



**HAL**  
open science

## Dynamique des fluctuations près d'une transition smectique A-nématique du 2e ordre

F. Brochard

► **To cite this version:**

F. Brochard. Dynamique des fluctuations près d'une transition smectique A-nématique du 2e ordre. *Journal de Physique*, 1973, 34 (5-6), pp.411-422. 10.1051/jphys:01973003405-6041100 . jpa-00207402

**HAL Id: jpa-00207402**

**<https://hal.science/jpa-00207402v1>**

Submitted on 4 Feb 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification  
 Physics Abstracts  
 14.70

## DYNAMIQUE DES FLUCTUATIONS PRÈS D'UNE TRANSITION SMECTIQUE A-NÉMATIQUE DU 2<sup>e</sup> ORDRE

F. BROCHARD

Laboratoire de Physique des Solides associé au CNRS,  
 Bâtiment 510, Université Paris-Sud, 91405 Orsay

(Reçu le 2 octobre 1972)

**Résumé.** — La transition smectique A-nématique est similaire à la transition lambda de l'hélium, la phase du paramètre d'ordre jouant un rôle identique dans les deux systèmes. Mais dans la transition smectique A-nématique, on a en plus des fluctuations du paramètre d'ordre  $\Psi$ , des fluctuations de l'orientation des molécules qui sont importantes en phase nématique.

1) En postulant une loi de similarité dynamique pour les fluctuations de  $\Psi$ , on prévoit les comportements suivants :

- a) pour  $T < T_c$ , la vitesse  $s_2$  du second son s'annule comme  $(T_c - T)^{1/3}$ . La constante de perméation  $\zeta$  diverge comme  $(T_c - T)^{-1}$  ;
- b) pour  $T = T_c$  la largeur  $\Delta\omega_q$  du spectre des fluctuations du paramètre d'ordre de vecteur d'onde  $q$  est proportionnelle à  $q^{3/2}$  ;
- c) pour  $T > T_c$  le temps de relaxation  $\tau_m(T)$  du paramètre d'ordre diverge comme  $(T - T_c)^{-1}$ .

Ces résultats pourraient être mis en évidence par des expériences acoustiques, hydrodynamiques et optiques.

2) Pour les fluctuations du directeur  $\delta n$ , nous proposons un deuxième postulat de similarité dynamique. Il en résulte une largeur de spectre proportionnelle à  $q^{3/2}$  dans la région critique ( $q\xi \gg 1$ ) et une anomalie pour certains coefficients de friction. Elle pourra être mesurée par diffusion Rayleigh. On calcule aussi la contribution de ces fluctuations à la relaxation nucléaire  $1/T_1$ .

3) Enfin, on étudie le transport des ions à partir d'un modèle simple où chaque couche smectique joue le rôle d'une barrière de potentiel. La mesure de l'anisotropie de conductivité électrique ou de self-diffusion doit permettre de mesurer l'exposant  $\beta$  ( $\Psi \sim (T - T_c)^\beta$ ).

**Abstract.** — The smectic A-nematic transition is similar to the lambda transition in helium ; the phase of the order parameter  $\Psi$  plays an identical role in both systems. In the smectic A-nematic transition there are aside from the fluctuations in  $\Psi$ , additional contributions coming from the fluctuations of the orientation of the molecules which are important in the nematic phase.

1) By postulating a dynamic scaling relation for the fluctuations of  $\Psi$ , we predict the following behavior :

- a) for  $T < T_c$ , the velocity of the second sound  $s_2$  goes to zero like  $(T_c - T)^{1/3}$ . The permeation constant  $\zeta$  diverges like  $(T_c - T)^{-1}$  ;
- b) at  $T = T_c$ , the spectral width of the fluctuations of the order parameter  $\Delta\omega_q$  is proportional to  $q^{3/2}$  ;
- c) for  $T > T_c$ , the relaxation time of the order parameter  $\tau_m(T)$  diverges like  $(T - T_c)^{-1}$ .

These critical features could be tested experimentally using the inelastic diffusion of neutrons, the attenuation of sound and capillary flow by permeation of molecules across smectic layers.

2) We make a second assumption on dynamical scaling for the fluctuations of the director  $\delta n$ . This leads to a spectral width proportional to  $q^{3/2}$  in the critical region ( $q\xi \gg 1$ ) and measurable using Rayleigh diffusion. We also calculate the contributions of the director fluctuations to the nuclear relaxation  $1/T_1$ .

3) Finally, we study the transfer of ions through the smectic layers using a periodic barrier potential. The measurement of the anisotropy of the electrical conductivity (or of the self-diffusion) should allow for a determination of the exponent  $\beta$  ( $\Psi \sim (T - T_c)^\beta$ ).

**1. Introduction.** — La transition d'une phase smectique A à une phase nématique N est le plus souvent du premier ordre. Toutefois, Mc Millan a observé, sur un modèle particulier, qu'elle pouvait être du deuxième ordre quand les interactions satisfont à

certaines inégalités [12]. Récemment, Doane paraît avoir effectivement observé une transition  $A \leftrightarrow N$  où le paramètre d'alignement quadrupolaire  $S$  varie continûment avec  $T$  [13]. Pour de tels cas, De Gennes [1] a développé une analogie entre smectique A et

supra-conducteurs qui conduit aux prédictions suivantes :

- 1) la température de transition baisse si une torsion ou une flexion est imposée ;
- 2) les coefficients de Frank  $K_2$  et  $K_3$  dans la phase nématique doivent montrer des anomalies prétransitionnelles.

Cette description sera rappelée dans la section 2. Nous l'utiliserons ensuite pour étudier les propriétés dynamiques critiques. Pour les variables qui satisfont à une loi de conservation (Martin *et al.* [2]), on peut construire une théorie hydrodynamique au-dessus et au-dessous de  $T_c$ , pourvu que  $q\xi(T) < 1$  ( $q$  est le vecteur d'onde et  $\xi$  la longueur de cohérence). Près de  $T_c$ , pour  $q\xi(T) > 1$ , on peut prolonger cette analyse grâce à certains postulats d'homogénéité connus sous le nom de lois de similarité. Ces postulats sont en bon accord avec de nombreuses observations expérimentales pour l'hélium [4] et pour certains systèmes magnétiques [15]. Nous essayons ici de les adapter au problème des smectiques A.

Ici, comme pour l'hélium, le paramètre d'ordre est un nombre complexe  $\Psi$ , dont le module donne l'amplitude de la modulation de densité présente en phase smectique, alors que la phase  $\varphi$  donne la position des couches. Dans la section 3, nous analysons la dynamique des fluctuations de  $\Psi$ . Pour les smectiques A comme pour He, l'amplitude  $|\Psi|$  n'est pas une constante du mouvement. Par exemple, en phase désordonnée,  $|\Psi|$  relaxe en un temps fini  $\tau_m(T)$ . On peut dire que  $\tau_m$  est la durée de vie des *groupes cybotactiques* introduits par de Vries [16] (Fig. 2). En phase

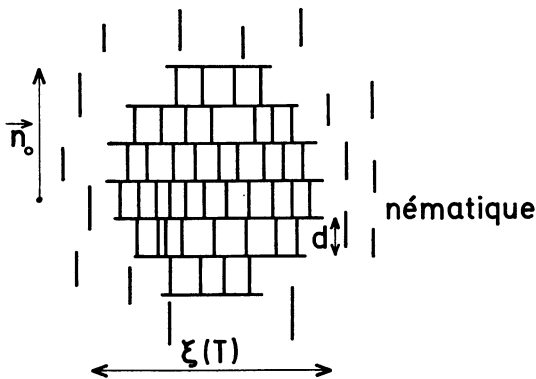


FIG. 2. — Schéma d'un groupe cybotactique.

ordonnée, les fluctuations de  $\Psi$  se transmettent avec une vitesse de propagation bien définie  $s_2$  [6] que nous appellerons vitesse du 2<sup>e</sup> son. Près de  $T_c$ ,  $s_2$  tend vers 0. Nous donnons dans la section 3 les lois de variation de température attendues pour  $s_2$ , pour  $\tau_m$  et pour certaines propriétés dissipatives associées.

Dans la section 4, nous étudions les fluctuations d'orientation des molécules (fluctuations du directeur) ; nous formulerons pour elles une deuxième hypothèse de similarité, dont la validité est beaucoup plus incer-

taine que celle concernant  $\Psi$ . Les résultats de cette hypothèse pourront être testés notamment par des expériences de diffusion inélastique de la lumière.

Enfin, dans l'appendice B, nous étudions (de façon sommaire) l'anisotropie de la conductivité électrique près du point de transition ; cette anisotropie est intéressante pour certaines applications ; elle a été étudiée expérimentalement sur des systèmes un peu différents (smectique C) par F. Rondelez.

