

Observation de phonons chiraux par l'effet Hall  
thermique dans la phase pseudogap des cuprates  
(Nd, Eu)-La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>

par

Steven Thériault

Mémoire présenté au département de physique  
en vue de l'obtention du grade de maître sciences (M.Sc.)

FACULTÉ des SCIENCES  
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 15 avril 2022

Le 15 avril 2022

*le jury a accepté le mémoire de Monsieur Steven Thériault dans sa version finale.*

Membres du jury

Professeur Louis Taillefer  
Directeur de recherche  
Département de physique

Professeur Claude Bourbonnais  
Membre interne  
Département de physique

Professeur Patrick Fournier  
Président rapporteur  
Département de physique

Cet ouvrage est dédié à mes grand-parents,  
puissiez-vous être bien là où vous êtes.

"[Galilée] déclare que dans tous ces phénomènes il faut mesurer tout ce qui est mesurable,  
et tâcher de rendre mesurable tout ce qui ne l'est pas"

-Martin, Thomas Henri, 1868.

# Sommaire

Les cuprates sont étudiés depuis plus de trente ans, mais certaines de leurs propriétés sont encore mystérieuses. Les cuprates ont également un diagramme de phases riche qui est cible de plusieurs sondes expérimentales. Une récente technique de mesure, l'effet Hall thermique, a permis d'observer une nouvelle propriété de la phase pseudogap. En effet, le signal d'effet Hall thermique observé demeure négatif dans la phase pseudogap, en opposition à l'effet Hall électrique qui reste positif. Ce signal est également présent dans le composé parent non dopé  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  qui est un isolant de Mott, suggérant que les porteurs de chaleurs ne sont pas les électrons.

Le premier chapitre de ce mémoire fait un retour sur les cuprates et l'article qui a motivé les expériences qui ont suivi. Le deuxième chapitre porte sur l'aspect théorique des mesures, particulièrement l'effet Hall thermique  $\kappa_{xy}$  et  $\kappa_{zy}$ , ainsi que les défis expérimentaux reliés à cette mesure. Finalement, le troisième chapitre porte sur les résultats expérimentaux importants et une discussion sur leur interprétation.

La particularité des mesures d'effet Hall thermique de ce mémoire est qu'elles ont été effectuées perpendiculairement aux plans de cuivre-oxygène des cuprates, direction dans laquelle plusieurs excitations sont peu mobiles. Nos résultats démontrent que les phonons sont les principaux porteurs de chaleur et qu'ils deviennent chiraux dans la phase pseudogap. Nous pensons également que les domaines structuraux, les impuretés magnétiques et les impuretés d'oxygène ne sont pas responsables de cette chiralité. Les mesures et conclusions importantes ont été publiées en juillet 2020 dans le journal scientifique *Nature Physics* et apparaissent dans l'édition de novembre 2020[1].

# Remerciements

Deux ans déjà, que le temps passe vite lorsque l'on a du plaisir (et que l'on cherche à avoir du temps de mesures). Malgré les défis reliés à la pandémie de COVID-19, ces deux dernières années dans le groupe de Louis Taillefer ont été très significatives pour moi et je souhaite remercier chaleureusement toutes les personnes qui en ont pris part.

Tout d'abord un chaleureux merci à Louis de m'avoir accepté à bras ouvert dans son groupe et pour l'opportunité de travailler avec un chercheur aussi exceptionnel. Grâce à toi j'ai enfin pu réaliser mon rêve de jeunesse d'enfin pouvoir travailler dans un vrai laboratoire de recherche.

Merci aux membres du groupe qui m'ont fait découvrir la méthodologie expérimentale des différentes mesures, de la préparation des échantillons jusqu'aux transferts d'hélium. Merci Francis Laliberté, Patrick Bourgeois-Hope, Marie-Eve Boulanger pour votre accueil et soutien. Merci particulièrement à Gaël Grissonnanche et Adrien Gourgout pour avoir dû me supporter, en plus de mes nombreuses gaffes, lors de mes premières mesures d'effet Hall thermique (et les suivantes également). Merci à Étienne Lefrançois qui doit supporter mes gaffes encore aujourd'hui et est toujours d'une grande aide dans nos mesures. Un autre merci particulier à Seyed Amirreza Ataei, qui en plus d'avoir aidé grandement à ma formation sur les échantillons et le PPMS, a partagé son bureau avec le mien et toutes mes plantes pendant ces deux années. Sans votre formation et support je ne serais certainement pas où j'en suis aujourd'hui, d'ailleurs merci à notre technicien de laboratoire, Simon Fortier, pour son aide avec des problèmes que je n'aurais jamais imaginé avoir. C'est fou la variété de problèmes qui surviennent et comment la sagesse générale du groupe permet de les régler rapidement.

Merci aux autres membres du groupes, arrivés ou partis depuis ma propre arrivée. Nicolas Doiron-Leyraud, Clément Girod, Lu Chen, Quentin Barthélemy, Jordan Baglo (qui cherche toujours à pousser mon esprit critique de chercheur) et tous les stagiaires qui ont apporté leur grain de sel aux conversations de groupe lors de nos *chitchats*.

## *Remerciements*

---

Un gros merci à mes parents, amis et famille, mon grand-père qui est malheureusement décédé il y a quelques mois. Même si vous ne comprenez pas toujours ce que je fais, vous êtes très importants pour moi.

Merci à vous tous qui de près et de loin (mais surtout de loin, au moins 2 mètres et avec un masque) ont fait parti de ma vie ces dernières années. Tous ces moments vont rester avec moi pour très longtemps.

Finalement, merci à la FCI, le CRSNG, le FRQNT et tout les autres organismes qui ont aidé pour le financement, non seulement de mon salaire, mais également pour les instruments scientifiques très coûteux sans quoi je n'aurais pas pu faire mes recherches.

# Table des matières

|  |            |
|--|------------|
| <b>Sommaire</b>  | <b>iii</b> |
| <b>Publications</b>  | <b>1</b>   |
| <b>1 Mise en contexte</b>  | <b>2</b>   |
| 1.1 Introduction aux cuprates . . . . .  | 2          |
| 1.1.1 Retour historique sur la supraconductivité . . . . .                             | 2          |
| 1.1.2 La famille du $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . . . . .                                | 5          |
| 1.2 Motivation du projet . . . . .   | 9          |
| 1.3 L'effet Hall thermique dans la littérature scientifique . . . . .                  | 11         |
| <b>2 Méthodes expérimentales en transport</b>  | <b>17</b>  |
| 2.1 Aspects théoriques . . . . .   | 17         |
| 2.1.1 Conductivité électrique longitudinale $\sigma$ . . . . .                         | 17         |
| 2.1.2 Conductivité électrique transverse $\sigma_{xy}$ . . . . .                       | 23         |
| 2.1.3 Conductivité thermique longitudinale $\kappa$ . . . . .                          | 24         |
| 2.1.4 Conductivité thermique transverse (effet Hall thermique) $\kappa_{xy}$ . . . . . | 29         |
| 2.1.5 Loi de Wiedemann-Franz . . . . .   | 31         |
| 2.2 Aspects expérimentaux . . . . .  | 32         |
| 2.2.1 Croissance des échantillons . . . . .  | 32         |
| 2.2.2 Contacts . . . . .   | 33         |
| 2.2.3 Sonde et montage . . . . .   | 36         |
| 2.2.4 Instrumentation et équipement . . . . .  | 41         |
| 2.2.5 Difficultés expérimentales . . . . .   | 47         |
| 2.2.6 Résumé de la mesure . . . . .  | 49         |
| <b>3 Résultats et discussion sur les phonons chiraux</b>                               | <b>51</b>  |
| 3.1 Résultats expérimentaux . . . . .  | 52         |
| 3.1.1 Observations de phonons chiraux . . . . .  | 52         |



*TABLE DES MATIÈRES*

---

|       |  |           |
|-------|--|-----------|
| 3.1.2 | Phase pseudogap et chiralité . . . . .                   | 54        |
| 3.2   | Mécanismes conférant une chiralité aux phonons . . . . . | 62        |
| 3.2.1 | Impuretés magnétiques . . . . .                          | 62        |
| 3.2.2 | Domaines structuraux . . . . .                           | 64        |
| 3.2.3 | Impuretés d'oxygène . . . . .                            | 67        |
| 3.2.4 | Autres . . . . .   | 68        |
|       | <b>Conclusion</b>  | <b>68</b> |
|       | <b>A Compendium des mesures expérimentales</b>           | <b>70</b> |
|       | <b>B Incertitudes et barres d'erreur</b>                 | <b>88</b> |
|       | <b>Bibliographie</b>                                     | <b>90</b> |

## Liste des tableaux

|     |  |    |
|-----|--|----|
| A.1 | Table des mesures de Nd-LSCO . . . . .                           | 71 |
| A.2 | Table des mesures de Eu-LSCO et LSCO . . . . .                   | 72 |
| A.3 | Table des mesures de $\text{Cu}_3\text{TeO}_6$ et BEDT . . . . . | 73 |
| B.1 | Table des mesures de Eu-LSCO et LSCO . . . . .                   | 90 |

# Table des figures

|      |   |    |
|------|---|----|
| 1.1  | Température critique en fonction du temps . . . . .   | 5  |
| 1.2  | Structure du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . . . . .                                     | 6  |
| 1.3  | Diagramme de phases des cuprates . . . . .  | 8  |
| 1.4  | Pseudogap selon des mesures d'ARPES . . . . .   | 9  |
| 1.5  | Loi de WF $\kappa_{xy}/T$ vs $L_0\sigma_{xy}$ (bleu) dans le Nd-LSCO $p = 0.24$ et $p = 0.20$ . . . | 10 |
| 1.6  | Effet Hall thermique $\kappa_{xy}/T$ en fonction du dopage dans le pseudogap . . . .                | 11 |
| 1.7  | Montage de mesure magnéto-transverse . . . . .  | 12 |
| 1.8  | Effet magnéto-transverse dans le $\text{Tb}_3\text{Gd}_5\text{O}_{12}$ . . . . .                    | 13 |
| 1.9  | Effet Hall thermique dans le $\text{SrTiO}_3$ . . . . .   | 14 |
| 1.10 | Effets des domaines sur l'effet Hall thermique dans le $\text{SrTiO}_3$ . . . . .                   | 14 |
| 1.11 | Diffusion sur défauts d'oxygène . . . . .   | 15 |
| 1.12 | Fit exponentiel selon un modèle de courbure de Berry . . . . .                                      | 16 |
| 2.1  | Structure de bande du LCO . . . . .   | 21 |
| 2.2  | Schéma de mesure de résistivité $\rho_{xx}$ et d'effet Hall $R_H$ . . . . .                         | 23 |
| 2.3  | Schéma de montage pour la conductivité thermique . . . . .  | 26 |
| 2.4  | Diffusion des phonons selon la température . . . . .  | 29 |
| 2.5  | Image de contacts d'argent . . . . .  | 35 |
| 2.6  | Image d'un échantillon sur la sonde . . . . .   | 37 |
| 2.7  | Image et schéma de la sonde . . . . .   | 39 |
| 2.8  | Thermocouple . . . . .  | 40 |
| 2.9  | Puck PPMS . . . . .   | 41 |
| 2.10 | PPMS . . . . .  | 43 |
| 2.11 | Cryostat et instrumentation . . . . .   | 44 |
| 2.12 | Labview . . . . .   | 45 |
| 2.13 | Voltage en fonction du temps . . . . .  | 46 |
| 2.14 | $dT_x$ vs $dT_y$ pour le Nd-LSCO 0.21 axe $c$ . . . . .   | 49 |

