

## Transitions de phase dans des super-espaces cristallographiques

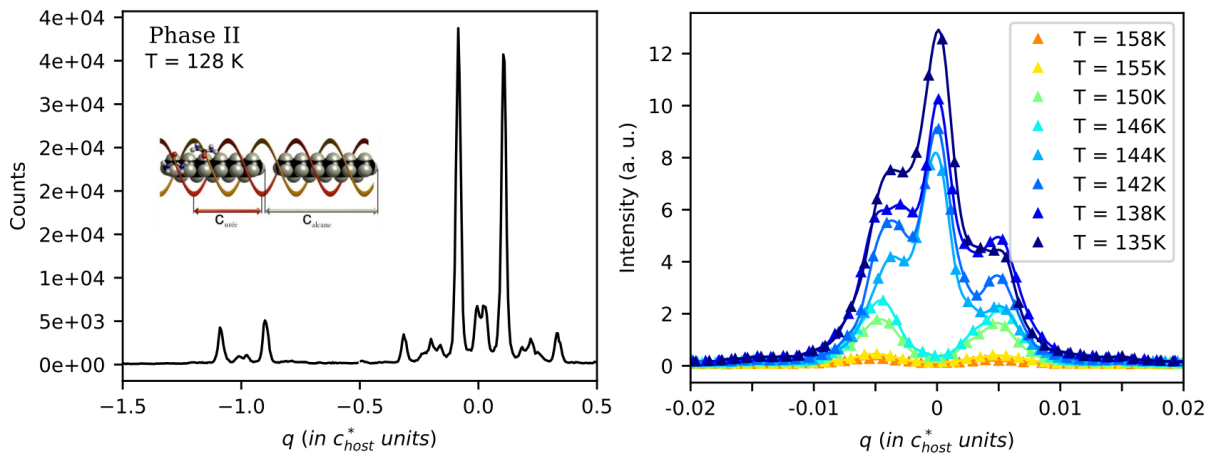


Figure: Les transitions de phase dans les monocristaux de *n*-nonadécane/urée (illustré en insert) se traduisent par l'apparition de lignes de diffraction dites lignes de surstructure, parallèles à la direction d'inter-croissance du composite aperiodique. La figure de gauche représente une ligne de surstructure mesurée par diffusion de neutrons froids dans le composé totalement deutérié sur une large gamme de l'espace réciproque dans sa première phase ordonnée (dite phase II, phase centrée de dimension 5 dans un superespace cristallographique). La figure de droite représente l'évolution en température d'une région extrêmement étroite de l'espace réciproque mesurée par diffraction X selon la même direction, dans un composé totalement hydrogéné, allant de la phase II vers une phase différente (dite phase III, phase primitive de dimension 5 dans un superespace cristallographique). Dans l'espace réel, cela se traduit dans ces deux phases par l'apparition d'une modulation incommensurable supplémentaire d'une longueur d'onde de 0,23 micron.

Les transitions de phase et les phénomènes prétransitionnels dans la matière constituent un sujet de recherche majeur depuis plus d'un siècle (théorie de Landau, de Gennes, groupes de renormalisation,...). Dans le domaine de la matière condensée, les théories appliquées aux cristaux périodiques furent ensuite généralisées aux cristaux dits incommensurables (structuraux, magnétiques) dont la périodicité n'était retrouvée que dans des espaces mathématiques de dimension supérieure à l'espace physique. Certains cristaux sont aperiodiques par construction (quasi-cristaux, cristaux composites aperiodiques). Pour l'instant, il n'y a pas eu d'exemple d'études de transitions de phase de type brisure de symétrie avec une relation groupe/sous-groupe dans des quasi-cristaux et un nombre assez limité de ce type d'études existe pour des cristaux composites aperiodiques.

Une véritable difficulté concernant l'étude des transitions de phase dans des cristaux aperiodiques par construction est liée à l'infinité de pics de Bragg attendue en théorie dans l'espace de diffraction (espace réciproque) d'un tel cristal dans toutes ses phases. Expérimentalement, il apparaît donc souvent la nécessité d'une très haute résolution spatiale pour séparer ces pics de Bragg. Une seconde condition implicite est une excellente qualité cristalline du matériau étudié, l'observation expérimentale étant limitée à la fois par la résolution du diffractomètre et par la mosaïcité du cristal.

En utilisant la diffusion de neutrons froids sur un spectromètre trois axes au Laboratoire Léon Brillouin (Orphée), nous avons ainsi mis en évidence l'apparition d'une modulation incommensurable de très grande longueur d'onde. Ces études combinées à des études de diffraction à l'ESRF sur le spectromètre X inélastique à rétrodiffusion ID28, fonctionnant comme un spectromètre trois axes, ont révélé une longueur de cette modulation supplémentaire de 0,23 micron. Ce résultat a été obtenu sur le cristal composite aperiodique *n*-nonadécane/urée, cristal aperiodique de dimension 4 par construction. Ces études ont ainsi aussi définitivement établi la séquence de phase de ce composé à l'intérieur du super-espace cristallographique. Partant d'une phase de haute symétrie de dimension 4, hexagonale  $P6_122(00\gamma)$ , il présente une première transition de phase à une température  $T_{c1}$  (valeur avec effet isotopique) vers une phase orthorhombique centrée dans un espace de dimension 5  $C222_1(00\gamma)(10\delta)$ , puis une seconde transition de phase à  $T_{c2}$  vers une phase primitive dans le super-espace de dimension 5 lui aussi  $P2_12_12_1(00\gamma)(00\delta)$ .

Cette séquence de phases vérifie la relation de groupe/sous-groupe dans des super-espaces et se décrit ainsi en terme de brisures de symétrie selon Landau. L'utilisation de ces instruments à très haute résolution spatiale donne de nouvelles opportunités pour revisiter les transitions de phase et les phénomènes critiques dans la matière comme discuté [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.184107>].