## 2. Transition smectique A-nématique. Propriétés statiques.

2.1. PARAMÈTRE D'ORDRE. — Les smectiques sont des matériaux stratifiés, avec des couches successives équidistantes (intervalle  $d$ ) perpendiculaires à une même direction  $oz$  dans la configuration au repos (Fig. 1). Près de  $T_c$ , la densité peut s'écrire :

$$\rho(r) = \langle \rho \rangle \left[ 1 + \frac{1}{\sqrt{2}} [\exp(iq_s \cdot z) \cdot \Psi(r) + cc] \right] \quad (2.1)$$

où  $q_s = 2\pi/d$ . (2.1) définit le paramètre d'ordre que l'on peut écrire  $\Psi = \Psi_0 e^{i\varphi}$ . La phase  $\varphi$  de  $\Psi$  indique la position  $u$  des couches ( $\varphi = q_s u$ ). Comme pour l'hélium,  $\varphi$  obéit à une équation de conservation, tandis que l'amplitude  $\Psi_0$  relaxe en un temps microscopique  $\tau_m(T)$  à sa valeur d'équilibre local.

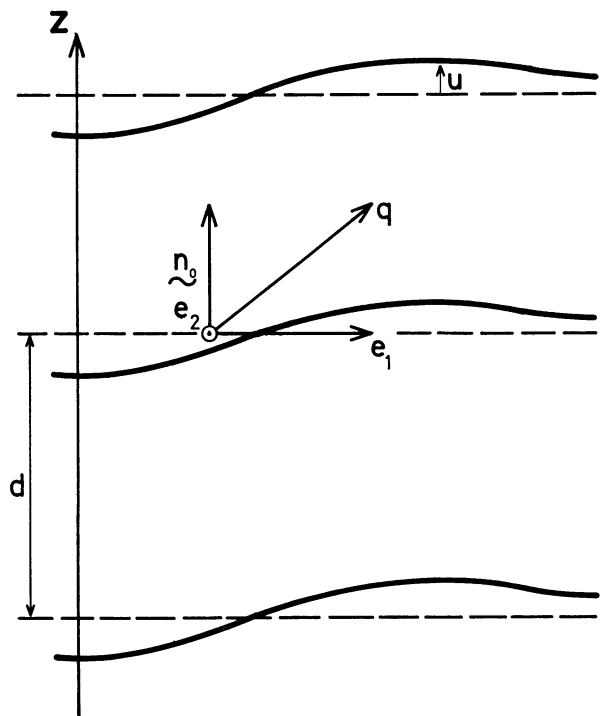


FIG. 1. — Représentation d'un smectique A déformé. Au repos, les couches smectiques (en trait interrompu) sont normales à  $n_0$ .

On postulera que les exposants critiques sont les mêmes pour les smectiques A et pour l'hélium ; pour ces deux systèmes, le paramètre d'ordre est à deux composantes et possède des propriétés analogues. Ceci suppose toutefois qu'il n'y a pas de *paramètre petit* dans le problème comme il y en a un pour les

supraconducteurs ( $a/\xi_0 = T_c/E_F \ll 1$ ) où les exposants critiques sont alors ceux de la théorie de champ moyen. Ici comme pour l'hélium, on supposera que la longueur de cohérence loin de  $T_c$ ,  $\xi_0$ , est de l'ordre de la distance intermoléculaire  $d$ .

2.2 ENERGIE LIBRE. CORRÉLATIONS SPATIALES  $\langle \Psi\Psi \rangle$ ,  $\langle nn \rangle$ . — Dans un smectique A, le directeur  $\mathbf{n}$  est perpendiculaire au plan des couches dans la configuration au repos. L'invariance de l'énergie libre par rotation simultanée de  $\mathbf{n}$  et des couches est l'analogie de l'invariance de jauge. L'énergie libre en terme des fluctuations de  $\Psi$  et de  $\mathbf{n} = \mathbf{n}_0 + \delta\mathbf{n}$  a la forme de l'énergie libre de Landau-Ginsburg pour un supraconducteur :

$$F - F_0 = A |\Psi|^2 + B |\Psi|^4 + (\mathbf{V} + iq_s \delta\mathbf{n}) \Psi^* \frac{1}{2M} (\mathbf{V} - iq_s \delta\mathbf{n}) \Psi + F_{el} \quad (2.2)$$

où  $F_{el} = \frac{1}{2} K_1 (\text{div } \mathbf{n})^2 + \tilde{K}_2 (\mathbf{n} \cdot \text{rot } \mathbf{n})^2 + \tilde{K}_3 (\mathbf{n} \wedge \text{rot } \mathbf{n})^2$  est l'énergie élastique de Frank renormalisée [1] qui inclut les fluctuations de  $\Psi$ .  $M$  est une *masse tenseur* avec deux valeurs principales  $M_V$  (le long de l'axe smectique) et  $M_T$  (perpendiculairement à l'axe). Au-dessus de  $T_c$ , on a des effets d'ordre à courte distance, qui peuvent être visualisés qualitativement par des groupes cybotactiques (Fig. 2) de dimension  $\xi(T)$ , où  $\xi(T) = (2MA)^{-1/2}$ . Ces groupes n'acceptent

ni la torsion ( $K_2$ ), ni la flexion ( $K_3$ ). Ils provoquent un accroissement de  $K_2$  et  $K_3$

$$\tilde{K}_2 = K_2 + \frac{\pi}{6} \frac{k_B T}{M_T d^2} \sqrt{\frac{M_V}{A(T)}} \quad (\delta K_2 \sim \xi)$$

$$\tilde{K}_3 = K_3 + \frac{\pi}{6} \frac{k_B T}{d^2} \frac{1}{\sqrt{M_V A(T)}} \quad (\delta K_3 \sim \xi).$$

Après transformation de Fourier, (2.2) devient :

$$F_q = |\Psi_q|^2 \left( A + \frac{q_z^2}{2M_V} + \frac{q_\perp^2}{2M_T} \right) + \frac{1}{2} |\gamma_q|^2 \left( \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} + \frac{\Psi_0^2 q_s^2 q_\perp^2}{M_T q_z^2} \right) + \frac{1}{2} |n_{1q}|^2 \left( \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_T} + K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2 \right) - \frac{q_\perp}{q_z} \gamma_{-q} n_{1q} \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_T} + \frac{1}{2} |n_{2q}|^2 \left( \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_T} + \tilde{K}_2 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2 \right) \quad (2.3)$$

où  $\Psi_0$  est la valeur à l'équilibre de  $\Psi$  :  $\Psi_0^2 = -A/B$  pour  $T < T_c$  et zéro pour  $T > T_c$ .

$n_1$  et  $n_2$  sont les projections de  $\delta\mathbf{n}$  sur les vecteurs  $e_1$  et  $e_2$  définis figure 1 et  $\gamma = \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial z}$ .

En appliquant le théorème d'équipartition, on obtient les moyennes thermodynamiques :

$T < T_c$	$T > T_c$
$\langle  \Psi_q ^2 \rangle = \frac{k_B T}{2A + \frac{q_z^2}{M_V} + \frac{q_\perp^2}{M_T}}$	$\langle  \Psi_q ^2 \rangle = \frac{kT}{2A + \frac{q_z^2}{M_V} + \frac{q_\perp^2}{M_T}}$
$\langle  n_{1q} ^2 \rangle = \frac{k_B T}{K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2 + \frac{\Psi_0^2 q_s^2 q_z^2}{q_\perp^2 M_V + q_z^2 M_T}}$	$\langle  n_{1q} ^2 \rangle = \frac{kT}{K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2}$
$\langle  u_q ^2 \rangle = \frac{k_B T}{\frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} q_z^2 + q_\perp^2 (K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2)}$	$\langle  n_{2q} ^2 \rangle = \frac{kT}{\tilde{K}_2 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2}$
$\langle  n_{1q} \gamma_{-q}  \rangle = \frac{kT}{\frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} + (K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2) \left( \frac{q_\perp^2}{q_z^2} + \frac{M_T}{M_V} \right)}$	
$\langle  n_{2q} ^2 \rangle = \frac{kT}{\frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_T} + \tilde{K}_2 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2}$	

En postulant une loi de similarité <sup>(1)</sup> pour les fluctuations de  $\Psi$ , on prévoit, comme pour l'hé-

lium (Josephson 1966, réf. [14]), que  $A \sim \xi^{-2+\eta}$  et que

$$\frac{1}{M_V}, \frac{1}{M_T} \sim \xi^\eta.$$

Le coefficient  $A(T) \sim (T - T_c)^\nu$ . D'après le calcul de Wilson [18], on attend  $\nu = 1,3$  et  $\eta = 0,04$  pour un paramètre d'ordre à deux composantes ( $\Psi = \Psi' + i\Psi''$ ).

(1) En effet, d'après les lois d'échelle statiques,  $\langle |\Psi_q|^2 \rangle$  doit être une fonction homogène de la forme  $q^\nu F(q\xi)$ . Par définition de l'exposant critique  $\eta$ ,  $\langle |\Psi_q|^2 \rangle \sim q^{-2+\eta}$  lorsque  $T = T_c$ . Dans la limite  $q\xi \ll 1$ , pour que

$\langle |\Psi_q|^2 \rangle = kT/(A + q_z^2/M_V + q_\perp^2/M_T)$  soit de la forme  $q^{-2+\eta} F(q\xi)$ , il faut que  $A^{-1} \sim \xi^{2-\eta}$  et  $1/M \sim \xi^\eta$ .