TABLE DES FIGURES

|      |  |    |
|------|--|----|
| 3.1  | Conductivité thermique du LCO selon Hess . . . . .   | 53 |
| 3.2  | Conductivité thermique du LCO . . . . .  | 54 |
| 3.3  | Effet Hall thermique du LCO . . . . .  | 55 |
| 3.4  | Conductivité thermique dans le Nd-LSCO et Eu-LSCO, $p = 0.21$ et $0.24$ . . .  | 56 |
| 3.5  | Loi de Wiedemann-Franz dans le Nd-LSCO et Eu-LSCO, $p = 0.21$ et $0.24$ . .  | 57 |
| 3.6  | Effet Hall thermique dans le Nd-LSCO et Eu-LSCO, $p = 0.21$ et $0.24$ . . . .  | 58 |
| 3.7  | Loi de Wiedemann-Franz transverse dans le Nd-LSCO et Eu-LSCO, $p = 0.21$<br>et $0.24$ . . . . .  | 59 |
| 3.8  | Degré de chiralité vs dopage . . . . .   | 61 |
| 3.9  | Degré de chiralité vs conductivité électrique . . . . .  | 61 |
| 3.10 | Mesures thermiques dans le $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , le $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ et le $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ . . . .   | 63 |
| 3.11 | Degré de chiralité dans le $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , le $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ et le $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ . . . . . | 64 |
| 3.12 | Diagramme de phases structurales du Nd-LSCO . . . . .  | 66 |
| 3.13 | Diagramme d'ordre de charge du Nd-LSCO . . . . .   | 67 |
|      |  |    |
| A.1  | Nd-LSCO 0.21 axe $a$ . . . . .   | 74 |
| A.2  | Nd-LSCO 0.21 axe $c$ . . . . .   | 74 |
| A.3  | Nd-LSCO 0.22 axe $a$ . . . . .   | 75 |
| A.4  | Nd-LSCO 0.22 axe $c$ . . . . .   | 75 |
| A.5  | Nd-LSCO 0.23 axe $a$ . . . . .   | 76 |
| A.6  | Nd-LSCO 0.23 axe $c$ . . . . .   | 76 |
| A.7  | Nd-LSCO 0.24 axe $a$ . . . . .   | 77 |
| A.8  | Nd-LSCO 0.24 axe $c$ . . . . .   | 77 |
| A.9  | Nd-LSCO 0.26 axe $a$ . . . . .   | 78 |
| A.10 | Nd-LSCO 0.26 axe $c$ . . . . .   | 78 |
| A.11 | Eu-LSCO 0.21 axe $a$ . . . . .   | 79 |
| A.12 | Eu-LSCO 0.21 axe $c$ . . . . .   | 79 |
| A.13 | Eu-LSCO 0.24 axe $a$ . . . . .   | 80 |
| A.14 | Eu-LSCO 0.24 axe $c$ . . . . .   | 80 |
| A.15 | Eu-LSCO 0.08 axe $a$ . . . . .   | 81 |
| A.16 | LSCO 0.06 axe $a$ . . . . .  | 81 |
| A.17 | LSCO 0.19 axe $a$ . . . . .  | 82 |
| A.18 | LSCO 0.19 axe $c$ . . . . .  | 82 |
| A.19 | LSCO 0.21 axe $a$ . . . . .  | 83 |
| A.20 | LSCO 0.21 axe $c$ . . . . .  | 83 |
| A.21 | LSCO 0.24 axe $a$ . . . . .  | 84 |
| A.22 | LSCO 0.24 axe $c$ . . . . .  | 84 |

TABLE DES FIGURES

---

|  |    |
|--|----|
| A.23 LSCO 0.24 Ono axe $a$ . . . . .     | 85 |
| A.24 LSCO 0.24 Ono axe $c$ . . . . .     | 85 |
| A.25 LCO axe $a$ . . . . .               | 86 |
| A.26 LCO axe $c$ . . . . .               | 86 |
| A.27 $\text{Cu}_3\text{TeO}_6$ . . . . . | 87 |
| A.28 $\text{Cu}_3\text{TeO}_6$ . . . . . | 87 |
| B.1 Incertitude des contacts . . . . .   | 89 |
| B.2 Mesure de $\Delta T_y$ . . . . .     | 91 |

# Publications

**Titre : Chiral phonons in the pseudogap phase of cuprates**

**Auteurs :** G. Grissonnanche, S. Thériault, A. Gourgout, M.-E. Boulanger, E. Lefrançois, A. Ataei, F. Laliberté, M. Dion, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, N. Doiron-Leyraud and L. Taillefer.

**Journal :** Nature Physics volume 16, pages 1108–1111 (2020)[1]

**Titre : Effect of pressure on the pseudogap and charge density wave phases of the cuprate Nd-LSCO probed by thermopower measurements**

**Auteurs :** A. Gourgout, A. Ataei, M.-E. Boulanger, S. Badoux, S. Thériault, D. Graf, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, Nicolas Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer

**Journal :** Physical Review Research volume 3, issue 2 (2021)[2]

## Chapitre 1

# Mise en contexte

### 1.1 Introduction aux cuprates

---

#### 1.1.1 Retour historique sur la supraconductivité

Ce mémoire est consacré à l'étude des propriétés de transport dans la famille des cuprates (Nd,Eu)- $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Pour alléger le texte, ils seront renommés selon leur composition : LCO ( $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ), LSCO ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ), Nd-LSCO ( $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ) et Eu-LSCO ( $\text{La}_{1.8-x}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ). Avant de poursuivre plus en détail sur les mesures elles-mêmes ainsi que le sujet de ce mémoire, il convient de faire un retour sur les découvertes ayant motivé l'étude de ces matériaux pour mettre en contexte le lecteur et éclairer celui-ci sur l'importance des cuprates.

Un détour presque obligatoire est de remonter en 1911 où le physicien néerlandais Heike Kamerlingh Onnes refroidit un échantillon de mercure à un record de basses températures pour l'époque :  $T < 4.2 \text{ K}$  ou  $-268.96 \text{ °C}$ , plus froid que le plus froid des hivers canadiens. Son secret, l'hélium liquide, le liquide le plus froid que l'on peut avoir en grande quantité et à pression ambiante sur Terre. La liquéfaction de l'hélium avait été réussie pour la première fois en laboratoire quelques années auparavant par le même chercheur, celui-ci possédait donc le monopole mondial d'hélium liquide et ne s'est pas gêné pour s'en servir dans les premières expériences à très basse température. L'expérience en question qui nous concerne ici consistait à prendre une mesure de conductivité électrique sur un échantillon de mercure pendant son refroidissement. Il fut alors très surpris de découvrir que la résistivité du mercure chutait rapidement à une valeur trop faible pour être mesurée ( $R \sim 0 \Omega$ ) lorsque la température descendait sous  $4.2 \text{ K}$ , le courant traversait le mercure sans opposition, sans

## 1.1. INTRODUCTION AUX CUPRATES

---

résistance, comme s'il n'y avait pas d'échantillon[3]. Sa découverte, la supraconductivité, ainsi que son étude des matériaux à basse température et la liquéfaction de l'hélium liquide lui valut le prix Nobel de physique en 1913.

Dans les matériaux traditionnels, lorsque l'on tente de faire traverser un courant dans un échantillon, celui-ci s'y oppose, il possède une résistance électrique. La conductivité et la résistivité électrique sont expliquées plus en détail dans le chapitre 2.1.1. La supraconductivité est la propriété d'un matériau à avoir une résistance nulle et par le fait même, la capacité de transmettre un courant électrique sans aucune perte, peu importe la taille de l'échantillon (ou du fil). Cette propriété est une manifestation à grande échelle de phénomènes quantiques. En plus d'être un sujet d'étude fascinant, il y a d'innombrables applications pratiques qu'il est très difficile, voire impossible de reproduire avec des matériaux qui ne sont pas supraconducteurs. Puisqu'une grande quantité de courant peut traverser ces matériaux sans que ceux-ci fondent sous la chaleur causée par la résistance électrique, ils sont utilisés aujourd'hui surtout là où l'on a besoin de champs magnétiques très puissants, comme dans les IRM médicales ou le domaine de la recherche. Puisqu'il n'y a pas de perte, le courant circulant dans ces électroaimants ne s'arrête jamais et le champ magnétique persiste aussi longtemps qu'on le désire. Il suffit d'imaginer l'énergie perdue en chaleur dans les lignes de transmission électriques traversant de grandes distances comme ceux venant de la Baie-James ou bien toute la chaleur produite dans les ordinateurs des serveurs informatiques pour se rendre compte des possibilités qu'il reste encore à explorer. Le problème majeur de la supraconductivité est qu'elle ne se manifeste qu'à des températures extrêmement basses sous ce qui est appelé la température critique ( $T_c$ ). L'utilisation de supraconducteurs requiert donc un système de refroidissement et d'isolation qui peut demander de grandes quantités d'hélium liquide ce qui, en plus d'être inconfortable et coûteux, limite leur utilisation à des applications dont les alternatives sont encore plus onéreuses. Ainsi est née il y a plus de 100 ans la quête aux supraconducteurs avec la  $T_c$  la plus élevée possible.

L'explication du phénomène de supraconductivité a dû attendre 1957 et les chercheurs Bardeen, Cooper et Schrieffer pour le développement de la théorie BCS [4]. Selon leur théorie, lorsqu'un matériau supraconducteur est refroidi sous sa  $T_c$ , les électrons se condensent en paires de Cooper par une interaction avec les phonons (vibrations) du cristal. Lorsqu'un électron négatif se propage dans un cristal, les ions positifs (les noyaux atomiques) sont attirés par cet électron et il s'en suit une déformation de la maille cristalline et une zone légèrement plus positive que le reste. Un autre électron est donc attiré par cette zone positive et il en résulte une force d'attraction entre les deux électrons. La paire formée est alors une combinaison de deux électrons de momentum et spin opposés. Selon la théorie, les paires sont délocalisées, c'est-à-dire que les électrons d'une paire ne sont pas physiquement très



## 1.1. INTRODUCTION AUX CUPRATES

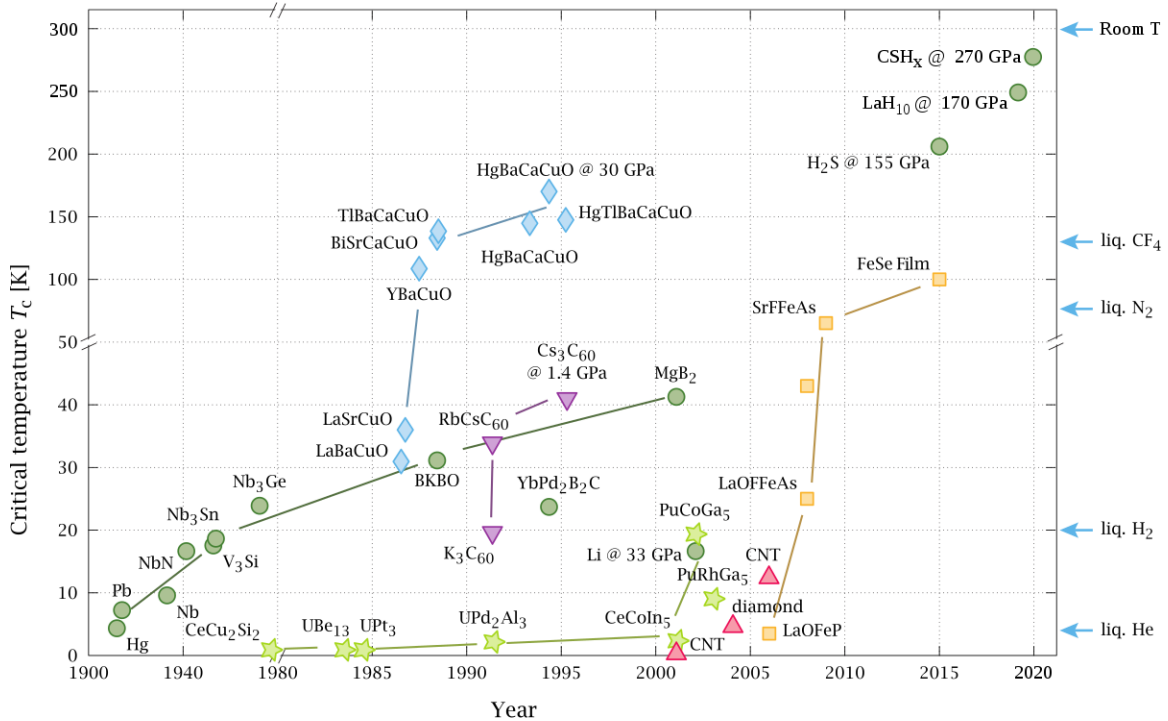
---

rapprochés et il s'agit plutôt d'une action collective entre beaucoup d'électrons qui se paient et se séparent continuellement. Le résultat de cette action collective est une réduction dans l'énergie du système par rapport à l'état normal, ce qui maintient l'état supraconducteur peu importe sa taille. L'état supraconducteur classique est atteint lorsque l'énergie de liaison médiée par les phonons virtuels est plus importante que la répulsion coulombienne entre les électrons. La force de Coulomb étant écrantée par les ions du cristal, cette répulsion est plus faible que pour deux électrons dans le vide. La médiation par les phonons explique l'effet isotopique, où la température critique d'un supraconducteur peut être réduite en utilisant des isotopes plus lourds des éléments qui le composent.

