Institut Rayonnement Matière de Saclay

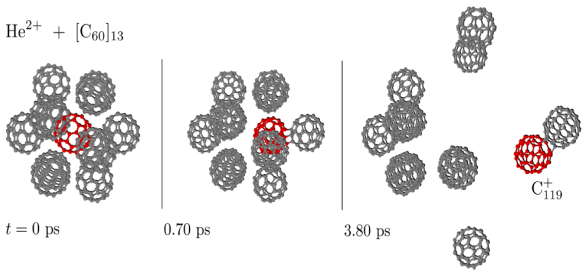
Brèves de l'IRAMIS

N° 221 - Mai 2013 iramis-i.cea.fr

Une nouvelle voie pour la formation de fullerènes géants

Lamri Adoui : *T : 02.31.45/47.54,* adoui@ganil.fr. Patrick Rousseau : /48.06, p.rousseau@ganil.fr

L'étude des mécanismes de formation de fullerènes géants dans des conditions aussi différentes que celles de la chimie du milieu interstellaire ou dans le domaine de la combustion reste un sujet ouvert. Différents scenarii sont proposés pour expliquer la nucléation de telles espèces. Une récente étude conjointe, expérimentale et théorique, menée en collaboration avec les Universités de Stockholm et de Madrid, nous permet de proposer un nouveau chemin pour la formation d'espèces très spécifiques de fullerènes géants chargés. Cette formation résulte de la collision entre des ions He^{2+} de basse énergie produits sur la ligne de faisceau ARIBE du GANIL et des agrégats de fullerènes initialement neutres. La collision peut en effet conduire dans un premier temps, dans le cas de collisions pénétrantes, à l'éjection prompte d'un ou deux atomes de carbone d'une molécule de l'agrégat. L'espèce C_{59} ou C_{58} résultante, très réactive, réagit pendant la dissociation - sur des échelles de temps de l'ordre de la picoseconde - avec une autre molécule de l'agrégat formant des espèces C_{119} ou C_{118} très stables. Les deux molécules sont alors liées entre elles de façon covalente, avec une structure en forme d'haltères. Cette structure est énergétiquement beaucoup plus favorable que la fusion des deux molécules en une cage unique. Nous avons ainsi démontré qu'une énergie relative de 0,9 eV dans le centre de masse des deux molécules était suffisante pour initier une telle réaction. Ces résultats démontrent que les collisions avec des ions multichargés conduisent à des processus de fragmentation non-statistique et donc à une dissociation très spécifique, différente de celle induite par des photons. Ces nouveaux chemins, conduisant à la croissance de systèmes moléculaires complexes après réarrangement de liaisons internes à l'agrégat, suggèrent que les collisions ion - molécule doivent être prises en compte dans les études de la physico-chimie du milieu interstellaire dédiées à la formation de fullerènes ou d'hydrocarbures Aromatiques Polycycliques géants.

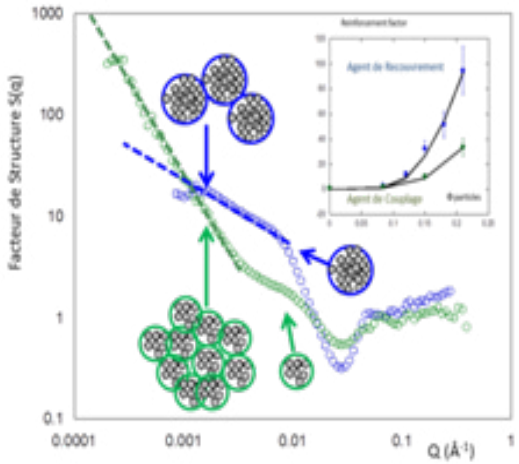
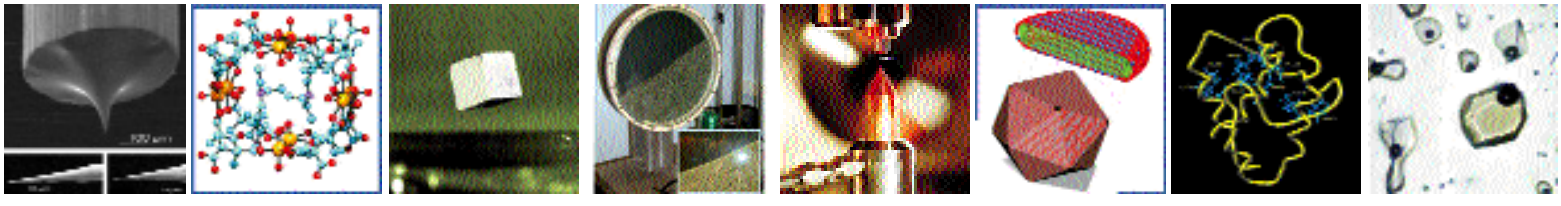