Ceci donne  $\xi(T) \sim (T - T_c)^{-0,66}$ . En utilisant les relations entre exposants critiques  $\gamma = (2 - \eta) \nu$  et  $\nu = \gamma + 2\beta$  (voir par exemple [19]), on montre que :

$$\frac{\Psi_0^2}{M_T} \sim \frac{1}{\xi(T)} \quad (2.5)$$

$\Psi_0^2/M_T$  est l'analogie de la densité superfluide  $\rho_s$  dans l'hélium et, d'après nos hypothèses, aura la même dépendance en température.

A partir des relations (2.4), on obtient les résultats suivants pour les corrélations spatiales de  $\delta n$  et de  $\Psi$  :

1) Les corrélations  $\langle \delta n \delta n \rangle$  sont à longue portée ( $1/r$ ) lorsque  $T > T_c$ . Lorsque  $T < T_c$ , les corrélations  $\langle n_2(r) n_2(0) \rangle$  sont de la forme  $e^{-r/\lambda}/r$ , où

$$\lambda^{-2} = \Psi_0^2 \frac{q_s^2}{M_T K}.$$

$\lambda$  est l'épaisseur de pénétration d'une déformation de torsion ou de flexion définie par De Gennes [1]. Les corrélations  $\langle n_1 n_1 \rangle$  sont très anisotropes (portée de l'ordre de  $\xi$  dans la direction  $oz$  et  $\sqrt{\xi}$  dans le plan des couches).

2) Pour  $T > T_c$ , les corrélations  $\langle \Psi(r) \Psi(0) \rangle$  sont de la forme  $e^{-r/\xi}/r$  pour  $r \gg \xi$ .

Pour  $T < T_c$ , les corrélations pour le module de  $\Psi$  sont aussi de la forme  $e^{-r/\xi}/r$ . A cause du couplage entre les fluctuations de  $\Phi$  et du directeur, les fluctuations de la phase sont divergentes :  $\langle u^2(r) \rangle$  a une divergence logarithmique. Cette propriété n'existe pas dans les superfluides et il se pourrait que les exposants critiques soient différents de ceux de l'hélium.

*Remarque.* — Cette description ne tient compte que de la configuration des couches. En fait, pour décrire l'état local, il faut aussi connaître la densité  $\rho(r)$ . Dans ce qui suit, nous utiliserons comme variable  $\Psi$ ,  $n$  et  $\theta(r)$ , où  $\theta(r)$  est la dilatation en volume. En introduisant  $\theta(r)$ , l'énergie libre de déformation (par  $\text{cm}^3$ ) est :

$$\begin{aligned} F = & A |\psi|^2 + B |\psi|^4 + \\ & + (\nabla + iq_s \delta \mathbf{n}) \psi^* \frac{1}{2M} (\nabla - iq_s \delta \mathbf{n}) \psi \\ & + \frac{1}{2} A_1 \theta^2 + \frac{C_1}{2i} \theta (\psi^* \nabla_z \psi - \psi \nabla_z \psi^*). \quad (2.2 \text{ bis}) \end{aligned}$$

**3. Dynamique des fluctuations de  $\Psi$ .** — Dans la phase smectique, pour chaque vecteur d'onde  $q$ , on trouve en général deux modes acoustiques (que nous appellerons 1<sup>er</sup> et 2<sup>e</sup> son par analogie avec l'hélium) et un mode visqueux transversal [6]. Le mode critique est le second son et c'est lui qui contrôle le spectre des fluctuations de  $\Psi$  près de  $T_c$  (Fig. 3a). En phase désordonnée, il est remplacé par un mode de relaxation visqueux. Au 3.1, nous allons calculer la vitesse du 2<sup>e</sup> son et le temps caractéristique des fluctuations de  $\psi$ .

Lorsque  $q$  est parallèle à l'axe optique, la vitesse  $s_2$  s'annule et il y a un seul mode acoustique (1<sup>er</sup> son), deux modes visqueux transverses et un mode diffusif ; dans ce dernier mode, le déplacement des couches est différent du déplacement de la matière. La friction relative de ces deux systèmes est décrite par un coefficient de perméation  $\zeta$ , introduit en premier par Helfrich [8], puis de façon plus générale par Martin *et al.* [2]. Ce mode domine le spectre des fluctuations de  $\Psi$  près de  $T_c$  (Fig. 3b). Au 3.2, on prévoit l'exposant critique de  $\zeta$ .

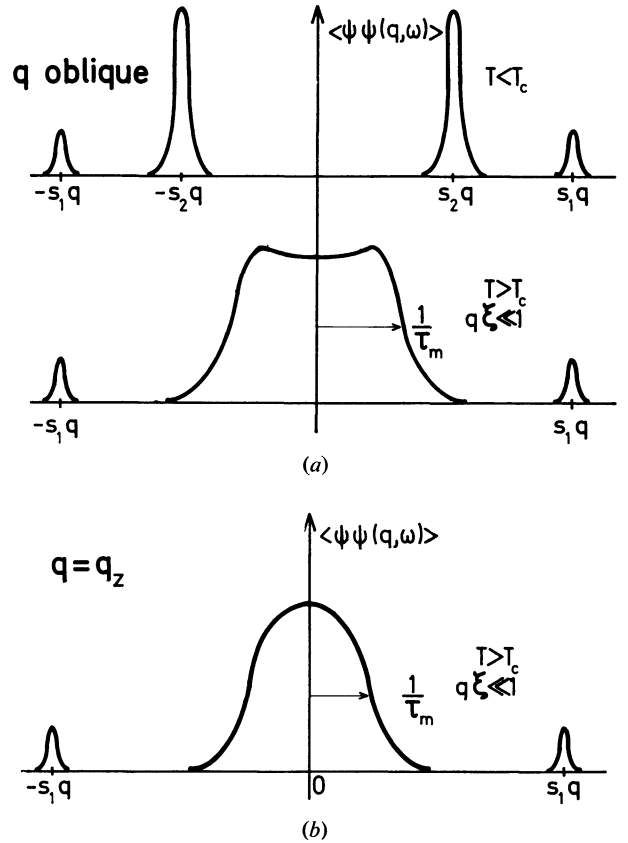


FIG. 3. — Spectre des fluctuations de  $\psi$  :

- a)  $q$  est oblique,  
b)  $q$  est parallèle à  $n_0$ .

**3.1  $q$  OBLIQUE.** — 3.1.1 *Vitesse du second son près de  $T_c$ .* — Si le système est déplacé de son état d'équilibre, on suppose qu'il relaxe en un temps fini  $\tau_m(T)$  à un état d'équilibre local déterminé par  $u$ ,  $\theta$  et  $v$ , où  $v$  est la vitesse.  $\tau_m(T)$  caractérise les fluctuations de  $\Psi_0$ . Nous nous plaçons dans la limite hydrodynamique  $q\xi \ll 1$ ,  $\omega\tau_m \ll 1$ .

Les vibrations acoustiques étant rapides, nous admettons que les compressions et les dilatations sont adiabatiques. Il faut partir de l'énergie (et non plus de l'énergie libre), qui s'écrit

$$E = \frac{1}{2} A_0 \theta^2 + \frac{1}{2} B_0 \Psi_0^2 q_s^2 \left( \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 + C_0 \Psi_0^2 q_s \theta \frac{\partial u}{\partial z}. \quad (3.1)$$

$A_0, B_0, C_0$  sont les coefficients de rigidité adiabatiques.

En négligeant l'amortissement et la perméation ( $V_z = \partial u / \partial z$ ) les vitesses  $s_1$  et  $s_2$  des deux modes acoustiques sont données par [2], [6]

$$x^2 - x[A_0 \cos^2 \alpha + (A_0 + B_0 \Psi_0^2 q_s^2 + C_0 \Psi_0^2 q_s) \sin^2 \alpha] + \sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \Psi_0^2 q_s^2 (A_0 B_0 - \psi_0^2 C_0) = 0 \quad (3.2)$$

où l'on a posé  $x = \rho s^2$  et où  $\alpha$  est l'angle de  $q$  avec  $oz$ . Près de  $T_c$ , (3.2) a pour solution

$$\begin{aligned} \rho s_1^2 &= A_0 \\ \rho s_2^2 &= \sin^2 \alpha \cos^2 \alpha \psi_0^2 q_s^2 \left( B_0 - \frac{C_0^2 \psi_0^2}{A_0} \right) \sim \frac{\psi_0^2}{M}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

En utilisant la relation de Josephson pour  $\psi_0^2 / M_V$  on trouve donc que la vitesse du second son tend vers zéro comme  $\xi^{-1/2}$ , soit  $(T - T_c)^{1/3}$ .

*Remarques.* — 1) En fait, en tenant compte de la dissipation,

$$\omega = s_2 q + i \eta_2 q^2$$

où  $\eta_2$  est une fonction compliquée de 5 coefficients de viscosité et de la constante de perméation  $\zeta$ .