Une utilisation pratique de ces supraconducteurs demande un refroidissement sous la température critique. Un supraconducteur avec une  $T_c$  près de la température pièce qui demanderait très peu de refroidissement est donc un avantage digne d'intérêt. Suite à la découverte de Onnes, une course à la  $T_c$  la plus haute s'est enclenchée. Si la première vague de découverte concernait les éléments purs comme le mercure, le plomb ou l'aluminium, il n'en fut pas long avant de découvrir que des alliages peuvent aussi être supraconducteur comme le NbN ou Nb<sub>3</sub>Sn (tous deux utilisés comme fils supraconducteurs encore aujourd'hui). L'évolution du "progrès" vers la température pièce est montré à la figure 1.1 où la  $T_c$  de supraconducteurs importants est tracée en fonction de leur année de découverte. On peut y voir que les supraconducteurs conventionnels expliqués par la théorie BCS (cercles verts) ont une  $T_c$  basse à pression ambiante et que les cuprates (losanges bleus) ont le record de plus haute  $T_c$  à pression ambiante. Il faut ajouter que ce diagramme ne vise qu'à donner un aperçu de l'état de la recherche et ne cherche pas à prédire l'évolution future des températures critiques.

Le premier cuprate à avoir été identifié comme supraconducteur est un composé de lanthane, baryum, cuivre et oxygène (LaBaCuO) par J. G. Bednorz et K. A. Müller en 1986. Avec une température critique d'environ 30 K, il s'agissait de la plus haute température critique mesurée jusqu'alors[6]. Cette découverte hors du commun a été reconnue par un prix Nobel l'année suivante pour "la découverte de la supraconductivité dans un matériau céramique". En plus d'être des céramiques, les cuprates ont la propriété fascinante d'être des supraconducteurs non-conventionnels, c'est-à-dire que leur supraconductivité n'est pas expliquée par la théorie BCS. En fait, le mécanisme exact créant la supraconductivité dans ces matériaux n'est pas encore identifié à ce jour. En 1986, a également été découvert la supraconductivité dans un autre cuprate très similaire, le LaSrCuO, appartenant à la famille de cuprates qui sera le sujet principal de ce mémoire.

## 1.1. INTRODUCTION AUX CUPRATES



**FIGURE 1.1** Diagramme des températures critiques de certains supraconducteurs notables en fonction de l'année de leur découverte. Les cercles verts représentent les supraconducteurs conventionnels, les losanges bleus les cuprates, les étoiles vert pâle, les fermions lourds, les triangles inversés violets les fullerènes, les triangles rouges les organiques et les carrés jaunes les supraconducteurs à base de fer. Image modifiée provenant *Wikipédia* originalement tirée de [5]. Les supraconducteurs organiques sont absents de ce diagramme.

### 1.1.2 La famille du $\text{La}_2\text{CuO}_4$

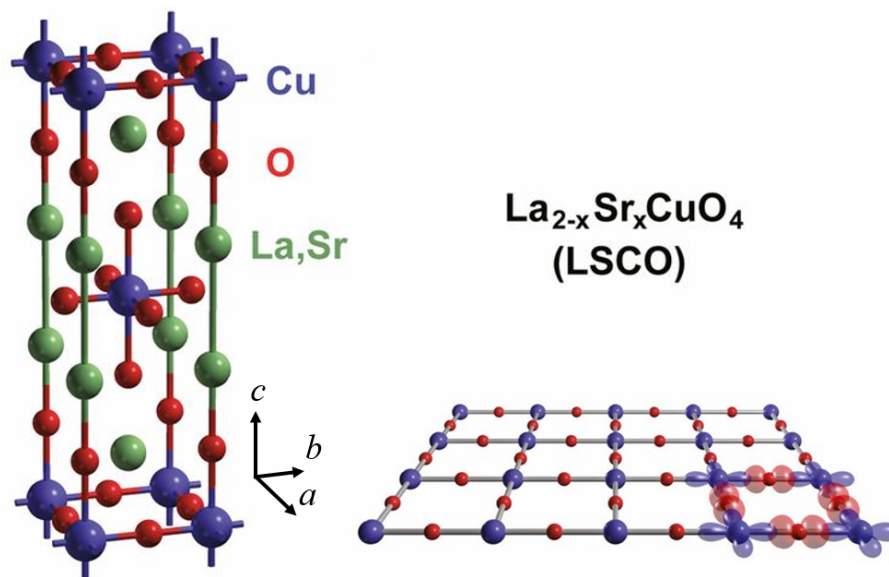
Avant la découverte des cuprates à haute  $T_c$ , il était d'avis que les isolants ne devraient pas être de bons candidats pour la supraconductivité. En 1957, Bernd T. Matthias publia ses observations empiriques sur ce qu'il considérait comme les conditions nécessaires pour obtenir un bon supraconducteur [7]. Son but était de diriger la recherche vers de nouveaux matériaux ayant les propriétés qu'il pensait importantes. Ses observations furent désignées comme "les règles de Matthias" et sont résumées par :

1. La symétrie c'est bien, un système cubique meilleur.
2. Une forte densité électronique est bien.
3. Éviter les isolants,
4. Éviter le magnétisme,
5. Éviter l'oxygène,

## 1.1. INTRODUCTION AUX CUPRATES

Étonnamment, ces règles pointent toutes à rejeter les cuprates. En effet, si l'on regarde la famille du LCO, il s'agit d'un système hautement bidimensionnel, donc non cubique, avec plusieurs transitions de phase structurale (voir la figure 3.12) brisant les symétries. Le LCO a une densité d'électrons libres très faible, en fait, ce composé parent est un isolant de Mott menant à une phase antiferromagnétique à basse température qui contient plus d'atomes d'oxygène que les autres atomes réunis.

Il n'est donc pas étonnant de savoir que si le  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  fut découvert en 1973 par J.M. Longo et P.M. Raccach[8], ce n'est que 13 ans plus tard en 1986 que fut découverte la supraconductivité dans le  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [9], juste quelques mois après la découverte de la supraconductivité dans le LaBaCuO. Le LSCO fut alors le supraconducteur avec la plus haute température critique, autour de 36 K, jusqu'à être rapidement détrôné par le YBCO quelques mois plus tard. Comme les autres cuprates, le LCO a une structure de type  $\text{K}_2\text{NiF}_4$  qui s'apparente aux pérovskites et est composé de plans cuivre-oxygène  $\text{CuO}_2$  entre lesquels il y a un réservoir de charges. Si les excitations électroniques sont surtout mobiles dans les plans  $\text{CuO}_2$ , c'est dans les réservoirs de charges que les dopants vont se loger et prendre ou retirer des électrons aux plans. La structure atomique de ce composé est présentée à la figure 1.2.



**FIGURE 1.2** Illustration de la structure pérovskite du  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Les plans de cuivre-oxygène dans les directions cristallines  $a$  et  $b$  entourent les réservoirs de charges où le dopage se produit. La direction perpendiculaire aux plans est l'axe cristallin  $c$ . Figure modifiée, tirée de [10].

Le  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  est un isolant de Mott, c'est-à-dire qu'il y a un électron par atome de cuivre dans les plans et à cause de la répulsion coulombienne, il est désavantageux énergétiquement

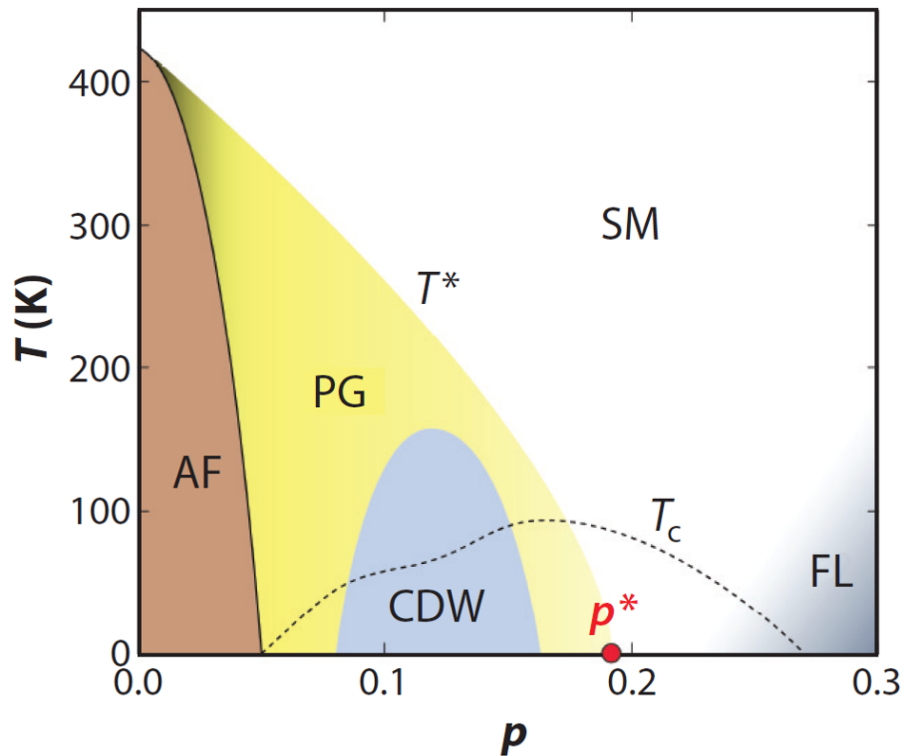
## 1.1. INTRODUCTION AUX CUPRATES

---

d'avoir un deuxième électron sur un même atome de cuivre. Il en résulte que les électrons ne peuvent se déplacer d'un site à l'autre, et sans ce mouvement, le cristal devient un isolant. Il est toutefois possible de rendre le composé conducteur en substituant une partie du lanthane par du strontium  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Le strontium ayant un électron de moins que le lanthane, il agit comme un attracteur d'électron des sites de cuivre, il s'agit d'un dopage en trous. Il est également possible de substituer une partie du lanthane par d'autres terres rares comme l'euprimum ou le néodyme, ce qui a entre autres pour effet de réduire la  $T_c$  sans affecter le dopage. Les deux composés étudiés ici seront le  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et le  $\text{La}_{1.8-x}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Une  $T_c$  plus faible signifie qu'un champ magnétique plus faible sera nécessaire pour atteindre l'état normal et donc que les mesures pourront être effectuées à plus basse température avec les champs magnétiques accessibles dans nos laboratoires. Si c'est la supraconductivité à haute température qui a initialement créé l'intérêt dans ces matériaux, on cherche à éliminer cette caractéristique pour éviter qu'elle interfère avec nos mesures.

Maintenant que nous avons deux paramètres que l'on peut changer, la température et le dopage, il devient possible d'étudier l'évolution des propriétés de ces matériaux suivant ces paramètres et d'identifier des changements de phases. Avec l'intérêt porté envers les cuprates, il fut découvert qu'ils présentent plusieurs phases aux propriétés très intéressantes. Finalement, il est possible de tracer un diagramme de phase général pour les cuprates dopés en trous, voir la figure 1.3.

