

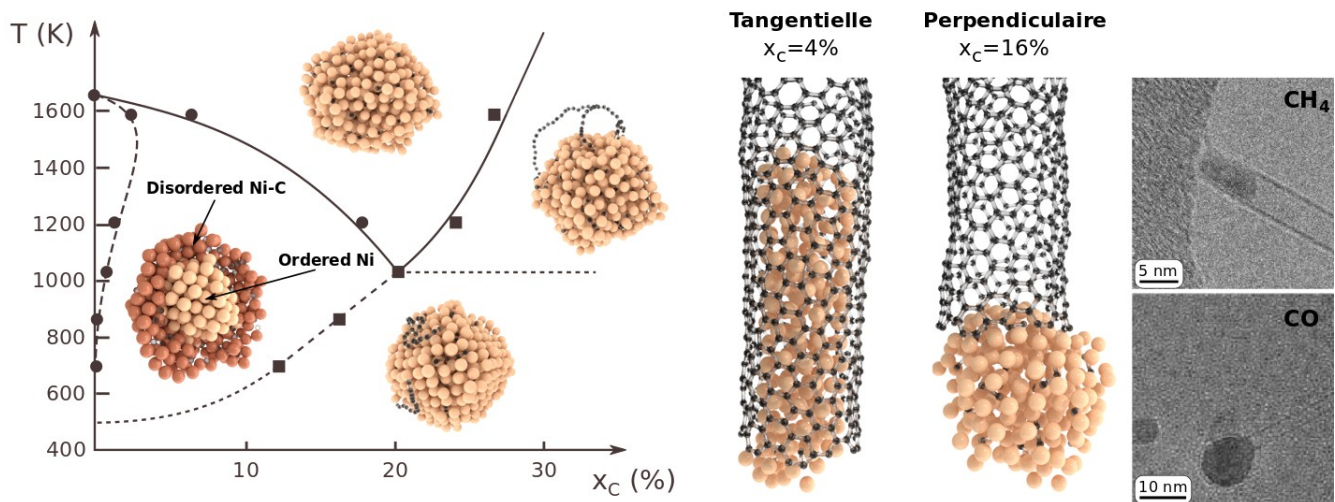
# Simulation de croissance de nanotubes de carbone

## Sélectivité en diamètre, longueur et chiralité

Y. Magnin, H. Amara, F. Ducastelle, A. Loiseau, C. Bichara

Les nanotubes simples parois (SWCNTs) observés par Iijima en 1991 présentent des propriétés électroniques (métallique/semiconducteur), fonction de leurs chiralités. Les SWCNTs sont généralement synthétisés par dépôt chimique en phase vapeur (CVD). Cette technique consiste à faire agir un précurseur carboné sur une nanoparticule métallique (NP), afin de catalyser le carbone et initier leur croissance. Les tubes produits par CVD présentent de fortes dispersions en chiralité, diamètre et longueur, qui rendent pour le moment l'exploitation industrielle des SWCNTs relativement coûteuse. La sélectivité structurale des SWCNTs (diamètre, longueur, chiralité) représente à ce jour un défi théorique et expérimental majeur nécessaire à l'intégration des nanotubes dans des dispositifs grand public. L'enjeu technologique lié à la sélectivité chirale motive depuis 25 ans de nombreux travaux à l'origine d'une littérature abondante, sans que le problème n'ait pu être résolu pour autant.

A partir d'un modèle de liaisons fortes [1], implémenté dans un algorithme Monte Carlo, nous mettons en évidence deux modes de croissance des SWCNTs, figure 1. Un mode « tangentiel » correspondant à des faibles concentrations de carbone ( $x_C$ ) dans le catalyseur, et un mode perpendiculaire pour de fortes  $x_C$ , figure 1 [2,3]. Ce comportement peut être généralisé pour différents types de NPs, chimie, taille, etc... Grâce au développement d'un modèle thermodynamique, nous montrons que la concentration de C dans la NP pendant la synthèse permet d'obtenir une sélectivité en diamètre et en longueur des SWCNTs [3]. Conjointement aux simulations numériques, ces différents comportements ont été observés expérimentalement [3] et sont expliqués à l'aide du diagramme de phase de NPs Ni-C, figure 1 [4]. Enfin, l'origine de la chiralité des tubes est mise en évidence. Celle-ci résulte de la chimie de la NP et de l'entropie de configuration du bord de tube [5]. Nous illustrons les mécanismes de sélectivité chirale à l'aide de diagrammes de chiralité. Le modèle développé présente un bon accord avec l'expérience et permet ainsi de guider le choix des paramètres de croissance pour une synthèse sélective des nanotubes de carbone.



**Figure 1 :** (gauche) Diagramme de phase d'une nanoparticule Ni-C. (droite) Mode de croissance tangentielle (faible concentration de carbone dans le catalyseur) et perpendiculaire, large concentration de carbone dans le catalyseur.

[1] H. Amara et al., Phys. Rev. B **79** (2009), pp. 014109

[2] M.-F. Fiawoo et al., Phys. Rev. Lett. **108** (2012), pp. 195503

[3] M. He, Y. Magnin, et al., Carbon **113**, pp. 231

[4] Y. Magnin, A. Zapelli et al., Phys. Rev. Lett. **115** (2015), pp. 205502

[5] Y. Magnin, Science **362** (2018), pp. 212