2) La mesure du déplacement du doublet Brillouin de 2<sup>e</sup> son avec la température peut permettre de mesurer  $\Psi_0^2 / M_V(T)$ . La fonction  $\langle \theta \theta \rangle_{q\omega}$  qui est mesurée par effet Brillouin est calculée dans l'appendice A.

3) Nous n'avons pas tenu compte du couplage de  $\nabla \Phi$  avec  $n_1$  pour obtenir les éq. (3.3). L'effet de ce couplage est étudié au paragraphe 4.1.2.

3.1.2 *Largeur du spectre  $\Delta \omega_\psi(q, T)$  des fluctuations de  $\Psi$ .* — Les lois d'échelle dynamiques postulent :

- que la fréquence caractéristique est une fonction homogène  $\omega_\psi(q, T) = q^z \Omega(q\xi)$  ;
- que la fonction de corrélation dynamique normalisée ne dépend que de  $q\xi$ .

Dans la région hydrodynamique  $q\xi \ll 1$  et  $T < T_c$ , nous avons trouvé que la fréquence caractéristique est :

$$\omega_\psi(q, T) = s_2 q \sim \frac{q^{3/2}}{\sqrt{q\xi}} \quad \text{donc} \quad z = \frac{3}{2}$$

et que la fonction de corrélation normalisée est la somme de deux lorentziennes :

$$f^\Psi(x) = \frac{1}{\pi} \frac{\eta_q}{(x^2 - 1)^2 + \eta_q^2} \quad \text{où} \quad x = \frac{\omega}{\omega_\psi(q, T)}$$

et où

$$\eta_q^2 = \frac{\eta_2 q^2}{s_2 q} \sim \eta_2 q \sqrt{q\xi}.$$

Près de  $T_c$  le postulat d'échelle conduit aux prédictions suivantes :

$$a) \quad \eta_2 \sim \sqrt{q\xi}. \quad (3.4)$$

Cette divergence est due à la perméation et à un accroissement de la viscosité  $\eta_\rho$  qui intervient dans l'amortissement du 1<sup>er</sup> son [27], que nous étudions au paragraphe 3.2 et 4.1.4 respectivement.

b) Les vitesses de relaxation  $\tau_m^{-1}(T)$  et  $s_2 q$  des fluctuations de  $\Psi_0$  et  $\varphi$  respectivement doivent être égales lorsque  $q\xi \sim 1$  puisque la distinction entre phase et amplitude disparaît :

$$\tau_m^{-1}(T) = \frac{s_2}{\xi} = \left( \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\rho M_V \xi^2} \right)^{1/2} \sim \frac{1}{\xi^{3/2}} \sim (T - T_c). \quad (3.5)$$

En ordre de grandeur, en prenant  $\xi_0 \sim d$  (2.1)

$$\tau_m^{-1}(T) = \frac{T - T_c}{T} \frac{1}{d^2} \sqrt{\frac{K_1}{\rho}} \sim \frac{\Delta T}{T} \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$$

avec  $K_1 \sim 10^{-6}$  CGS et  $d \sim 20$  Å.

On pourra peut-être obtenir certaines informations sur  $\tau_m$  en étudiant l'atténuation du 1<sup>er</sup> son. Ce phénomène est complexe. Toutefois pour l'hélium il paraît dominé par deux effets [9], [10], [5] :

- relaxation de  $\Psi_0$  ( $T < T_c$ ),
- fluctuation de  $\Psi_0$ .

Dans la limite  $\omega \tau_m < 1$ , les deux effets donnent des contributions comparables

$$\alpha(\omega) \cong \frac{\Delta s}{s_1^2(0)} \omega^2 \tau_m \quad \text{où} \quad \Delta s = s_1(\infty) - s_1(0),$$

$s_1(\omega)$  étant la vitesse du 1<sup>er</sup> son à la fréquence  $\omega$ .

Donc, en mesurant  $\alpha$  à  $\omega$  fixé (faible) en fonction de la température, on peut peut-être mesurer  $\tau_m(T)$ .

Par ailleurs, par des expériences à très haute fréquence (hypersons) faites sur des spécimens très minces, on pourrait en principe détecter une anomalie de dispersion pour  $\omega \sim 1/\tau_m$ . Mais cette dernière expérience paraît techniquement difficile.

c) La largeur du spectre des fluctuations de  $\Psi$  a une largeur en  $q^{3/2}$  pour  $T = T_c$

$$\Delta \omega_\psi(q, T_c) = A q^{3/2}. \quad (3.6)$$

En principe,  $1/\tau_m$  (et éventuellement  $\Delta \omega_\psi$ ) pourrait aussi être déterminé par des expériences de diffusion inélastique de neutrons, en utilisant un matériau smectique deutéré, pour lequel la diffusion cohérente domine : si le vecteur de diffusion  $\mathbf{k}$  est égal au vecteur d'onde smectique  $\mathbf{q}_s$ , on doit avoir, pour  $T > T_c$ , une diffusion assez intense avec une largeur en énergie  $\hbar/\tau_m$ . De même, pour  $T = T_c$ , on déterminerait  $\Delta \omega_q$  par la largeur du spectre mesurée à un vecteur d'onde  $\mathbf{q}_s + \mathbf{q}$ . Toutefois, en pratique, les transferts d'énergie qui sont impliqués paraissent trop faibles pour envisager ces expériences à l'heure actuelle.

3.2  $q$  PARALLÈLE A L'AXE OPTIQUE. — Lorsque  $q$  est parallèle à  $oz$ , le second son disparaît ( $s_2 = 0$ ). Il faut alors tenir compte des termes dissipatifs de fric-

tion et de perméation. Les deux modes sonores  $\pm s_2 q$  sont remplacés par un mode visqueux transverse non critique et un mode diffusif de perméation qui domine le spectre des fluctuations de  $\Psi$  près de  $T_c$  (Fig. 4).

3.2.1 *Fréquence du mode de perméation près de  $T_c$ .* — Lorsque  $q$  est parallèle à l'axe optique, les équations pour la vitesse transverse sont découplées des autres et les équations du mouvement décrites par Martin *et al.* [2] s'écrivent, en négligeant les variations de température :

$$\begin{aligned} i\omega \delta\rho + iq\rho v_z &= 0 & (1) \\ i\omega u - v_z - i\zeta q \delta\varphi_3 &= 0 & (2) \\ i\omega v_z + iq(\delta p - \delta\varphi_3) &= 0 & (3) \end{aligned} \quad (3.7)$$

où

$$\delta p = A_0 \frac{\delta\rho}{\rho^2} - C_0 \psi_0^2 \frac{\partial u}{\partial z}$$

et

$$\delta\varphi_3 = -q_s C_0 \psi_0^2 \frac{\delta\rho}{\rho} + \Psi_0^2 q_s^2 B_0 \frac{\partial u}{\partial z},$$

$\varphi_3$  joue le rôle d'une pression osmotique.

L'éq. (2) définit le paramètre de friction  $\zeta$  lorsque le déplacement des couches est différent du déplacement du fluide. Près de  $T_c$ , on peut négliger le couplage avec le 1<sup>er</sup> son et le mode de perméation se réduit pratiquement à un déplacement des couches smectiques sans déplacement de matière. En faisant  $v_z = 0$  dans (2), on trouve pour la fréquence du mode de perméation

$$\omega = i\zeta q^2 \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V}.$$

3.2.2 *Exposant critique de la constante de perméation  $\xi$ .* — La distinction entre la phase et l'amplitude de  $\Psi$  disparaît lorsque  $q \sim 1/\xi$ . La fréquence caractéristique  $\tau_m^{-1}(T)$  des fluctuations de  $\Psi_0$  est donc égale à la fréquence du mode de perméation pour  $q = 1/\xi$ , soit

$$\tau_m^{-1}(T) = \frac{\zeta}{\xi^2} \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} \sim \frac{\zeta}{\xi^3}. \quad (3.8)$$

Comme nous avons trouvé au paragraphe 3.5 que  $\tau_m^{-1}(T) \sim \xi^{-3/2}$ , il faut que

$$\zeta \sim \xi^{3/2} \sim \frac{T_c}{T - T_c}. \quad (3.9)$$

En ordre de grandeur,

$$\zeta \sim \xi \left( \frac{M_V}{\Psi_0^2 q_s^2 \rho} \right)^{1/2} \sim 10^{-10} \frac{T_c}{T - T_c} \text{ CGS.}$$

Il sera peut-être possible de déterminer  $\zeta$  par l'étude des écoulements dans un capillaire.

Considérons un smectique contenu dans un capillaire et supposons que les couches smectiques sont *fortement ancrées aux parois* et normales à l'axe du capillaire. En présence d'un gradient de pression qui

distord les couches sans les briser, le fluide s'écoule alors à travers les couches à une vitesse

$$v = -\zeta \nabla p.$$

En prenant  $T = 500$  °K,  $\Delta T = 1^\circ$ ,  $|\nabla p| = 1\,000$  dynes/cm<sup>3</sup> (2),  $v \sim 1$   $\mu$ /s.