De ce diagramme de phase, on observe que l'isolant de Mott au dopage nul ( $p = 0$ ), est dans une phase antiferromagnétique (AF) à basse température. Cette phase disparaît avec un faible dopage et est identifiée sur la figure par la zone brune. Dans notre famille d'échantillons, un dopage progressif en strontium a pour effet d'augmenter leur conductivité électrique, de sorte qu'à plus haut dopage ( $p \sim 0.30$ ), nous nous retrouvons avec un conducteur électrique, c'est-à-dire un liquide de Fermi (FL). Entre les deux extrêmes (isolant vs conducteur), nous avons un métal étrange (SM) qui a comme propriété d'avoir une résistance électrique qui diminue linéairement en fonction de la température. Malgré les propriétés intéressantes du métal étrange, cette phase ne sera pas abordée dans ce mémoire. Vers les basses températures se trouve la fameuse phase supraconductrice délimitée par le trait pointillé  $T_c$ . L'indentation dans le dôme supraconducteur à un dopage d'environ 1/8 est causée par la compétition avec une autre phase, l'ordre de densité de charge (CDW) en bleu pâle. Dans cette phase apparaît des modulations spatiales incommensurables de la charge. Cette phase ne sera pas non plus abordée en profondeur dans ce mémoire. Finalement, la phase la plus mystérieuse et à laquelle nous allons nous intéresser : la phase pseudogap (PG). Sur la figure elle est délimitée en température par  $T^*$  et en dopage par  $p^*$ . Dans le cas

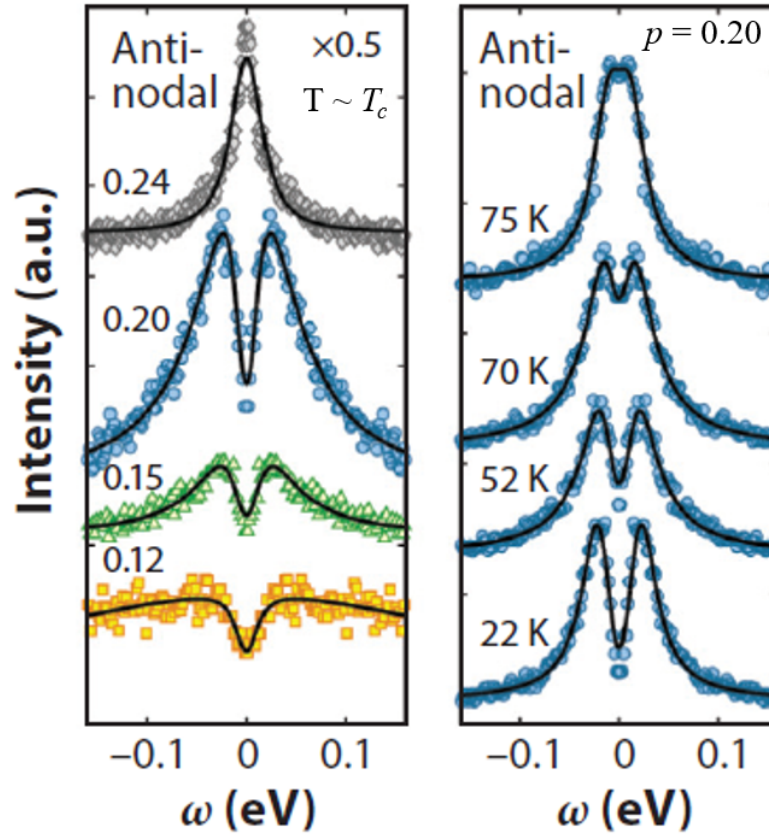


**FIGURE 1.3** Diagramme de phases général des cuprates dopés en trous, par exemple la famille du LSCO et celle du YBCO, en fonction du dopage  $p$  et de la température  $T$ . AF, phase antiferromagnétique, PG : phase pseudogap,  $T^*$  : limite du pseudogap en température, CDW : ordre de densité de charge, SM : métal étrange,  $T_c$  : température critique,  $p^*$  : limite de la phase pseudogap en dopage et FL : liquide de Fermi. Tirée de [11]

de Nd-LSCO et Eu-LSCO,  $p^* = 0.23$ .

La nature de la phase pseudogap est encore sujette à débat aujourd'hui, par contre il est possible d'observer ces effets à l'aide de mesures de spectroscopie photoémission résolue en angle (ARPES). Dans ces mesures, le pseudogap se présente comme une diminution de la densité d'états électronique de manière à former un creux qui n'est pas tout à fait une bande interdite (en anglais *gap*), d'où le nom de pseudogap. Cette observation expérimentale, montrée à la figure 1.4, se manifeste sous une température  $T^*$  et pour des dopages  $p < p^*$ .

Depuis 1986, beaucoup de recherches ont porté sur les cuprates et la phase pseudogap, autant du point de vue expérimental que théorique. Un de ces théoriciens et professeur ici à Sherbrooke, André-Marie Tremblay a proposé que cette phase a un lien avec des corrélations antiferromagnétiques de courte portée[13]. Ses recherches sont basées sur le modèle de Hubbard. Dans ce modèle, ils calculent que la phase métallique à fort dopage et la phase



**FIGURE 1.4** Mesures de la densité spectrale en fonction de l'énergie par ARPES (spectroscopie photo-électronique résolue en angle) où l'on peut observer la formation d'un pseudogap (creux dans les données) pour certains dopages ( $p < p^* = 0.23$ ) à gauche et à certaines températures ( $T < T^*$ ) à droite. Tirée de [12]

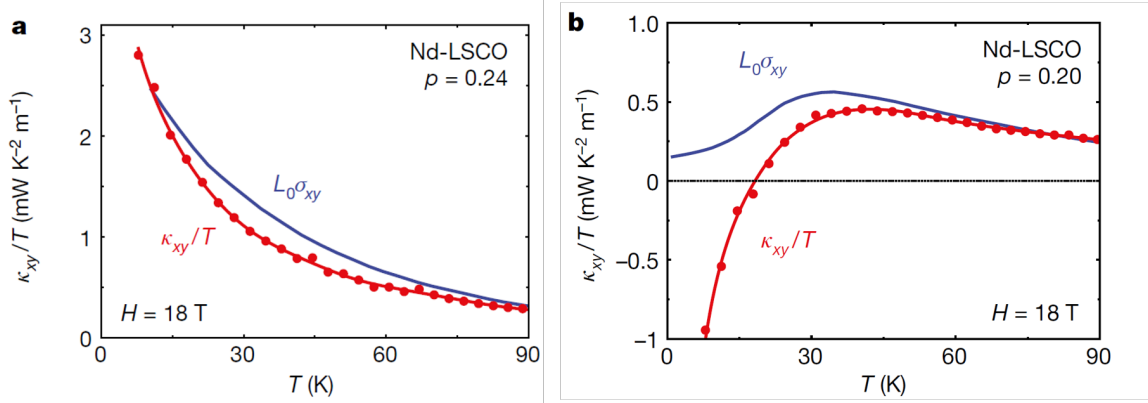
pseudogap sont séparées par une transition du premier ordre, signifiant qu'il s'agit bien de phases distinctes de la matière. La phase pseudogap serait dérivée de l'isolant de Mott.

## 1.2 Motivation du projet

Malgré plus de trente ans de recherches depuis la découverte de la supraconductivité dans les cuprates, il reste plusieurs mystères à leur sujet. Il est surprenant de savoir que certaines mesures n'avaient jamais été pleinement réalisées sur ceux-ci. L'une d'elles, l'effet Hall thermique (voir section 2.1.4), qui, avant 2017, n'avait été mesurée que pour le  $YBa_2Cu_3O_y$  dans la phase supraconductrice [14][15] ou bien dans la phase d'ordre de densité de charge [16]. En 2017, a alors commencé une étude exhaustive dirigée par Gaël Grissonnanche,

## 1.2. MOTIVATION DU PROJET

à ce moment un membre du groupe Taillefer [17]. Il a tout d'abord mesuré l'effet Hall thermique dans un échantillon de Nd-LSCO  $p = 0.24 > p^*$ , hors de la phase pseudogap, et a remarqué que le signal suivait la conductivité électrique de Hall en accordance avec la loi de Wiedemann-Franz (voir section 2.1.5). Selon cette loi, les deux conductivités doivent se rejoindre à basse température, voir figure 1.5 a). Cette mesure démontrait donc que l'effet Hall thermique en dehors de la phase pseudogap est porté par les électrons. Quand il a effectué la même mesure sur un échantillon de Nd-LSCO  $p = 0.20 < p^*$ , dans la phase pseudogap, le résultat était totalement différent et en contradiction avec la loi de Wiedemann-Franz à basse température, voir figure 1.5 b). Un signal négatif apparaissait dans l'effet Hall thermique  $\kappa_{xy}$  (ligne rouge) à l'intérieur de la phase pseudogap, contrairement au signal positif dans la conductivité électrique transverse  $\sigma_{xy}$  (ligne bleue).

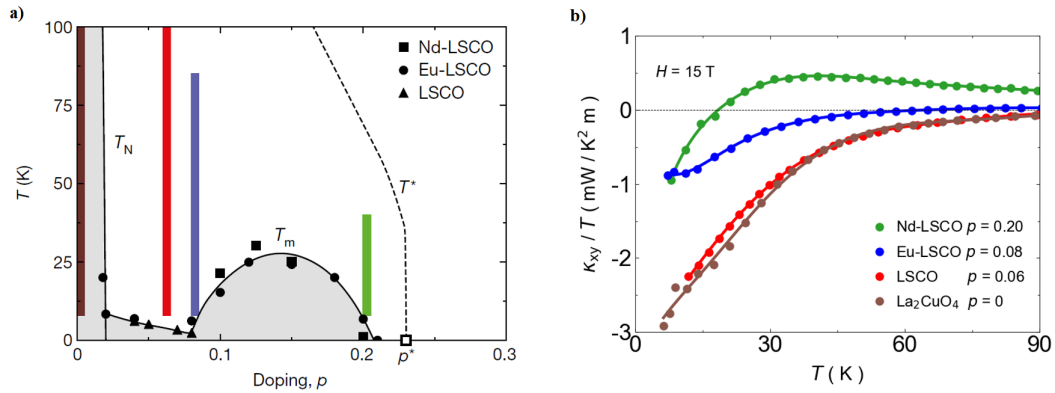


**FIGURE 1.5** Loi de Wiedemann-Franz,  $\kappa_{xy}/T$  (rouge) vs  $L_0\sigma_{xy}$  (bleus) dans le Nd-LSCO **a)**  $p = 0.24$  et **b)**  $p = 0.20$  en fonction de la température. Un signal négatif dans  $\kappa_{xy}/T$  apparaît dans la phase pseudogap ( $p < 0.23$ ). Tiré de [17]

Pour identifier si les porteurs de chaleur dans le signal observé étaient bel et bien des électrons, d'autres mesures d'effet Hall thermique ont été réalisées à des dopages de plus en plus faibles, dans des échantillons de moins en moins conducteurs, jusqu'à atteindre l'isolant de Mott dans le composé non dopé LCO. Ces résultats présentés à la figure 1.6 montrent que même dans l'isolant de Mott, le signal négatif dans l'effet Hall thermique est encore observé. **Il s'agit donc là d'une preuve que les électrons ne sont pas les porteurs de chaleur responsables de ce signal, puisqu'ils ne peuvent pas se déplacer librement dans un isolant.**

Suite à ces résultats, il restait à déterminer quels sont les porteurs de chaleur dans la phase pseudogap des cuprates pour l'effet Hall thermique. Sachant que les magnons et autres excitations électroniques sont beaucoup plus mobiles dans les plans  $\text{CuO}_2$  que hors plan, pour déterminer s'ils sont les porteurs de chaleur nous avons choisi de refaire une

### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE



**FIGURE 1.6** a) Diagramme de phases dans la famille du LCO en fonction du dopage dans les abscisses et de la température dans les ordonnées. Les zones de couleur correspondent au signal négatif dans l'effet Hall thermique observé dans la partie b). b) Évolution de l'effet Hall thermique  $\kappa_{xy}/T$  en fonction de la température pour plusieurs dopages. Tiré de [17]

mesure d'effet Hall thermique, mais cette fois-ci en dirigeant le flux de chaleur selon l'axe  $c$ . C'est dire qu'il s'agit de la même expérience, mais avec la chaleur appliquée suivant un axe cristallin différent. Les résultats de ces mesures sont présentés au chapitre 3 et en annexe A. Nos résultats démontrent que le signal est de même amplitude selon les deux axes et montrent que les phonons sont les porteurs de chaleur responsables de l'effet Hall thermique de la phase pseudogap. Les phonons étant neutres, ils acquièrent donc une chiralité (en présence d'un champ magnétique) uniquement dans la phase pseudogap des cuprates. Le mécanisme lié à cette propriété est donc propre à cette phase. Ces résultats ont motivé la poursuite des mesures à plus haut dopage dans le but de déterminer ou d'exclure certains mécanismes pouvant conférer cette chiralité aux phonons.

