、自動車部品など油中摺動部材コーティング、ナノ・マイクロパーツ、軟 X 線用回折格子膜、などが検討されている。

切削加工においてはできるだけ冷却や潤滑のための油を使いたくない。被加工物自体や切削油の後処理が必要になるからである。その意味で、今日ではアルミ合金の切削には ta-C コーティングが欠かせない。研究室でも、アルミ銘板の彫刻試験を行ったところ、通常であれば切削油を用いるところ、まったく用いずとも良好な切削性能が得られた[8,21]。なお、ta-C コートは銅系材料のドライ加工にも有効である。

ガラスレンズは従来研削・研磨という工程で製造されてきた。しかし、最近では、レンズ組数を少なくできる非球面レンズの量産のため、高温でプレス成型するモールドプレス法で製造されるようになってきた。同法では、ガラスレンズが金型に付着するのを防ぎ、つまり離型を容易にし、かつ、金型表面の傷つきを防ぐため、ta-C がコーティングされている。レンズは超精密部品であることから、工具応用時よりも高レベルの品質が要求される。現在のところ ta-C 膜の使用推奨上限は650℃程度であるが、より高い温度での利用も要求されるようになるかもしれない。

Ta-C コーティングの自動車部品への応用としては、バルブリフタやピストンリングがあるが、今のところ、フィルタードアークでなく従来の通常アーク蒸着が用いられている。

次世代応用として、NEMS や MEMS への応用の可能性を探るため、マイクロパーツの形成試作が行われている[24]。現在、Si ウェハ上に形成した ta-C 膜の加工技術の開発を進めており、例えば、ギヤパターンを形成し、その単

離を実現している。

4.4 おわりに

最近の親切的論文・解説では、水素フリー DLC と水素含有 DLC が区別されて記載されるようになってきている。しかし、単に DLC と書かれている場合も多く、どんな DLC を対象として議論されているのか、注意が必要である。また、製品カタログなどでは区別した記述は極めて稀である。利用者の立場からは、水素フリーと水素含有 DLC の特性の違い、利用法の違いをよく理解しておかなければ、誤った選択をする可能性もあることを知っておいていただきたい。

通常の真空アーク蒸着法で形成した ta-C 膜は、ラッピングによってドロップレットを除去した後、利用されることもある。ガソリンエンジンのバルブリフタやピストンリング、一部のアルミ合金のドライ切削用工具などである。一方、T-FAD やその他のフィルタードアーク蒸着法で形成されたドロップレットフリーの高品質 ta-C 膜は、現在、アルミ合金のドライ切削用工具、プリント基板用穴あけ工具、ガラスレンズモールド形成用金型の保護膜として、実用されている。中でも、ガラスレンズ金型は、600℃以上の高温で利用されることや高い表面精度が要求されることなどから、ドロップレットの付着がない、ピンホールがない、均一である、という高品質性が求められる。したがって、装置や成膜プロセスも更なる進化が求められる。なお、他の解説では、高品質な ta-C をスーパー DLC とも呼んでいる。

現在のところ、高品質な ta-C (スーパー DLC) はフィルタードアーク蒸着法でしか製造できない。フィルタードアーク装置は一般的なプラズマ CVD 装置やスパッタ装置よりも高価であるため、装置の拡販が緩やかである。しかしながら、今後、ta-C の特性・特徴の更なる把握・理解とともに成膜装置が普及することによって、広範の分野における魅力的な応用やビジネスが展開できると期待している。また、水素フリーでありながら、別の元素を含むことによって新しい機能を発現する可能性にも期待したい。

謝辞

本章の執筆にあたり、現修士学生 藤井裕真君の協力を得た。また、膜密度の計測には神奈川県産業技術センターの金子智氏、硬さの計測にはエリオニクス社および岡山県工業技術センターの國次真輔氏の協力を得た。ここに謝意を表す。

参考文献

- [1] 滝川浩史：表面技術 58, 572 (2007).
- [2] 滝川浩史：真空 51, 20 (2008).
- [3] R.L. Boxman et al., (Eds.), *Handbook of Vacuum Arc Science and Technology -Fundamentals and Applications-* (Noyes Publications, 1995).
- [4] 滝川浩史：マテリアルステージ 7, 78 (2007).
- [5] 滝川浩史：表面技術協会第119回講演大会要旨集 318-

- 321 (2009).
- [6] 滝川浩史：ニューダイヤモンド **26**, 26 (2009).
- [7] 田上英人 他：化学工業 **63**, 34 (2012).
- [8] 滝川浩史：月刊トライボロジー **305**, 38 (2013).
- [9] I.I. Aksenov *et al.*, Sov. J. Plasma Phys. **4**, 425 (1978).
- [10] H. Takikawa and H. Tanoue, IEEE Trans. Plasma Sci. **35**, 992 (2007).
- [11] H. Takikawa *et al.*, Surf. Coat. Technol. **163/164**, 368 (2003).
- [12] M. Kamiya *et al.*, Vacuum **83**, 510 (2009).
- [13] 滝川浩史：電気学会誌 **123**, 648 (2003).
- [14] 奥田浩史 他：プラズマ応用科学 **18**, 159 (2010).
- [15] 滝川浩史：天田財団助成研究成果報告書 26, AF-2010004 (2013).
- [16] 滝川浩史：光学薄膜の最適設計・成膜技術と膜厚・膜質・光学特性の制御, 技術情報協会 299 (2013).
- [17] 株式会社不二 WPC:DLC 技術資料, http://www.fujiwpc.co.jp/data/doc/DLC_data.pdf
- [18] 神谷雅男 他：プラズマ応用科学 **17**, 125 (2009).
- [19] 瀧 真 他：光技術コンタクト **609**, 15 (2014).
- [20] 滝川浩史：最新高機能コーティングの技術・材料・評価 第5章 スーパー DLC 膜 (シーエムシー出版, 2015).
- [21] 滝川浩史：機能性材料 **34**, 24 (2014).
- [22] 滝川浩史：MST (メカニカル・サーフェス・テック) No. 007 14 (2012).
- [23] 瀧 真 他：表面技術 **58**, 589 (2007).
- [24] S. Kiyohara *et al.*, MRS Proceedings 1511 (2013).