*Remarque.* — Comme

$$\zeta \sim \xi^{3/2} \quad \text{et} \quad \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} \sim \frac{1}{\xi},$$

la largeur du spectre de fluctuation de  $\Psi$  pour  $T = T_c$  varie aussi en  $q^{3/2}$  lorsque  $q$  est parallèle à l'axe optique.

4. **Fluctuations du directeur.** — 4.1 DYNAMIQUE DES FLUCTUATIONS. — Dans la phase smectique, le directeur est bloqué : il doit être normal aux couches. La diffusion de la lumière est aussi faible que celle d'un liquide ordinaire.

Au contraire, dans la phase nématique, les fluctuations du directeur donnent lieu à une très forte diffusion de la lumière. Ces fluctuations ont été étudiées à partir de la théorie de Leslie [3]. Pour un vecteur d'onde  $q$  et une polarisation  $\alpha$ , on trouve deux modes purement dissipatifs : un mode lent décrivant la relaxation d'une configuration nématique distordue et un mode visqueux rapide de liquide ordinaire. La diffusion de la lumière mesure la fréquence de relaxation du mode lent qui domine le spectre tant que  $\mu = K\rho/\eta^2 \ll 1$ .

Nous allons étudier la diffusion de la lumière près de  $T_c$  (Fig. 4).

4.1.1 *Largeur du spectre dans la région  $q\xi \ll 1$  et  $T > T_c$ .* — Les variables  $n_1$  et  $n_2$  sont des variables hydrodynamiques lorsque  $T > T_c$  et l'énergie est l'énergie élastique de Frank renormalisée (2.3). On peut supposer le fluide incompressible parce que les fluctuations de  $\delta n$  sont lentes par rapport à celles de  $\theta$ .

La somme des couples élastiques (déduts de (2.3)) et visqueux agissant sur  $\delta n$  s'écrit :

$$\gamma_e \frac{dn_1}{dt} + (\tilde{K}_3 q_z^2 + K_1 q_1^2) n_1 = 0 \quad (4.1)$$

$$\gamma_e \frac{dn_2}{dt} + (\tilde{K}_3 q_z^2 + \tilde{K}_2 q_1^2) n_2 = 0 \quad (4.2)$$

où  $\gamma_e$  est une viscosité effective de rotation du directeur qui tient compte du couplage entre  $\tilde{n}$  et les courants hydrodynamiques.  $\gamma_e$  dépend de l'orientation de  $q$  [7].

(2) On sait que loin de  $T_c$ , les couches smectiques peuvent supporter des gradients de pression de l'ordre de  $10^5$  CGS [8]. La principale difficulté de cette expérience réside dans l'ancrage des couches : il est possible que près de  $T_c$  cet ancrage devienne faible.

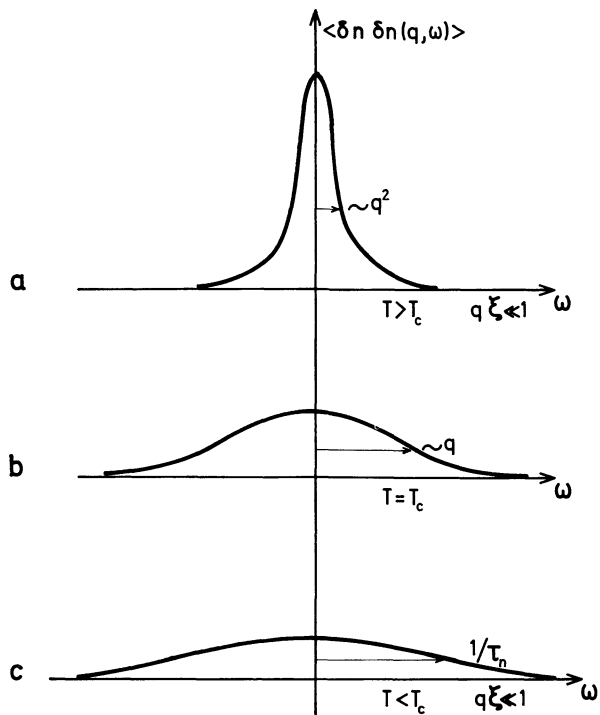


FIG. 4. — Erratum : ligne b, lire  $q^{3/2}$  au lieu de  $q$ .  
Spectre des fluctuations d'orientation du directeur :  
a)  $T > T_c, q\xi \ll 1$ ,  
b)  $T = T_c$ ,  
c)  $T < T_c, q\xi \ll 1$ .

Dans le cas d'une fluctuation de torsion  $\gamma_e = \gamma_1$  [25]. Les fréquences des modes lents sont alors

$$\omega_1 = \frac{i}{\gamma_e} (\tilde{K}_3 q_z^2 + K_1 q_\perp^2) \quad (4.3)$$

et

$$\omega_2 = \frac{i}{\gamma_e} (\tilde{K}_3 q_z^2 + \tilde{K}_2 q_\perp^2). \quad (4.4)$$

4.1.2 *Largeur du spectre au-dessous de  $T_c$ .* — Il faut ajouter aux éq. (4.1) et (4.2) la force de rappel  $\Psi_0^2 q_s/M_T$ . Les fréquences des modes propres sont alors :

$$\omega_1 = \frac{i}{\gamma_e} \left( \tilde{K}_3 q_z^2 + \tilde{K}_1 q_\perp^2 + \frac{\Psi_0^2 q_s^2 q_z^2}{M_T q^2} \right) \quad (4.5)$$

$$\omega_2 = \frac{i}{\gamma_e} \left( \tilde{K}_3 q_z^2 + \tilde{K}_2 q_\perp^2 + \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_T} \right). \quad (4.6)$$

Le directeur au-dessous de  $T_c$  relaxe en un temps microscopique

$$\tau_n^{-1}(T, q = 0) = \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\gamma_e M_T}.$$

*Remarque :* Pour obtenir les éq. (4.5, 6), nous n'avons pas tenu compte du couplage de  $n_1$  avec  $\nabla\Phi$ . Si l'on inclut ce couplage, les modes propres de fluctuation de la densité et du directeur ( $n_1$ ) satisfait à l'équation plus complexe

$$\left( \omega^2 - q_\perp^2 \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\rho M} \right) \left( \omega - \frac{i}{\gamma_e} \left[ \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M} + K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2 \right] \right) - \frac{i q_\perp^4}{q^2 \rho \gamma_e} \left( \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M} \right)^2 = 0. \quad (4.7)$$

On a supposé  $M_V = M_T$ . On pose

$$s_2^2 = \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M} \quad \text{et} \quad \omega_1 = \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M \gamma_e}.$$

Lorsque  $q$  est perpendiculaire à l'axe optique, on a trois modes amortis à la place du 2<sup>e</sup> son et du mode donné par (4.5) :

$\omega = i\omega_1$  : fluctuation rapide du directeur autour de la normale aux couches

$\omega = i q_\perp^2 \frac{\gamma_e}{\rho}$  mode de cisaillement ,

$\omega = i K_1 \frac{q_\perp^2}{\gamma_e}$  mode d'ondulation .

Lorsque le vecteur d'onde  $q$  fait un angle  $\theta$  avec l'axe optique, les branches  $\omega = s_2 q$  et  $\omega = i\omega_1$  se coupent pour  $q = q^*$  défini par  $s_2 q^* = \omega_1$ . Nous verrons au paragraphe suivant que  $q^* = 1/\xi$ .

Dans la limite  $q \ll q^*$ , les solutions de (4.7) sont :

$$\omega = \pm s_2 q \cos \theta \sin \theta + i \frac{s_2^2 q^2}{\omega_1} \sin^2 \theta$$

et

$$\omega = i \left( \omega_1 + \frac{1}{\gamma_e} (K_1 q_\perp^2 + \tilde{K}_3 q_z^2) \right)$$

(fluctuations du directeur autour de la normale).

Lorsque  $q = q^*$ , le 2<sup>e</sup> son ne se propage plus. Le terme d'amortissement devient alors comparable à  $s_2 q$ . Les trois modes sont alors des modes amortis avec une fréquence de relaxation comparable à  $\omega_1$ .

Ce couplage entre les fluctuations de  $\Psi$  et le directeur est donc responsable d'un fort amortissement du 2<sup>e</sup> son lorsque  $q\xi \simeq 1$ .

Notons qu'il n'y a pas d'effet analogue de croisement de mode pour le 1<sup>er</sup> son (parce qu'il n'y a pas de terme de couplage).

4.1.3 *Largeur du spectre dans la région critique  $q\xi \gg 1$ .* — Nous allons maintenant postuler une loi de similarité dynamique pour les fluctuations de  $\delta n$  sous la forme suivante :

a) Les fréquences propres au-dessus (4.1,2) et au-dessous (4.5,6) de  $T_c$  deviennent comparables pour  $q = 1/\xi$

$$\frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\gamma_e M} \approx \frac{\tilde{K}}{\gamma_e \xi^2} \quad \text{soit} \quad \tilde{K} \approx \xi.$$

b) En dessous de  $T_c$  et dans le domaine critique il



$n$ 'y a qu'une échelle de temps  $\tau_m$  imposée par les fluctuations de densité, soit

$$\tau_n^{-1}(q=0, \xi) = \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\gamma_e M} = \tau_m^{-1}(T) \sim \xi^{3/2}$$

$$\tau_n(T = T_c) \sim q^{3/2}.$$

Ces deux conditions sont satisfaites si  $\gamma_e \sim \xi^{1/2}$

$$\frac{\tilde{K}}{\gamma} \sim \xi^{1/2} \text{ soit } \gamma \sim \xi^{1/2}.$$

Cette hypothèse assez aventureuse peut être étayée par un calcul direct du coefficient de friction  $\gamma_1$  [27]. Ce calcul est l'analogue, pour notre problème, de l'approximation de découplage introduite par Ferrell [26] à propos des mélanges binaires.