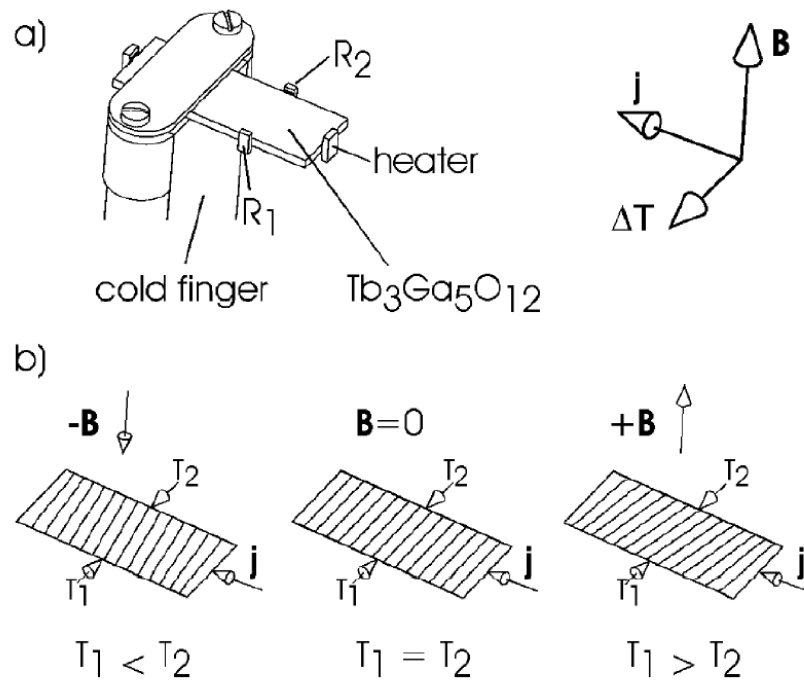
### 1.3 L'effet Hall thermique dans la littérature scientifique

L'idée que les phonons, quanta de son sans charge ni spin, peuvent être affectés par un champ magnétique et créer un gradient thermique dans un échantillon n'est pas une nouvelle proposition de notre groupe. En effet, en 2005 Strohm, Rikken et Wyder [18] ont effectué une expérience où ils ont mesuré l'effet magnéto-transverse dans le transport thermique des phonons. Leur mesure consiste à appliquer un gradient thermique à un échantillon, ainsi qu'un champ magnétique perpendiculaire à celui-ci, créant un autre gradient thermique qui est mesuré dans la direction perpendiculaire aux deux. Le montage de cette expérience, présenté à la figure 1.7 est très similaire à celui que l'on utilise pour l'effet Hall thermique,



### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

illustré à la figure 2.3. En fait, les deux mesures elles-mêmes sont similaires, la différence étant que nous mesurons également la conductivité thermique longitudinale en utilisant un autre thermomètre.

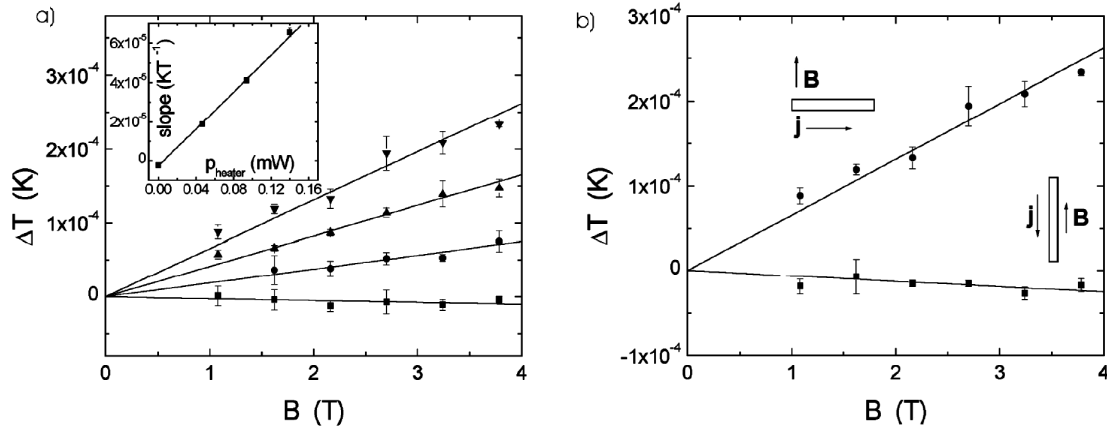


**FIGURE 1.7** a) Montage de mesure de l'effet magnétotransverse de la conduction de chaleur par les phonons. Un gradient thermique transverse ( $\Delta T$ ) est créé lorsqu'un champ magnétique ( $B$ ) est appliqué perpendiculairement à un courant de chaleur ( $j$ ). b) Illustration des isothermes selon le champ magnétique. Tirée de [18].

Dans leur expérience, ces trois chercheurs ont utilisé le grenat  $Tb_3Gd_5O_{12}$ , un diélectrique cubique contenant des ions de terbium ayant un grand moment magnétique. En se plaçant à une température de base de 5.45 K, ils ont alors mesuré le gradient thermique transverse pour différentes valeurs de puissance de chauffage (gradient thermique longitudinal  $\Delta T_x$ ) et ce, en fonction du champ magnétique. Les mesures de températures sont antisymétrisées (voir section 2.2) pour éviter les effets de magnétorésistance dans les thermomètres. Ils ont alors observé qu'il y avait effectivement un effet Hall thermique phononique, voir figure 1.8. Dans la même figure est présenté l'effet, ou plutôt son absence, lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement au gradient thermique provenant de l'élément chauffant. On y voit que le signal est dépendant du champ et aussi de  $\Delta T_x$  tel que prédit pour un effet Hall thermique. Dans cet article, leur conclusion est que le signal observé provient de la diffusion des phonons sur les ions magnétiques de terbium. Notre premier mécanisme pouvant expliquer la chiralité des phonons est donc la diffusion sur des ions magnétiques,

### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

spécifiquement les ions  $Tb^{3+}$  superstoéchiométrique [19].

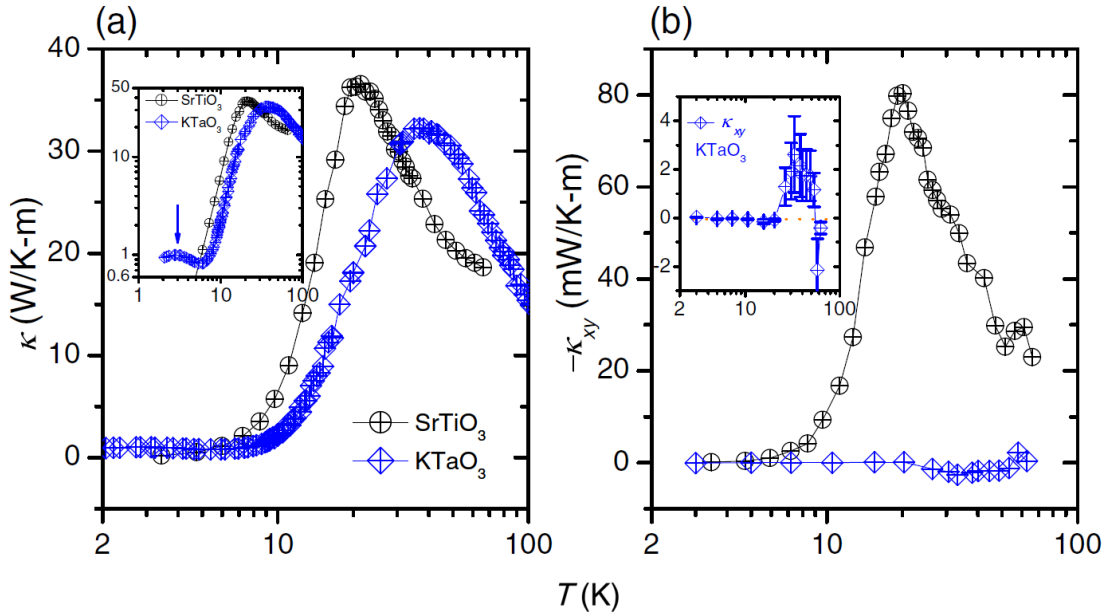


**FIGURE 1.8** a) Gradient thermique transverse en fonction du champ magnétique pour plusieurs puissances de chauffage démontrant un effet Hall thermique relié aux phonons. b) Gradient thermique transverse en fonction du champ magnétique, mais pour une direction de champ perpendiculaire et parallèle au gradient thermique provenant de l'élément chauffant. Tirée de [18].

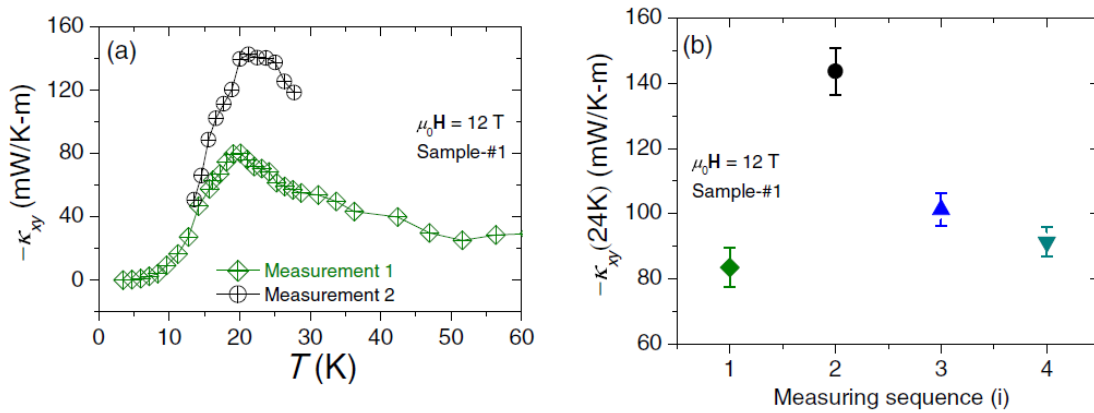
Un deuxième résultat important qui mérite d'être considéré est celui du groupe de K. Behnia et de leur mesure de l'effet Hall thermique dans le titanate de strontium  $SrTiO_3$  [20]. Dans une expérience encore une fois très similaire à la nôtre, ils ont mesuré la conductivité thermique longitudinale  $\kappa_{xx}$  et transverse  $\kappa_{xy}$  de deux composés isolants, le  $SrTiO_3$  et le tantalate de potassium  $KTaO_3$ . Il a été observé que même si les deux  $\kappa_{xx}$  sont du même ordre de grandeur et ont une allure très similaire, les deux  $\kappa_{xy}$  sont très différents. Le titanate de strontium ayant un très fort signal négatif (attribuables aux phonons), alors que le tantalate de potassium a un signal positif beaucoup plus petit, voir figure 1.9. Ils en concluent que la différence de signal est produite par la différence dans l'existence d'une transition antiferrodistortive dans le  $SrTiO_3$  engendrant des domaines structuraux. Pour ajouter du poids à la théorie des domaines structuraux, ils ont réchauffé et refroidi les échantillons au-dessus de la température de transition de phase pour créer des domaines différents entre chaque séquence. Ces résultats sont montrés à la figure 1.10, où on y voit qu'effectivement, pour chaque séquence, il y a une valeur de conductivité thermique transverse différente. La diffusion des phonons sur les frontières des domaines structuraux est donc notre deuxième mécanisme d'intérêt pour expliquer la chiralité des phonons.

Finalement, notre troisième candidat vient cette fois-ci d'une proposition théorique utilisant, entre autres, nos mesures comme référence. Il s'agit de la diffusion des phonons par des défauts d'oxygène dans la maille du cristal proposé par Flebus et MacDonald [21]. Selon eux, un défaut commun dans les oxydes diélectriques est un manque (lacune) d'un atome

### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE



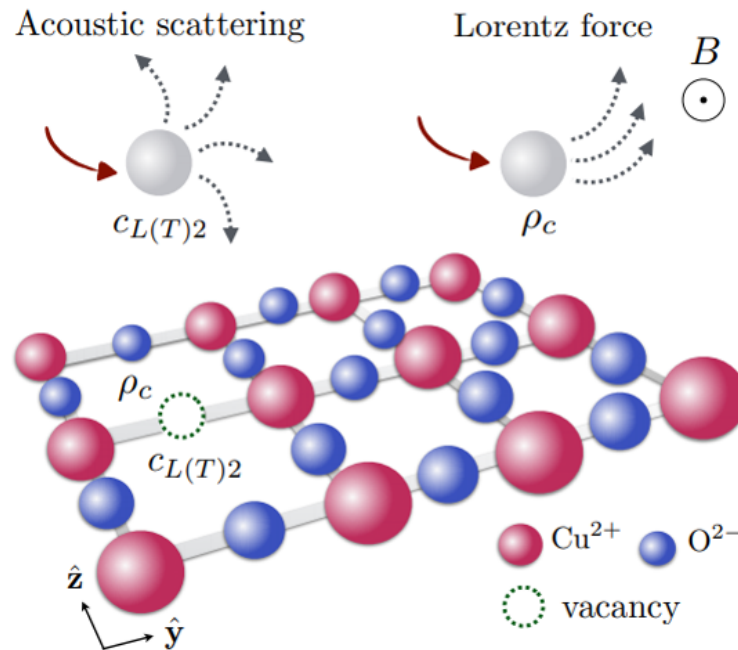
**FIGURE 1.9** a) Conductivité thermique longitudinale en fonction de la température et b) conductivité thermique transverse mesurée dans le  $\text{SrTiO}_3$  (noir) et le  $\text{KTaO}_3$  (bleu) en fonction de la température par le groupe de K. Behnia [20]. La différence de signal dans l'effet Hall thermique pourrait s'expliquer par la présence de domaines structuraux selon eux.