Simulations de dynamique moléculaire dans le cas de la collision d'ions He^{2+} avec un cluster de 13 molécules de fullerène. L'instant *t = 0* correspond au moment où un atome de carbone est éjecté au cours d'une collision binaire entre le projectile et un atome de carbone d'un fullerène (en rouge). L'ion C_{59}+ réagit alors avec un fullerène voisin pour former une espèce C_{119}+, les deux molécules étant liées de façon covalente.

Mécanismes de renforcements mécaniques dans des matériaux modèles de pneumatiques

A. Bouty (1,2) : T : 01.69.08/6460, adrien.bouty@ca.fr. F. Boué (1) : /6210, francois.boue@cea.fr.
J. Jestin (1) : /5162, jacques.jestin@cea.fr. L. Petitjean, C. Degrancourt, M. Couty (2).
(1) Laboratoire Léon Brillouin CEA-CNRS, CEA Saclay 91191 Gif/Yvette cedex.
(2) Manufacture Française des Pneumatiques MICHELIN, Clermont Ferrand : T : 04.73.32.20.00

Pour optimiser les performances des pneumatiques en terme de renforcement mécanique, d'adhésion ou de consommation de carburant, il faut comprendre le rôle de la structure locale des renforts et des chaînes de polymère sur les propriétés marcroscopiques du pneumatique. Nous travaillons sur des systèmes simplifiés composés d'une matrice de SBR (Styrène-Butadiène-Rubber) renforcée avec des particules de silice. La mise en œuvre des composites est réalisée par évaporation du solvant dans des conditions contrôlées. La dispersion dans la matrice, déterminée par Diffusion des RX aux Petits Angles (DXPA) et Microscopie Electronique, est modulée par le biais d'additifs, un agent de recouvrement (AR) qui interagit avec la silice et un agent de couplage (AC) qui interagit avec la silice et avec les chaînes de la matrice. Les particules forment des agrégats primaires, dont on peut quantifier la taille et la forme, qui s'organisent à une échelle supérieure en réseau secondaire dépendant de l'additif utilisé. La conformation des chaînes est mesurée par Diffusion des Neutrons aux Petits Angles (DNPA) en mélangeant dans des conditions spécifiques des chaînes hydrogénées et deutériées. Quelle que soit la dispersion des charges, la conformation des chaînes de la matrice reste inchangée ce qui suggère une contribution limitée de la déformation des chaînes sur le renforcement. Par ailleurs, on peut modéliser le renforcement mécanique avec un modèle de percolation dont les paramètres dépendent directement de la structure des charges (dimension fractal et nombre d'agrégation) : le renforcement devient important avec la formation du réseau de charges secondaires et son amplitude dépend directement de la taille et de la connectivité des agrégats formant le réseau.



En DXPA, on parvient à caractériser la morphologie des agrégats (taille, compacité) à différentes échelles entre 30-40 et 300 nm en fonction de l'additif AR (bleu) et AC (vert). En insert, les facteurs de renforcement mécanique correspondants dont l'amplitude dépend de la morphologie et de la connectivité des agrégats.