4.1.4 Diffusion de la lumière en dessous de  $T_c$ . — En dessous de  $T_c$ , on a une diffusion intense de la lumière uniquement si le vecteur d'onde est dans le plan des couches smectiques :

$$\frac{q_z^2}{q_\perp^2} \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} \ll K_1 q_\perp^2.$$

Lorsque  $q$  n'est pas dans le plan des couches, la diffusion est beaucoup plus faible qu'en phase nématique ; pour  $q\xi < 1$ , on attend une section efficace différentielle de diffusion de la forme

$$\sigma_d = \Omega \frac{\varepsilon_a \omega^2}{4 \pi c^2} \frac{k_B T}{\frac{\Psi_0^2 q_s^2}{M_V} + K q^2}$$

où  $\Omega$  est le volume. Comparons  $\sigma_d$  (pris pour  $q=0$ ) à l'intensité diffusée par les fluctuations de densité  $\sigma_\theta$

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_\theta} = \left(\frac{\varepsilon_a}{\varepsilon'}\right)^2 \frac{A_0}{\Psi_0^2 q_s^2 / M_V} \sim \left(\frac{T}{T - T_c}\right)^{0,66} \frac{A_0 d^2}{K}$$

où  $\varepsilon'$  caractérise la variation de  $\varepsilon$  due à une dilatation locale ( $\varepsilon = \bar{\varepsilon} + \varepsilon' \theta$ ).

En prenant  $K = 10^{-6}$ ,  $A_0 = 10^{10}$  CGS,  $d = 20 \text{ \AA}$ ,

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_\theta} \sim 10^2 \left(\frac{T}{T - T_c}\right)^{0,66}$$

alors qu'en phase nématique  $\sigma_d/\sigma_\theta \sim 10^6$ .

La largeur attendue par le spectre de la lumière diffusée (Fig. 5c) au-dessous de  $T_c$  est, avec les mêmes hypothèses :

$$\Delta\omega = \frac{\Psi_0^2 q_s^2}{\tilde{\gamma}_e M_V} \sim 10^{11} \left(\frac{T - T_c}{T_c}\right) s^{-1}.$$

4.2 CALCUL DU TEMPS DE RELAXATION NUCLÉAIRE  $T_1$ . — Dans la phase nématique, la contribution des fluctuations d'orientation à la vitesse de relaxation nucléaire  $1/T_1$  a été calculée par Pincus [11].  $T_1$  est de l'ordre d'une seconde comme pour un liquide ordinaire, mais la dépendance en fréquence ( $T_1 \sim \sqrt{\omega}$ ) est inhabituelle. Cette contribution à  $1/T_1$  n'est pas la seule, mais se distingue des autres par une étude en fonction de la fréquence [17]. Quand on se rapproche

de la phase smectique, certaines fluctuations de  $n$  sont restreintes, et le mécanisme de Pincus devient moins efficace : nous calculons cet effet ci-dessous.

4.2.1 Calcul de  $T_1$  au-dessus de  $T_c$ . — Pour les fluctuations de  $n_1$  et  $n_2$ , nous avons trouvé deux fréquences de relaxation

$$\omega_1 = \frac{i}{\tilde{\gamma}_e} (\tilde{K}_3 q_z^2 + K_1 q_\perp^2)$$

et

$$\omega_2 = \frac{i}{\tilde{\gamma}_e} (\tilde{K}_3 q_z^2 + K_1 q_\perp^2).$$

En tenant compte de la diffusion des molécules, la fonction de corrélation

$$G(t) = \langle n_1(t) n_1(0) \rangle + \langle n_2(t) n_2(0) \rangle,$$

prise pour une molécule donnée, peut s'écrire :

$$G(t) = \frac{1}{(2\pi)^3} \left\{ \langle |n_{1q}| \rangle e^{-i\omega_1 t} + \langle |n_{2q}|^2 \rangle \times e^{-i\omega_2 t} \right\} e^{-(D_\parallel q_z^2 + D_\perp q_\perp^2)t}.$$

L'inverse du temps de relaxation nucléaire  $T_1$  est proportionnel à la transformée de Fourier  $J(\omega)$  de  $G(t)$  :

$$J(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(t) e^{-i\omega t} dt = J_1(\omega) + J_2(\omega).$$

En remplaçant  $\langle |n_{1q}| \rangle$  et  $\langle |n_{2q}|^2 \rangle$  par leur valeur donnée par la formule (2.4), il vient :

$$J_1(\omega) = \frac{k_B T}{2(2\pi)^3} \times \int \frac{\left(D_\parallel + \frac{\tilde{K}_3}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_z^2 + \left(D_\perp + \frac{K_1}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_\perp^2}{\omega^2 + \left[\left(D_\parallel + \frac{\tilde{K}_3}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_z^2 + \left(D_\perp + \frac{K_1}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_\perp^2\right]^2} \times \frac{d_3 q}{\tilde{K}_3 q_z^2 + K_1 q_\perp^2}.$$

En faisant le changement de variable

$$Q_z^2 = \left(D_\parallel + \frac{\tilde{K}_3}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_z^2 \text{ et } Q_\perp^2 = \left(D_\perp + \frac{K_1}{\tilde{\gamma}_e}\right) q_\perp^2,$$

il vient :

$$J_1(\omega) \propto \frac{1}{\sqrt{\left(D_\parallel + \frac{\tilde{K}_3}{\tilde{\gamma}_e}\right) \left(D_\perp + \frac{K_1}{\tilde{\gamma}_e}\right)^2 \cdot \tilde{\gamma}_e^2}} \times \int \frac{d_3 Q}{(\omega^2 + Q^4) f(\theta)} \sim \omega^{-1/2}$$

où

$$f(\theta) : 1 - \frac{D_\parallel}{D_\parallel + \frac{\tilde{K}_3}{\tilde{\gamma}_e}} \sin^2 \theta - \frac{D}{D_\perp + \frac{K_1}{\tilde{\gamma}_e}} \cos^2 \theta$$

est une fonction d'ordre unité.

Quand  $T \rightarrow T_c$ ,  $\tilde{K}_3$  diverge comme  $\xi$  et  $\gamma_e$  comme  $\xi^{1/2}$ ,

$$J_1(\omega) \sim \left( \frac{T - T_c}{T_c} \right)^{1/2} \omega^{-1/2}.$$

Un calcul analogue donne :

$$J_2(\omega) \sim \frac{\tilde{\gamma}_e^{1/2}}{\sqrt{\tilde{K}_3 \tilde{K}_2^2}} \omega^{-1/2} \quad \text{soit} \quad \left( \frac{T - T_c}{T_c} \right)^{4/3} \omega^{-1/2}.$$

Comme  $J_1(\omega)$  tend vers zéro moins vite que  $J_2(\omega)$ ,  $1/T_1$  est dominé par les fluctuations du type  $n_1$  et varie comme

$$\frac{(T - T_c)^{1/2}}{T_c} \omega^{-1/2}.$$

Nous voyons donc que la mesure de  $1/T_1$  peut permettre de mesurer l'exposant critique de  $\tilde{K}_3$  et  $\tilde{\gamma}_e$ .

*Remarque.* — Les modes qui contribuent le plus à la relaxation sont ceux qui ont une fréquence  $Kq^2/\gamma_e$  égale à la fréquence nucléaire  $\omega$ . Notre calcul suppose  $q \ll 1/\xi$ , soit

$$\omega \ll \frac{K}{\tilde{\gamma}_e \xi^2} \sim \tau_m^{-1}(T)$$

Ceci impose  $\omega \ll (\Delta T/T) 10^{11}$  Hz.

4.2.2 *Relaxation en dessous de  $T_c$ .* — En dessous de  $T_c$ , nous avons trouvé que les fréquences de relaxation des fluctuations de  $n_1$  et  $n_2$

$$\omega_1 = \frac{i}{\tilde{\gamma}_e} \left( \tilde{K}_3 q^2 + K_1 q_{\perp}^2 + \frac{\psi_0^2 q_s^2 q_z^2}{2 M_T q^2} \right)$$

$$\omega_2 = \frac{i}{\tilde{\gamma}_e} \left( \tilde{K}_3 q_z^2 + \tilde{K}_2 q_{\perp}^2 + \frac{\psi_0^2 q_s^2}{2 M_T} \right).$$

Deux cas sont à envisager :

$$1) \omega \gg \frac{\psi_0^2 q_s^2}{2 M_T \tilde{\gamma}_e}$$

$$\left( \text{fréquence de l'ordre de } 10^{11} \left( \frac{\Delta T}{T} \right) \text{ Hz} \right).$$

On retrouve un comportement type nématique.

$$2) \omega \ll \frac{\psi_0^2 q_s^2}{2 M_T \tilde{\gamma}_e}.$$

$1/T_1$  devient indépendant de la fréquence.