**FIGURE 1.10** a) Effet Hall thermique pour deux séquences de mesures pour un même échantillon de  $\text{SrTiO}_3$  en fonction de la température et b) amplitude du signal dans l'effet Hall thermique pour une même température et le même échantillon de  $\text{SrTiO}_3$ , mais pour différentes séquences de mesures après avoir réchauffé au-dessus de la température de transition de phase. La différence de signal s'explique par des domaines différents entre les différents cycles thermiques. Tiré de [20].

### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

d'oxygène dans la structure cristalline. Puisque l'oxygène agit comme dopant et possède une charge, l'absence d'un atome produit une région légèrement positive. Un phonon traversant cette région peut alors subir une force de Lorentz et être dévié préférentiellement par la direction du champ magnétique et engendrer un effet Hall thermique phononique. Ce concept est présenté à la figure 1.11. Selon leurs estimations, cet effet serait d'une amplitude qui concorde avec nos résultats pour une même plage de température.



**FIGURE 1.11** Illustration de la diffusion d'un phonon sur un défaut d'oxygène, c'est-à-dire un manque d'un atome d'oxygène dans la maille cristalline, ici les plans  $\text{CuO}_2$ . Tiré de [21].

En fait, il n'y a pas que Flebus et MacDonald qui ont réagi à nos mesures, plusieurs groupes de théoriciennes et théoriciens se sont penchés sur le cas des phonons chiraux depuis la publication de l'article ayant motivé ce mémoire [17], ainsi que l'article rapportant les mesures de ce mémoire [1]. De ceux-ci, nous avons entre autres les groupes de S. Sachdev[22][23][24] et L. Balents[25] qui ont proposé que la chiralité des phonons soit en lien avec la viscosité de Hall. Cette propriété engendrerait une courbure de Berry chez les phonons qui serait elle-même responsable de leur couplage avec le champ magnétique selon Yang, Zhang et Zhang[26]. Une propriété expérimentalement observable d'une chiralité obtenue d'une courbure de Berry serait une décroissance exponentielle de l'effet Hall thermique lors de l'augmentation de la température. En utilisant un fit sur nos mesures, il est possible d'obtenir cette dépendance en température, voir la figure 1.12. Si le fit semble bien

### 1.3. L'EFFET HALL THERMIQUE DANS LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

coller aux résultats, il ne garantit pas que l'explication de la courbure de Berry en soit la cause. En effet, plusieurs phénomènes pourraient produire une décroissance exponentielle de l'effet Hall thermique. Dans ce même article, il est également question de pouvoir déterminer la nature des excitations seulement dans un régime où la température tend vers zéro, soit à des températures plus basses que la mesure présentée ici. Ces idées étant encore nouvelles, il reste à démontrer expérimentalement leur validité.

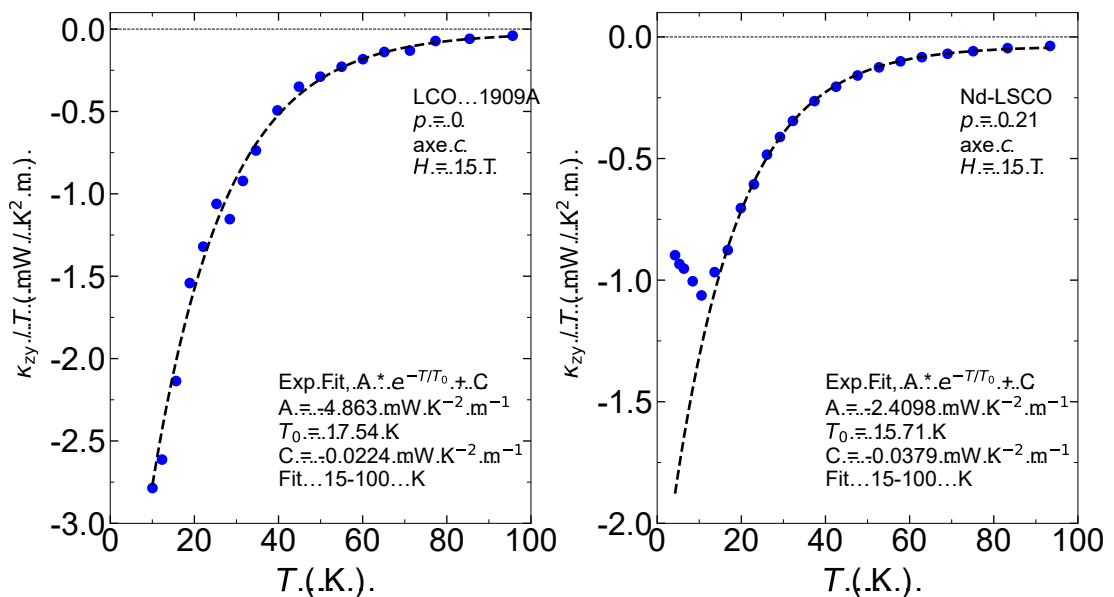


FIGURE 1.12 Fit exponentiel de l'effet Hall thermique du LCO et Nd-LSCO  $p = 0.21$  en fonction de la température. Tiré de [1].

Dans un autre article récent [27], Sun, Chen et Kivelson se penchent sur le sujet de l'effet Hall causé par les phonons chiraux et proposent une diffusion asymétrique résonante sur des impuretés comme explication. Selon cet article, ce serait l'effet conjoint de deux défauts qui produiraient le signal observé. Une autre publication, cette fois-ci par Varma [28], qui supporte notre hypothèse de phonons chiraux, mais apporte ici l'idée d'un signal causé par une distorsion de la maille cristalline induit par un champ magnétique.

Nous avons vu ici plusieurs propositions et de ceux-ci, trois seront revues plus en détail, les impuretés magnétiques, les domaines structuraux et le manque d'oxygène dans le chapitre 3 (discussion). Il sera alors question de confronter ces hypothèses avec nos mesures et vérifier leur vraisemblance pour expliquer ce que l'on observe. En raison de la nature nouvelle du sujet traité dans ce mémoire, il n'y a que peu d'ouvrages théoriques à son propos.

## Chapitre 2

# Méthodes expérimentales en transport

L'essentiel de ce qui a été réalisé dans ce projet de maîtrise concerne les mesures de transport électrique et particulièrement les mesures de transport thermique. Ce chapitre a pour but d'expliquer les aspects théoriques et expérimentaux des mesures servant à déterminer la conductivité électrique et thermique des matériaux. Les concepts mathématiques seront tout d'abord présentés et seront suivis du parcours d'un échantillon, de sa conception à sa mesure en laboratoire.

## 2.1 Aspects théoriques

---

Nous allons commencer en présentant les concepts classiques de transport de charge et de chaleur pour se diriger tranquillement vers la compréhension actuelle du mouvement des électrons dans la matière.

### 2.1.1 Conductivité électrique longitudinale $\sigma$

La première mesure de transport abordée est la conductivité électrique, soit comment un matériau est apte à conduire un courant électrique. Nous avons tous une idée au moins naïve qu'un métal conduit mieux l'électricité que le plastique, mais du point de vue scientifique, pourquoi est-ce le cas et comment peut-on exprimer mathématiquement ces différences à l'aide de chiffres et équations ?

Nous savons que ce que l'on appelle "électricité" peut être décrit par le déplacement de charges électriques élémentaires qui peuvent être positives, comme le proton, ou négatives,

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

comme l'électron. Les protons sont très lourds comparés aux électrons et il est moins facile de les pousser à se déplacer. Dans la matière ordinaire, les protons sont forcés à rester dans les atomes qui sont placés à intervalles réguliers et maintenu en place par des liaisons cristallines. N'étant pas mobiles, les protons ne peuvent donc pas participer au transport électrique. L'électron lui est léger et peut rapidement être mis en mouvement entre les atomes immobiles. C'est donc ce déplacement des électrons qui nous intéresse et est responsable du transport de charge.

La tendance des électrons à se déplacer est évidemment différente d'une substance à l'autre. Une des différences entre les métaux et les plastiques est la capacité des électrons dans le matériau à se déplacer librement et aisément. Dans un matériau qui ne conduit pas bien l'électricité, un isolant, les électrons sont liés fortement aux atomes et il faut une force colossale pour les forcer à s'échapper de l'attraction des noyaux atomiques. Dans les métaux, les électrons sont libres de se déplacer librement et il faut un rien pour les forcer à se diriger dans une direction. Les métaux ont une conductivité électrique élevée et les isolants ont une conductivité très faible, voire nulle. De cette idée d'électrons libres dans les métaux et d'ions fixes est née la théorie classique de la conduction par Drude[29].

La conductivité électrique se dénote par  $\sigma$  comme :

$$\vec{j} = \sigma \vec{E}, \quad \text{où} \quad \sigma = \frac{n_e e^2 \tau}{m_e}. \quad (2.1)$$

De cette formule simple, il est possible de voir qu'en appliquant un champ électrique  $\vec{E}$ , les électrons sont forcés à se déplacer pour générer un courant électrique  $\vec{j}$  dans un matériau. L'aisance de ce mouvement est donnée par la conductivité  $\sigma$  dont les unités sont le Siemen par mètre (S/m ou  $\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ ), décrit par :  $n$  la densité d'électrons dans le matériau,  $e$  la charge électrique fondamentale,  $\tau$  le temps de relaxation entre deux collisions et  $m_e$  la masse de l'électron.

Lorsque les électrons se déplacent dans un tel matériau, ils peuvent entrer en collision avec les autres électrons ou avec les atomes du matériau lui-même et perdre une partie de leur énergie cinétique qui se transforme en chaleur par l'effet Joule et réduit l'efficacité du courant.

Si cette approche convient pour les métaux simples comme le cuivre et nous permet d'avoir une intuition physique, elle est loin de pouvoir expliquer tous les métaux et encore moins le reste des matériaux plus complexes.

Ce que nous avons omis, entre autres, c'est que les électrons ne sont pas libres et seuls

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

dans la matière. Il y a une très forte interaction entre les électrons, ainsi qu'entre les électrons et les noyaux atomiques. Dans un atome isolé, il est conventionnel d'imaginer les électrons sur des orbitales bien définies, mais lorsque l'on approche un autre atome, ces niveaux atomiques s'influencent mutuellement. L'énergie qui était associée à un niveau fixe est alors séparée en deux niveaux d'énergie différents qui dépendent de la distance entre les atomes. Ces deux états sont dû au recouvrement des fonctions d'onde atomique des deux atomes qui peuvent soit se superposer positivement pour former un état liant ou négativement pour former un état anti-liant. Les états liants sont composés de fonctions d'onde atomiques qui ont la même polarité et l'état résultant a une énergie plus faible. Si l'on vient ajouter un autre atome, ces niveaux se séparent encore avec chacun une énergie différente. Le processus se répète à l'ajout de chaque nouvel atome jusqu'à avoir un cristal comptant  $\sim 10^{23}$  atomes par centimètre cube (une mole) et  $\sim 10^{23}$  niveaux d'énergie pour notre orbitale électronique initiale. Cette abondance de niveaux d'énergie crée un continuum d'"emplacements" qui peuvent être occupés par les électrons dans le cristal, il s'agit de la théorie des bandes[29].

Ces bandes sont le résultat des atomes qui composent le matériau, un atome de plomb possède des électrons sur des orbitales différentes de celles du carbone par exemple, mais dépendent également de leur disposition dans le cristal. En effet, puisque les orbitales électroniques ont des directions privilégiées, les orbitales de différents atomes vont interagir différemment entre elles selon leurs positions relatives. Un cristal à maille cubique, c'est-à-dire où l'arrangement périodique des atomes peut être représenté par la répétition d'un cube jusqu'à former tout le cristal, aura donc une structure de bande différente d'un cristal à maille hexagonale, et ce, même s'ils sont composés des mêmes atomes. Le diamant isolant, transparent et extrêmement dur est ainsi très différent du graphite qui est conducteur, noir et assez fragile pour servir de mine de crayon. Ces deux cristaux sont pourtant tous deux faits uniquement d'atomes de carbone et n'ont pour différence que leur arrangement périodique.

