

Identification du mode de croissance de multi-couches de nanotubes de carbone alignés

M. Pinault, M. Mayne-L'Hermite C. Reynaud,

CEA Saclay - DSM/DRECAM/Service des Photons, Atomes et Molécules

H. Khodja,

CEA Saclay - DSM/DRECAM/Laboratoire Pierre Sue

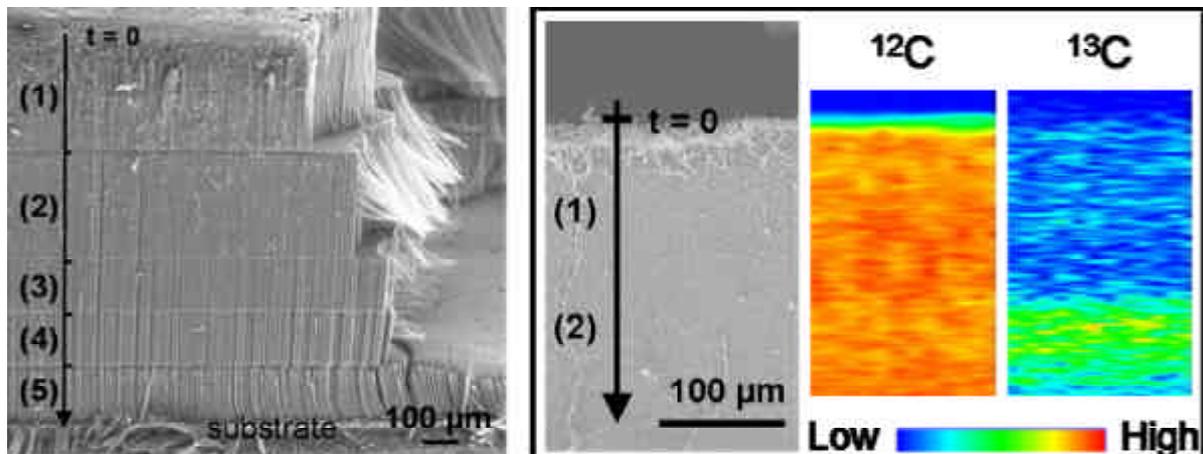
V. Pichot, P. Launois,

Laboratoire de Physique des Solides, CNRS UMR 8502, Univ. Paris Sud, 91405 Orsay

Depuis leur découverte par Iijima en 1991, les nanotubes de carbone sont toujours aussi fascinants par leur structure et leurs propriétés remarquables. Une façon simple de les produire consiste à faire réagir, sur un substrat chauffé, une molécule carbonée et une nanoparticule catalytique (Fer, Nickel, Cobalt). Plusieurs variantes de cette méthode de production existent dont les mécanismes de croissance intriguent encore la communauté scientifique. C'est le cas de la méthode où l'on amène simultanément au contact du substrat chaud des molécules précurseurs contenant les nanoparticules catalytiques et le carbone. Pour cette méthode, deux mécanismes de croissance ont été proposés : un mécanisme dit "par la base" où le nanotube pousse à partir de la particule catalytique fixée sur le substrat initial, et un mécanisme dit "par le haut" où le nanotube pousse par son extrémité libre où la particule catalytique s'est fixée. Le cheminement exact des espèces réactives carbonées et catalytiques pendant la croissance était encore totalement inconnu.

Une méthode de synthèse utilisant un aérosol de toluène et ferrocène qui réagit sur le substrat chaud a été développée à Saclay. Des tapis de nanotubes de carbone multiparois, propres et parfaitement alignés sont obtenus. La vitesse de croissance est importante, et l'épaisseur du tapis peut atteindre quelques millimètres. L'étude des premiers instants de la croissance a révélé la formation initiale de nanoparticules catalytiques sur le substrat, suivie d'une croissance des nanotubes "par la base". Mais des questions subsistent : comment la croissance peut-elle continuer "par la base" lorsqu'on forme un tapis de plusieurs millimètres ? Quel est le cheminement des atomes de carbone ?

Pour répondre à ces questions, l'équipe a eu l'idée d'effectuer des synthèses séquencées, où le processus de croissance est interrompu et repris dans des conditions identiques ou modifiées. Ceci a permis de découvrir un phénomène remarquable : **la formation d'un tapis multi-couches au cours de laquelle la croissance a toujours lieu sur le substrat en soulevant les couches déjà présentes.** C'est ce que l'on peut voir sur l'image de gauche. La hauteur de la couche étant proportionnelle à la durée de la séquence, les chercheurs ont pu de façon certaine attribuer la couche du haut à la première séquence et celle du bas à la toute dernière.



Contrairement à ce qui était imaginé, les précurseurs diffusent donc à travers toute la hauteur de la couche préexistante pour former une nouvelle couche sur le substrat et ce phénomène de diffusion n'est pas limitant pour la croissance des couches successives. De plus,

on observe que la croissance nécessite une alimentation continue en précurseur métallique. En effet, en son absence, seule une fine couche de carbone amorphe se forme, sous laquelle les nanotubes croissent à nouveau dès qu'on réintroduit le précurseur métallique.

Enfin, le cheminement exact des atomes de carbone a été mis en évidence en utilisant de façon séquentielle deux solutions, la seconde étant enrichie en isotope 13 du carbone. La cartographie des échantillons obtenue en utilisant la microsonde nucléaire de Saclay (image de droite) permet de montrer que **les atomes de carbone diffusent bien au travers de toutes les couches de nanotubes préexistantes et de celle en croissance, pour réagir sur les nanoparticules catalytiques au niveau du substrat. Les atomes de carbone ne s'incorporent dans la structure du nanotube qu'au contact de la particule catalytique et ne migrent pas ensuite le long de la structure du nanotube.**

Ainsi, non seulement les mécanismes régissant la croissance des nanotubes alignés ont été grandement élucidés, mais on possède désormais un moyen de former des multicouches contrôlées de nanotubes de carbone alignés, ce qui ouvre la voie à de multiples applications.

Références :

[1] [M. Pinault, M. Mayne-L'Hermite, C. Reynaud, V. Pichot, P. Launois and D. Ballutaud, Carbon 43 \(2005\) 2968.](#)

[2] "[Evidence of sequential lift in growth of aligned multi-walled carbon nanotube multilayers](#)" M. Pinault, V. Pichot, H. Khodja, P. Launois, C. Reynaud and M. Mayne-L'Hermite, Nano Lett. (2005) in press. <http://dx.doi.org/10.1021/nl051472k>