Si on néglige la diffusion des molécules,

$$J(\omega) \propto \int \left( Q^2 + \frac{\psi_0^2 q_s^2}{2 M_T \tilde{\gamma}_e} \right)^{-2} \tilde{\gamma}_e^{1/2} \frac{d_3 Q}{\sqrt{K_3 K_1}}$$

$$J(\omega) \propto \frac{\tilde{\gamma}_e^{1/2}}{\left( \frac{\psi_0^2 q_s^2}{2 M_T \tilde{\gamma}_e} \times \tilde{K}_3 \right)^{1/2}} \simeq \left( \frac{T}{\Delta T} \right)^{1/3}.$$

Avec les valeurs estimées ci-dessus, pour  $T < T_c$ ,  $1/T_1$  ne dépend pas de la fréquence si  $\omega_N < 10^{11} \cdot (\Delta T/T)$ . Dans ce régime, il est pratiquement impossible de distinguer l'effet des fluctuations du directeur d'autres mécanismes microscopiques impliquant des temps de corrélation courts.

On peut montrer par ailleurs que les modes lents associés à l'ondulation des couches smectiques donnent une contribution négligeable à la relaxation.

5. **Conclusion.** — Le principal intérêt de la transition smectique A-nématique est de nous fournir un deuxième système pour lequel, comme pour l'hélium, le paramètre d'ordre  $\psi$  est un nombre complexe. Certains exposants critiques (statiques et dynamiques) qui sont inaccessibles dans l'hélium deviennent accessibles dans un smectique A. Nous avons essayé ici de prévoir les exposants qui sont associés aux principaux phénomènes dynamiques et qui se prêtent à quelques expériences intéressantes. Toutefois, notre analyse fait intervenir un grand nombre de postulats, dont certains sont assez hasardeux, qui sont regroupés ci-dessous :

1) Les lois d'échelle statiques permettent de construire une théorie phénoménologique des transitions de phase en bon accord avec les données expérimentales pour de nombreux systèmes [4], [19], [22]. Leur validité cependant n'a pas été prouvée.

2) Nous avons supposé l'identité des exposants statiques pour deux systèmes de même symétrie (A et  $H_e$ ).

Si l'on compare par exemple les systèmes ferromagnétiques *planaires* (à 2 composantes de spin) et superfluides qui appartiennent à la même classe de symétrie, cette hypothèse paraît bien vérifiée. Toutefois, les smectiques ont des fluctuations de phase divergentes, qui n'ont pas l'analogie dans les superfluides [23].

3) Nous avons utilisé les lois d'échelles dynamiques pour étudier les fluctuations critiques du paramètre d'ordre  $\psi$ . Ce type d'hypothèse de travail a été fructueux dans de nombreux cas [5], [15], [22], mais reste mal fondé théoriquement.

4) L'utilisation des lois d'échelle pour une grandeur  $\delta n$  qui n'est pas le paramètre d'ordre est encore plus incertaine.

5) Nous avons supposé  $\tilde{K} \sim \xi$ . (Cette relation n'a été établie dans la référence [1] qu'en utilisant une théorie de champ moléculaire.)

Les expériences que nous proposons pour tester ces prévisions sont les suivantes, par ordre de difficulté croissante :

— diffusion de la lumière dans le domaine  $q\xi < 1$

$$\begin{aligned} &\rightarrow \tilde{K}_2(T), \tilde{K}_3(T) \\ &\rightarrow \tilde{\gamma}(T) \end{aligned}$$

— effet Brillouin

$$\rightarrow \rho_s(T) = \frac{\psi_0^2}{M}$$

- absorption du 1<sup>er</sup> son  
→  $\tau_m(T)$
- relaxation nucléaire  
→  $\tilde{K}_3$   
→  $\tau_n$
- diffusion de la lumière dans le domaine  $q\xi \ll 1$   
→  $\Delta\omega_q(T_c) \sim q^{3/2}$
- écoulement dans un capillaire par perméation  
→  $\zeta(T) \sim \frac{1}{\Delta T}$
- diffusion inélastique de neutrons  
→  $\tau_m(T)$   
→  $\Delta\omega_\psi \sim q^{3/2}$ .

Je tiens à remercier P. G. de Gennes et O. Methoni pour de nombreuses discussions et conseils sur ce sujet, ainsi que G. Durand et M. Delaye.

APPENDICE A. — *Calcul de la fonction de corrélations  $\langle \theta\theta \rangle_{q\omega}$  des fluctuations de la dilatation.* — On mesure par effet Brillouin les fluctuations de la densité. Nous allons calculer les surfaces  $S_1$  et  $S_2$  des doublets Brillouin relatifs aux 1<sup>er</sup> et 2<sup>e</sup> sons.

Pour calculer  $\langle \theta\theta \rangle_{q\omega}$ , on applique le théorème de fluctuation-dissipation qui, dans la limite  $h\omega \ll kT$ , s'écrit :

$$\langle \theta\theta \rangle_{q\omega} = -\frac{kT}{\omega} \text{Im} \chi(q, \omega)$$

où  $\chi(q, \omega)$ , la fonction de réponse (compressibilité dynamique) du système lorsque l'on applique une pression  $p = p_0 e^{i(\omega t + \mathbf{q}\cdot\mathbf{r})}$ , est définie par

$$\theta = \chi(q, \omega) p.$$

Si Oz est l'axe smectique et Ox l'axe continu dans le plan  $(q, \text{Oz})$ , les équations du mouvement sont [6], en négligeant la dissipation :

$$i\omega\rho v_z = (B_0 \psi_0^2 q_s^2 + \psi_0^2 q_s C_0) \frac{i}{\omega} q_z^2 v_z + (A_0 + \psi_0^2 q_s C_0) i q_z \theta - i q_z p \quad (\text{A.1})$$

$$i\omega\rho v_x = \psi_0^2 q_s C_0 \frac{i}{\omega} q_x q_z v_z + A_0 i q_x \theta - i q_x p \cdot \mathbf{q} \cdot \mathbf{v} = \omega\theta$$

On se place dans le cas où  $q$  fait un angle de 45° avec Oz. En éliminant  $v$ , il vient :

$$\frac{\theta}{p} = \chi(q, \omega) = q^2 \frac{\rho\omega - \frac{q^2}{4} B_0 \psi_0^2 q_s^2}{\frac{q^2}{2} (A_0 + \psi_0^2 q_s C_0) \left( \rho\omega^2 + C_0 q_s \psi_0^2 \frac{q^2}{2} \right) + \left[ \rho\omega^2 - \frac{q^2}{2} (\psi_0^2 q_s^2 B_0 + C_0 \psi_0^2 q_s) \right] \left( A_0 \frac{q^2}{2} \omega^2 \rho \right)} \quad (\text{A.2})$$

d'où

$$\langle \theta\theta \rangle_{q\omega} = S_1 \delta(\omega \pm \omega_1) + S_2 \delta(\omega \pm \omega_2)$$

avec :

$$\omega_1^2 = q^2 \frac{A_0}{\rho}; \quad \omega_2^2 = \frac{q_s^2 \psi_0^2}{4\rho} \left( B_0 - \frac{\psi_0^2 C_0^2}{A_0} \right) q^2$$

et

$$S_1 = \frac{\pi kT}{2 A_0}; \quad S_2 = \frac{\pi kT}{2 \frac{A_0^2}{C_0^2 \psi_0^2} \left( B_0 - \frac{C_0^2 \psi_0^2}{A_0} \right)}.$$

En tenant compte de la friction,  $\langle \theta\theta \rangle_{q\omega}$  serait de la forme :

$$\langle \theta\theta \rangle_{q\omega} = \frac{kT}{A_0} \frac{\eta_1 A_0 q^2}{(\rho\omega^2 - A_0 q^2)^2 + (\eta_1 q^2 \omega)^2} + \frac{C_0^2 \psi_0^4 q_s^2 \eta_2 q^4 / 4 A_0}{\left[ \rho\omega^2 - \left( B_0 - \frac{C_0^2}{A_0} \right) \frac{\psi_0^2 q_s^2}{4} q^2 \right]^2 + (\eta_2 q^2 \omega)^2}. \quad (\text{A.2 bis})$$

Les surfaces  $S_1$  et  $S_2$  des doublets Brillouin déduites de (A.2 bis) sont :

$$S_1 = \frac{\pi}{2} \frac{kT}{A_0} \frac{A_0 q^2}{A_0 q^2 + \eta_1^2 \frac{q^4}{\rho}} \quad (\text{A.3})$$

$$S_2 = \frac{\pi}{2} \frac{kT}{A_0^2} \frac{\psi_0^4 q_s^2 C_0^2 q^2 / 4}{\left( B_0 - \frac{\psi_0^2 C_0^2}{A_0} \right) \frac{\psi_0^2 q_s^2}{4} q^2 + \eta_2^2 \frac{q^4}{\rho}}. \quad (\text{A.4})$$

Nous avons trouvé (éq. (3.4)) que  $\eta_2^2 \sim \xi$ . Le dénomi-

nateur de (4) est donc de la forme  $(q^2/\rho)(1 + q^2 \xi^2)$  et dans la limite  $q\xi \ll 1$ ,

$$S_2 \simeq \frac{\pi}{2} \frac{k_B T}{A_0^2} \frac{C_0^2 \psi_0^2}{B_0 - \frac{C_0^2 \psi_0^2}{A_0}}.$$

La surface de  $S_2$  s'annule comme  $(T - T_c)^{2\beta}$ .