La disposition de ces bandes décrit le comportement des électrons dans le cristal. Ce qui détermine si un emplacement est occupé dans une bande est l'énergie associée à cet emplacement, le nombre d'électrons dans le cristal et la température. Les électrons cherchent à être dans l'état de moindre énergie, ils vont donc remplir les bandes les plus basses en premier. À température nulle, les électrons ont l'énergie minimale possible et vont occuper tous les états les plus bas jusqu'à une énergie maximale nommée l'énergie de Fermi  $E_F$ . Si la température augmente, les électrons dans les bandes de plus haute énergie peuvent recevoir un peu plus d'énergie et grimper vers des états  $E > E_F$  inoccupés. Les électrons qui sont dans des bandes pleines sont "piégés" autour des atomes et ne peuvent participer à la conduction électrique. En contrepartie, des électrons qui ont accès à des bandes inoccupées à  $E > E_F$  peuvent se déplacer dans le cristal et transporter leur charge dans le cristal, il s'agit



## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

d'électrons de conduction.

La forme des bandes décrit ensuite comment se déplacent ces électrons de conduction. Dans le cas d'une bande qui courbe vers le haut (parabole positive comme la fonction  $x^2$ ), les électrons se comportent plus ou moins comme des électrons libres dans le vide, tout dépendant de l'amplitude de la courbure. L'amplitude de la courbure détermine la masse effective ou, d'une certaine manière, la vitesse des électrons, plus la courbure est "plate" plus les électrons sont massifs et se déplacent lentement. Un peu plus étrangement, une bande courbant vers le bas (parabole négative comme la fonction  $-x^2$ ) aura des électrons qui se comportent comme s'ils avaient des charges positives. On dit bien comme s'ils, parce que leur charge ne change pas, c'est seulement leur direction de mouvement qui est inverse à celle d'un électron "normal". Il est donc plus convenant de traiter ces électrons comme des "trous" de charge positive. Les électrons (les trous) étant les seules particules (quasiparticules) chargées se déplaçant, ils sont décrits comme des "porteurs de charge". Un exemple de bande courbant vers le bas est la bande traversant l'énergie de Fermi dans la figure 2.1. Cette figure représente la structure de bande calculée numériquement pour le LCO. De cette figure on peut voir une seule bande traversant la surface de Fermi et on pourrait en conclure qu'il s'agit d'un métal, or il s'agit d'une simulation et en vérité le LCO est un isolant de Mott. Cette disparité vient du fait que la simulation ne tient pas en compte les interactions entre les électrons de nature coulombienne. Le LCO peut toutefois devenir un métal une fois dopé en strontium par exemple (LSCO,  $p > 0.2$ ). Ces interactions entre les électrons ont pour effet de changer la vitesse des électrons dans le matériau, ce qui peut être tenu en compte en changeant la masse de l'électron pour une masse effective ( $m_e \rightarrow m^*$ ) dans la formule 2.1 pour obtenir :

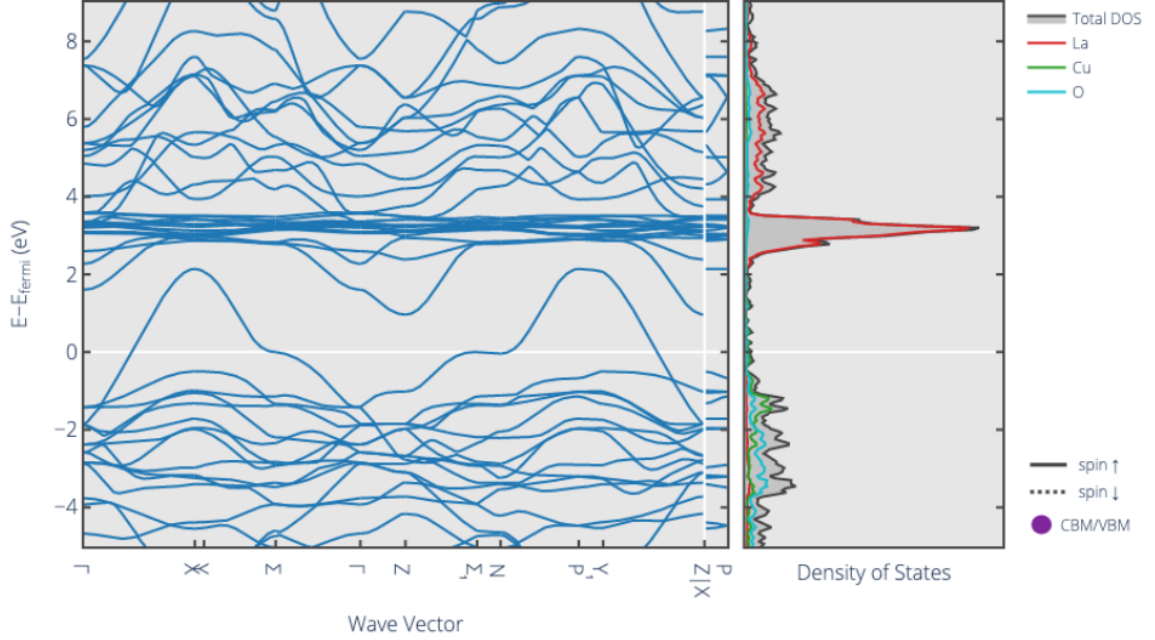
$$\sigma = \frac{n_e e^2 \tau}{m^*}.$$

En connaissant la composition et la position des atomes dans un cristal, il est possible de calculer numériquement la structure de bande d'un cristal, suivant différentes approximations. Nous avons donc une approche théorique pour déterminer la nature de la conduction électrique. Il reste alors à déterminer les équations plus poussées qui décrivent cette conduction et comment elle est influencée par des champs magnétiques. Si l'on réécrit notre courant électrique avec la théorie des bandes, nous avons :

$$\overleftrightarrow{J} = \overleftrightarrow{\sigma} \overleftrightarrow{E}, \quad (2.2)$$

où nos termes précédents sont maintenant des tenseurs de rang 2 et où la conductivité  $\overleftrightarrow{\sigma}$  est une somme des contributions des électrons de chacune des bandes  $n$  qui ne seront pas explicitées ici. En termes matriciels, nous pouvons écrire la conductivité et son inverse, la

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES



**FIGURE 2.1** Exemple de structure de bande calculée pour le LCO dans la partie gauche de la figure. L'axe horizontal décrit le vecteur d'onde dans le cristal, soit une direction et l'axe vertical représente l'énergie. On y voit une seule bande qui traverse la ligne horizontale à 0 eV (énergie de Fermi). La partie droite représente la densité d'états, ou combien il est possible de placer d'électrons à une certaine énergie [30]. Cette figure ne tient pas compte des interactions entre les électrons.

résistivité  $\rho$ , comme :

$$\begin{bmatrix} J_x \\ J_y \\ J_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix}, \quad \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} & \rho_{xz} \\ \rho_{yx} & \rho_{yy} & \rho_{yz} \\ \rho_{zx} & \rho_{zy} & \rho_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} J_x \\ J_y \\ J_z \end{bmatrix}. \quad (2.3)$$

Si l'on définit la direction du courant comme seulement  $J_x$  et donc  $J_y = J_z = 0$ , nous obtenons un courant décrit par :

$$J_x = \sigma_{xx}E_x + \sigma_{xy}E_y + \sigma_{xz}E_z. \quad (2.4)$$

Dans le cas où le champ électrique est purement dans la direction  $x$ , c'est-à-dire qu'il n'y

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

aurait pas de champ magnétique pour dévier le courant, alors nous avons que :

$$J_x = \sigma_{xx} E_x, \quad \sigma_{xx} = \frac{1}{\rho_{xx}}. \quad (2.5)$$

Dans cette situation particulière de direction de courant, nous avons maintenant une voie pratique pour enfin mesurer la conductivité d'un échantillon réel. En effet, il est souvent plus simple d'utiliser l'inverse de la conductivité, la résistivité, puisque la résistivité peut être facilement obtenue à partir de la résistance d'un matériau selon la loi d'Ohm :

$$\Delta V_x = R_x I_x, \quad (2.6)$$

où  $\Delta V_x$  est la différence de potentiel (*voltage*) dans un échantillon où traverse un courant  $I_x$  (*ampérage*) et résiste au passage du courant suivant une résistance  $R_x$ . On obtient ensuite la résistivité à partir de la résistance et en se libérant des dimensions de l'échantillon, c'est-à-dire la longueur  $l$ , l'épaisseur  $t$  et la largeur  $w$  entre les contacts, réunis dans le facteur géométrique  $\alpha$  :

$$\rho_{xx} = R_x \frac{wt}{l} = R_x \alpha. \quad (2.7)$$

La résistivité et la conductivité électrique longitudinale sont donc des propriétés qui ne dépendent plus des dimensions de l'échantillon. Le schéma d'un tel montage expérimental est présenté à la figure 2.2.

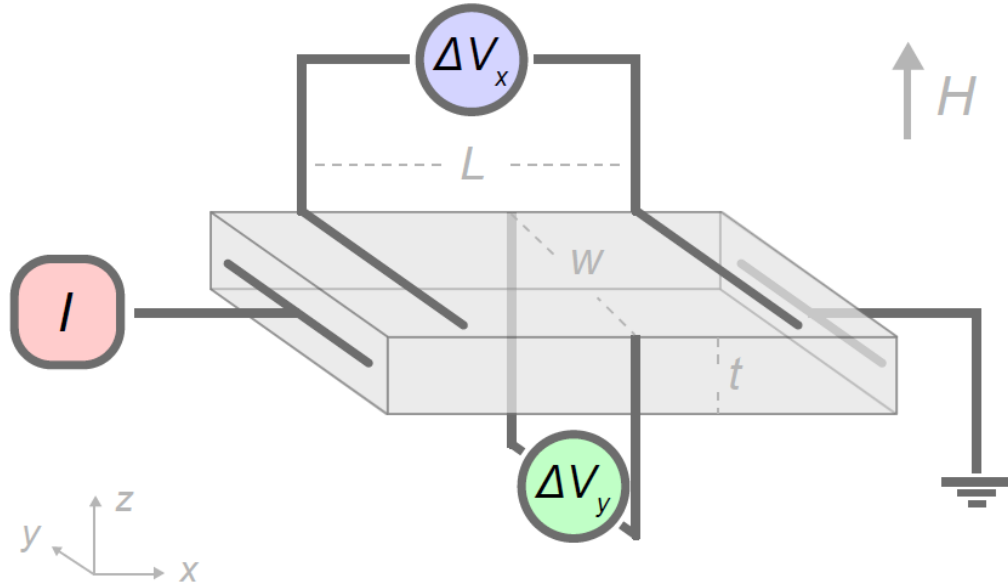
Expérimentalement, nous connaissons  $\alpha$ , choisissons  $I_x$  et mesurons  $\Delta V_x$  pour obtenir la résistivité longitudinale :

$$\rho_{xx} = \frac{\Delta V_x}{I_x} \alpha. \quad (2.8)$$

Dans ces calculs, les directions  $x, y$  et  $z$  étaient arbitraires, mais dans le cas d'une mesure sur un échantillon réel, la chercheuse ou le chercheur décide de la direction de l'application du courant et peut donc aligner celui-ci avec un axe cristallin. La résistivité selon ces axes va donc par convention se nommer  $\rho_a, \rho_b$  et  $\rho_c$ . Dans le cas de matériaux cubiques, ces trois composantes de la résistivité devraient être les mêmes, mais pour des matériaux qui ne sont pas isotropes elle peut être très différente. Par exemple, la différence entre la résistivité du LSCO  $\rho = 0.21$  d'un échantillon mesuré selon l'axe  $a$  et celle d'un autre échantillon selon l'axe  $c$  est d'un facteur  $\sim 1000$  lorsque la température tend vers zéro (voir annexe A, figure A.19).

Puisque ce mémoire a trait à des mesures selon les deux axes, ces résistivités seront dénotées  $\rho_{xx}$  pour l'axe  $a$  et  $\rho_{zz}$  pour l'axe  $c$ .

