

VOYAGE DEPUIS LES PRECURSEURS MOLECULAIRES JUSQU' AUX NANOCRISTAUX D'IMOGOLITE ET D'ALLOPHANE. IMPORTANCE DES ETATS INTERMEDIAIRES.

P. Picot, T. Lange, F. Testard, F. Gobeaux, A. Thill

Université Paris-Saclay, CEA, CNRS, NIMBE, 91191 Gif-sur-Yvette, France

Courriel : antoine.thill@cea.fr

Les nanoparticules, souvent appelées proto-imogolites, ont été identifiées comme un intermédiaire dans le processus de formation des nanotubes d'imogolite dès 1979 [1,2]. Leur composition et leur structure sont désormais bien documentées dans le cas de l'imogolite synthétique. Les proto-imogolites ont une structure locale proche de celle de l'imogolite ce qui induit une courbure. Dans les premiers temps de la croissance, celles-ci sont « ouvertes », c'est à dire que les deux faces (interne et externe) aux caractéristiques physico-chimiques très distincts sont accessibles [3]. Au cours d'une phase de croissance, elles évoluent vers des nanocristaux (allophane, imogolite) [4]. La caractérisation et la quantification de ces proto-imogolites est cependant délicate. Leur mode de formation et l'impact de leurs caractéristiques au cours de la réaction constitue notre sujet d'étude. En utilisant la diffusion synchrotron des rayons X aux petits angles couplée à la spectroscopie Raman, nous observons que les proto-imogolites se forment lors de l'étape initiale de la co-précipitation des précurseurs moléculaires d'aluminium et de silicium grâce à un processus de réorganisation [5]. La forme des proto-imogolites initiales, avant l'étape de croissance, dépend des conditions de synthèse (Figure 1). Cette forme et notamment leur taille moyenne contrôle les caractéristiques du produit final. Nos observations tendent à confirmer qu'il existe une transition de courbure pour les proto-imogolites qui semble déterminer le type de nanocristal final (tube ou sphère). Nous montrons également à l'aide d'images cryo-TEM qu'à la fin de la phase de croissance, des nanostructures non tubulaires coexistent avec des nanotubes. Les méthodes permettant de les quantifier et les protocoles permettant de purifier les échantillons sont discutés.

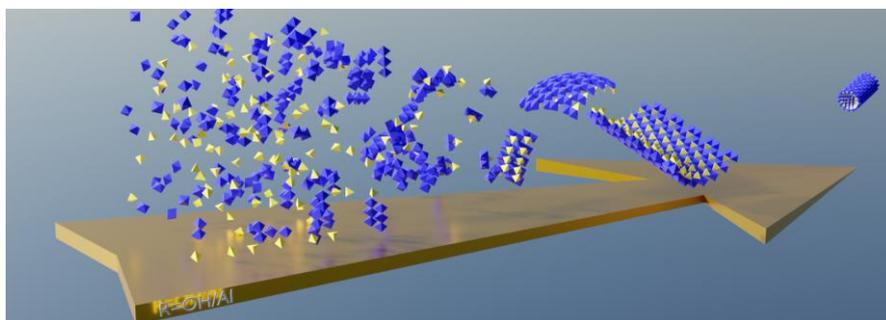


Figure 1. Évolutions des proto-imogolites au cours de la synthèse : du mélange des réactifs à l'étape de croissance. En bleu, les octaèdres d'aluminium et en jaune les tétraèdres de silicium (les oxygènes et les hydrogènes sont omis).

Remerciements :

Cette étude a été financée par l'ANR BENALOR (ANR-20-CE09-0029).

Références :

- [1] C. Levard and I. Basile-Doelsch. Geology and mineralogy of imogolite-type materials. *Developments in Clay Science*, 7:49–65, 2016
- [2] V.C. Farmer, A.R. Fraser, and J.M. Tait. Characterization of the chemical structures of natural and synthetic aluminosilicate gels and sols by infrared spectroscopy. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 43(9):1417–1420, 1979
- [3] G.I. Yucelen, R.P. Choudhury, A. Vyalikh, U. Scheler, H.W. Beckham, and S. Nair. Formation of single-walled aluminosilicate nanotubes from molecular precursors and curved nanoscale intermediates. *Journal of the American Chemical Society*, 133(14):5397–5412, 2011

- [4] P. Du, P. Yuan, A. Thill, F. Annabi-Bergaya, D. Liu, and S. Wang. Insights into the formation mechanism of imogolite from a full-range observation of its sol-gel growth. *Applied Clay Science*, 150:115–124, 2017.
- [5] P. Picot, T. Lange, F. Testard, F. Gobeaux, A. Thill, Evidence and importance of intermediate nanostructures in the journey from molecular precursors to allophane and imogolite nanocrystals. *Applied Clay Science*. accepted.

Indiquer le nom de la personne à contacter :

Nom : THILL
Prénom : Antoine
Courriel : antoine.thill@cea.fr
Statut : Permanent

Indiquer votre mode de présentation préféré :

Communication orale : X
Communication par affiche :