**APPENDICE B. — Transport d'ions au voisinage de la transition A  $\leftrightarrow$  N.** — En phase nématique, les mesures de conductivité électrique montrent généralement que la conductivité parallèle à l'axe optique ( $\sigma_{\parallel}$ ) est supérieure à la conductivité perpendiculaire ( $\sigma_{\perp}$ ). Récemment, F. Rondelez [20] a montré que dans certains composés présentant une phase smectique,  $\sigma_{\perp}$  peut être plus grande que  $\sigma_{\parallel}$ . Cet effet a été interprété par l'apparition dans la phase nématique des groupes cybotactiques (Fig. 1). On retrouve ces propriétés si l'on regarde la diffusion d'un colorant dans une matrice nématique [21]. Nous allons calculer l'anisotropie de conductivité qui apparaît lors de la transition A  $\leftrightarrow$  N en utilisant un modèle simple de barrières de potentiel périodiques.

Nous supposons que chaque couche smectique joue le rôle d'une barrière de potentiel de hauteur proportionnelle à l'amplitude  $\Psi_0$  du paramètre d'ordre. Si l'axe optique du nématique est dirigé suivant  $oz$ , ce potentiel s'écrit  $U = U_0 \sin q_s z$ , où  $U_0 = \text{Cte} \cdot \Psi_0$ .

Soit  $N(r)$  la densité des porteurs. En présence d'une force extérieure parallèle à l'axe optique, il apparaît un courant

$$J = -D_{\parallel} \frac{\partial N}{\partial z} + \mu_{\parallel} N \left( F_{\text{ext}} - \frac{\partial U}{\partial z} \right) \quad (\text{B.1})$$

où  $\mu_{\parallel}$  est la mobilité extrapolée depuis la phase nématique et  $D_{\parallel}$  le coefficient de diffusion.  $\mu_{\parallel}$  et  $D_{\parallel}$  sont liés par la relation d'Einstein  $D_{\parallel} = \mu_{\parallel} kT$ .

La densité de porteurs  $N(r)$  peut s'écrire :

$$N(r) = N_0(r) + N_1(r)$$

où  $N_0(r)$  est la densité de charges à l'équilibre satisfaisant à :

$$-D_{\parallel} \frac{\partial N_0}{\partial z} + \mu_{\parallel} N_0 (-U_0 q_s \cos q_s z) = 0$$

soit

$$N_0 = \langle N \rangle \exp \left( -\frac{U_0}{kT} \sin q_s z \right)$$

et  $N_1(r)$  est la variation de densité en présence de la

force appliquée.  $N_1(r)$  doit satisfaire à l'équation de conservation

$$\int N_1 dz = 0. \quad (\text{B.2})$$

Le courant  $J$  est conservatif ( $\text{div } J = 0$ ), soit

$$J = -D_{\parallel} \frac{\partial N_1}{\partial z} + \mu_{\parallel} N_0 F_{\text{ext}} - \mu_{\parallel} N_1 q_s U_0 \cos q_s z = \text{Cte} \quad (\text{B.3})$$

(B.3) s'intègre facilement

$$N_1 = \exp \left( -\frac{U_0}{kT} \sin q_s z \right) \times \int \left[ \frac{J}{D_{\parallel}} \exp \left( \frac{U_0}{kT} \sin q_s z \right) - \frac{N}{kT} F_{\text{ext}} \right] dz \quad (\text{B.4})$$

et la condition (B.2) est satisfaite si

$$\int_0^{2\pi/q_s} \left[ \frac{J}{D_{\parallel}} \exp \left( \frac{U_0}{kT} \sin q_s z \right) - \frac{N F_{\text{ext}}}{kT} \right] dz = 0. \quad (\text{B.5})$$

Soit

$$J = \frac{\mu_{\parallel} N}{J_0 \left( -i \frac{U_0}{kT} \right)} F_{\text{ext}}$$

où  $J_0$  est la fonction de Bessel d'ordre zéro. L'éq. (B.6) définit la mobilité  $\tilde{\mu}_{\parallel}$  en présence de couches smectiques :

$$\tilde{\mu}_{\parallel} = \frac{\mu_{\parallel} N}{J_0 \left( -i \frac{U_0}{kT} \right)}. \quad (\text{B.6})$$

— Dans la limite  $U_0/kT \gg 1$ , (B.6) peut se développer :

$$\tilde{\mu}_{\parallel} \sim \mu_{\parallel} \exp(-c\Psi_0). \quad (\text{B.7})$$

La mesure de l'anisotropie de mobilité en phase smectique (ou de self-diffusion) doit donc permettre de mesurer la variation de  $\Psi_0$  avec la température.

— Dans la limite  $U_0/kT \ll 1$ , on trouve

$$\tilde{\mu}_{\parallel} \sim \mu_{\parallel} \left( 1 - \frac{U_0^2}{4 k^2 T^2} \right). \quad (\text{B.8})$$

Près de  $T_c$ , la mesure de l'anisotropie de conductivité permettra de déterminer la valeur moyenne locale des fluctuations du paramètre d'ordre  $\langle \Psi_0^2 \rangle_T$ .

### Bibliographie

- [1] DE GENNES, P. G., An analogy between superconductors and smectics A, *Solid State Commun.* **10** (1972) 573.  
 [2] MARTIN, P. C., PARODI, O., PERSHAN, P. S., An unified hydrodynamic theory for crystals, *Liquid Crystals and Normal Fluids*, to be published.  
 [3] LESLIE, F. M., *Quart. J. Mech. Appl. Math.* **19** (1966) 356.  
 [4] FERRELL, R. A., MENYHARD, N., SCHMIDT, H., SCHWABL, F. and SZÉFFALUSY, P., *Ann. Phys.* **47** (1968).

- [5] HOHENBERG, P. C., Varenna Summer School on critical phenomena (1970).
- [6] DE GENNES, P. G., Conjonctures sur l'état smectique **30** (1969) 65.
- [7] *Groupe d'étude des Cristaux Liquides* (Orsay), *J. Chem. Phys.* **51** (1969) 816.
- [8] HELFRICH, W., *Phys. Rev. Lett.* **23** (1969) 372.  
PORTER, R. S., BARRALL, *J. Chem. Phys.* **45** (1966) 1452.
- [9] LANDAU, L. D., LIFSHITZ, E. M., *Fluid Mechanics*, Ch. 8.
- [10] KAWASAKI, K., Varenna Lectures on Critical Phenomena (1970).
- [11] PINCUS, P., *Solid State Commun.* **7** (1969) 415.
- [12] MC MILLAN, W. L., *Phys. Rev. A* **4** (1971) 1238.
- [13] DOANE, J. W., PARKER, R. S. and CVIKL, B., JOHNSON, D. L. and FISHEL, D. L., *Phys. Rev. Lett.* **28** (1972) 1964.
- [14] JOSEPHSON, B. D., *Phys. Lett.* **21** (1966) 608.
- [15] HALPERIN, B. I. and HOHENBERG, P. C., *Phys. Rev.* **117** (1969) 952.
- [16] DE VRIES, A., *Mol. Crystal and Liq. Cryst.* **10** (1970) 31, **10** (1970) 219, **11** (1970) 361.
- [17] WEGER, M., CABANE, B., *J. Physique* **30** (1969) C 472, VISINTAINER, J. J., DOANE, J. W., *Mol. Cryst. and Liq. Cryst.* **13** (1971) 69.  
ASSIS MARTINS, F., *Phys. Rev. Lett.* **28** (1972) 289.
- [18] WILSON, K. G., FISHER, M. E., *Phys. Rev. Lett.* **28** (1972) 289.
- [19] FISHER, M., *Rep. Prog. Phys.* **XXX** (1967) 615.
- [20] RONDELEZ, F., to be published.
- [21] RONDELEZ, F., Private Communication.
- [22] STANLEY, H., Clarendon Press, Oxford (1971).
- [23] DE GENNES, P. G., IV. International L. C. Conference Kent, à paraître.
- [24] GEURST, J. A. and GOOSSENS, W. J. A., *Phys. Lett.* **41** (1972) 369.
- [25] BROCHARD, F., IV. International L. C. Conference, Kent, à paraître.
- [26] PERL, R., FERRELL, R., *Phys. Rev. Lett.* **29** (1972) 51.
- [27] JÄHNING, J., BROCHARD, F., à paraître.
-