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES



**FIGURE 2.2** Visualisation schématisée d'une mesure de résistivité  $\rho_{xx}$  obtenue à partir de la différence de potentiel entre deux contacts  $\Delta V_x$ , suivant un courant appliqué  $I$ . L'effet Hall  $R_H$  s'obtient en se servant du potentiel  $\Delta V_y$  entre deux contacts transverses créé lors de l'application d'un champ magnétique. Tiré de [31]

### 2.1.2 Conductivité électrique transverse $\sigma_{xy}$

Dans notre mesure de conductivité longitudinale, nous avons posé un champ magnétique nul, mais lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculairement à la direction d'un courant électrique, selon la théorie classique, les électrons subissent une force de Lorentz. Il en résulte une déviation des électrons d'un côté préférentiel de l'échantillon, ce qui produit un potentiel électrique pour contrebalancer cette force et maintenir un état d'équilibre. En se référant à la figure 2.2, le courant est dans la direction "x", le champ magnétique dans la direction "z" et le potentiel électrique est dans la direction "y". Dans la situation précédemment décrite, la différence de potentiel est mesurable, il s'agit de l'effet Hall. Tout comme la conductivité électrique longitudinale, il est possible de caractériser la conductivité électrique transverse et il est plus facile de le faire en mesurant la résistance dans un échantillon. De la même manière, nous différencions dans ce mémoire la résistivité transverse dans l'axe  $a$ ,  $\rho_{xy}$ , à celle dans l'axe  $c$ ,  $\rho_{zy}$ . Dans le cas d'une mesure  $\rho_{zy}$ , le courant est envoyé selon "z", le champ magnétique selon "x" et le potentiel mesuré en "y".

Avec l'application d'un champ magnétique, la contribution de  $E_y$  à la conductivité

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

électrique n'est plus nulle et ce que l'on avait précédemment devient :

$$\sigma_{xx} = \frac{\rho_{xx}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2}. \quad (2.9)$$

De même, la conductivité transverse s'écrit :

$$\sigma_{xy} = -\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2}. \quad (2.10)$$

La résistivité transverse  $\rho_{xy}$  est mesurée d'une manière similaire à la résistivité longitudinale. À la figure 2.2, où l'on connaît l'épaisseur de l'échantillon  $t$ , on choisit le courant  $I$  et mesure la différence de potentiel transverse  $\Delta V_y$  pour obtenir la résistivité transverse :

$$\rho_{xy} = \frac{\Delta V_y}{I} t. \quad (2.11)$$

Puisque le signe de la charge détermine la direction dans laquelle est dévié un courant, le signe de l'effet Hall nous renseigne sur la nature des porteurs de charge (électrons ou trous). Dans le cas de matériaux à plusieurs bandes, le signe de l'effet Hall sera donné par la somme de la contribution des différents porteurs à la conductivité. Autrement dit, si une bande a plus de porteurs, elle affectera plus le signe de l'effet Hall et cet effet peut varier avec la température.

Dans une approche classique d'un échantillon qui n'a qu'une seule bande de porteurs de charge, si l'on divise la résistivité transverse par le champ magnétique  $H$ , on obtient le coefficient de Hall  $R_H$  qui est relié à la densité de porteurs  $n$  selon :

$$R_H = \frac{\rho_{xy}}{H} = \frac{1}{ne}. \quad (2.12)$$

Le coefficient de Hall a pour unité des mètres cubes par coulomb, ce qui peut représenter le volume occupé par porteur de charge. Dans l'annexe A, les mesures du coefficient de Hall sont plutôt exprimées en  $mm^3/C$ .

### 2.1.3 Conductivité thermique longitudinale $\kappa$

Avec le transport électrique en tête, nous allons pouvoir nous servir de ce que nous avons appris pour faire le parallèle avec le sujet principal de ce mémoire, le transport thermique. De la même manière que la conductivité électrique, la conductivité thermique décrit comment un matériau est apte à transporter un courant, mais cette fois-ci un courant de chaleur d'un

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

point "chaud" vers un point "froid". La conductivité thermique est dénotée  $\kappa$ , plus le  $\kappa$  d'une substance est élevé et plus la chaleur se transmet aisément dans cette substance.

La conductivité thermique dépend également de la disposition des atomes dans la structure cristalline, il faut donc faire la distinction entre les conductivités thermiques selon les axes  $a, b$  et  $c$ . Cette propriété doit donc être décrite mathématiquement par un tenseur pour tenir compte des différentes directions que peuvent prendre le flux de chaleur. L'équation de Fourier 2.13, dont la ressemblance avec la conductivité électrique est frappante, relie la densité de flux thermique  $\vec{J}_Q$  avec l'inverse du gradient thermique  $-\vec{\nabla}T$  par le tenseur de conductivité thermique  $\vec{\kappa}$  :

$$\vec{J}_Q = -\overleftarrow{\kappa} \vec{\nabla}T. \quad (2.13)$$

En suivant les mêmes étapes que pour la conductivité électrique, c'est-à-dire en se limitant à un champ nul, une direction précise et en éliminant les facteurs géométriques, nous retrouvons une équation décrivant la propagation d'un flux de chaleur  $\dot{Q}_x$  :

$$\dot{Q}_x = \kappa_{xx} \Delta T_x \frac{wt}{l}, \quad (2.14)$$

où ce flux se déplace avec une aisance déterminée par la conductivité thermique longitudinale  $\kappa_{xx}$  (selon l'axe  $a$ ), en produisant un gradient thermique  $\Delta T_x$ . Habituellement, ce que l'on cherche c'est  $\kappa_{xx}$ , donc nous aurons plutôt :

$$\kappa_{xx} = \frac{\dot{Q}_x}{\alpha \Delta T_x}, \quad \dot{Q}_x = RI^2 \quad (2.15)$$

où  $\alpha = \frac{wt}{l}$  est le même facteur géométrique que dans les mesures de transport électrique. Le courant de chaleur  $\dot{Q}_x$  injecté depuis l'élément chauffant est déterminé avec sa puissance  $P$ , qui est simplement obtenue d'une résistance  $R$  dans laquelle on applique un courant  $I$  et produit de la chaleur selon  $P = RI^2$ . On suppose que toute la chaleur produite dans l'élément chauffant circule dans l'échantillon. La conductivité thermique se mesure en ( $WK^{-1}m^{-1}$ ).

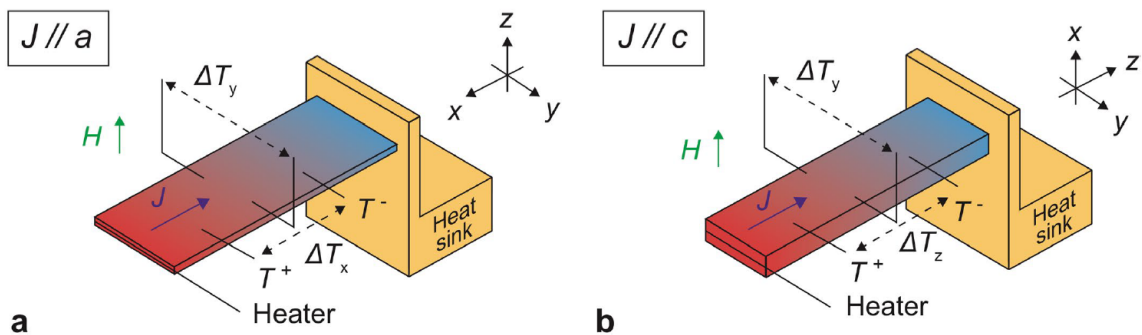
Il est important de noter que toutes les variables de l'équation 2.15 sont des quantités expérimentalement mesurables ou connues.

Il suffit donc d'injecter une quantité connue de chaleur dans l'échantillon et d'observer la grandeur du gradient thermique créé pour avoir une mesure de  $\kappa_{xx}$ . On voit de cette équation que pour une même taille et un même courant de chaleur, plus une substance a un

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

$\kappa_{xx}$  élevé et moins le gradient de température sera grand, autrement dit que la température sera plus uniforme dans celui-ci. La chaleur se transportera donc mieux du côté chaud vers le côté froid. Pour tracer un parallèle avec la conductivité électrique, on peut dire que l'échantillon résistera moins au passage du courant de chaleur, il sera un meilleur conducteur de chaleur.

Si l'on applique le courant de chaleur selon un autre axe, on peut également identifier  $\kappa_{yy}$  et  $\kappa_{zz}$  avec respectivement la conductivité thermique selon l'axe  $b$  et l'axe  $c$ . Nous avons donc du point de vue théorique une approche réalisable en laboratoire pour déterminer la conductivité thermique d'un échantillon suivant ses trois axes. La figure 2.3 représente le montage des échantillons où l'on obtient le  $\Delta T_x = T^+ - T^-$  avec la température du côté plus chaud  $T^+$  et du côté plus froid  $T^-$ .



**FIGURE 2.3** Schéma de montage idéalisé pour la mesure de la conductivité thermique, tiré de [1]. Le courant de chaleur  $J$  est appliqué selon a) l'axe  $a$  ou b) l'axe  $c$  d'un échantillon, ce qui crée un gradient thermique longitudinal  $\Delta T_x$  et  $\Delta T_z$  le long de cet axe. En ajoutant un champ magnétique  $H$  appliqué perpendiculairement au courant, un gradient transverse  $\Delta T_y$  est créé.

Nous avons obtenu une équation pour la conductivité thermique, mais nous n'avons toujours pas discuté de ce qui est transporté et quels sont les porteurs dans le cas de la chaleur. Quand nous parlons de chaleur ou d'énergie thermique, nous faisons référence au mouvement aléatoire des particules autour de leur position fixe dans le cristal, les excitations thermiques. Les atomes vibrent et oscillent et plus ils le font, plus on dit qu'ils sont "excités", plus ils ont d'énergie thermique et plus ils ont d'entropie. Parmi les porteurs d'entropie qui transportent la chaleur, on compte bien entendu les électrons (et les trous) qui sont très mobiles dans les métaux et échangent de l'énergie lors des collisions. Si ces collisions sont peu fréquentes, c'est-à-dire que le libre parcours moyen ( $\ell$ ) est grand, alors la conductivité thermique sera plus élevée.

Bien entendu, les isolants aussi sont capables de transmettre de la chaleur, il y a donc au moins une autre manière de transmettre celle-ci. Le deuxième type de porteurs de chaleur

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

qui nous intéresse est celui des vibrations des atomes dans le cristal, soit les phonons. Lorsque les atomes d'un cristal se déplacent à l'unisson, une harmonique est produite et peut se propager dans le matériau sous ce qui est plus communément appelé une onde sonore. La plus petite unité de vibration, un quantum, est appelée un phonon. Suivant la dualité onde-particule, les phonons peuvent également être considérés comme des quasi-particules électriquement neutres, sans masse et sans spin. En se propageant dans le cristal, ces phonons transmettent de l'énergie et peuvent donc être des porteurs de chaleur dans des matériaux isolants.

Dans certains matériaux, il est également possible de propager de l'entropie par d'autres types d'excitations un peu plus exotiques, tels des magnons (excitations magnétiques), des spinons (excitations de spin) et d'autres encore dont il ne sera pas question dans ce document.

Lors d'une mesure expérimentale de conductivité thermique, on mesure la somme des contributions de chacune de ces sources  $\kappa_{tot}$  et il convient donc à l'expérimentatrice ou l'expérimentateur de trouver un moyen ou une situation pour tenter d'isoler chaque contribution :

$$\kappa_{tot} = \kappa_e + \kappa_{ph} + \kappa_{mag} + \dots \quad (2.16)$$

Si l'on ne regarde que la contribution provenant des électrons  $\kappa_e$ , on peut se servir du fait que seuls les électrons près de la surface de Fermi peuvent être excités, se déplacer dans le cristal et participer au transport. Avec les relations semi-classiques, nous obtenons que la conductivité thermique des électrons est donnée par :

$$\kappa_e = \frac{1}{3} C_e v_F \ell, \quad (2.17)$$

où  $C_e$  est la chaleur spécifique électronique,  $v_F$  la vitesse des électrons au niveau de Fermi et  $\ell$  le libre parcours moyen, soit la distance moyenne que peut parcourir un électron entre chaque collision. Cette contribution électronique possède une dépendance linéaire en température ( $\kappa_e \propto T$ ) à basse température indépendant de  $T$ . Le libre parcours moyen peut être relié au temps de relaxation  $\tau$  et donc la conductivité électrique selon :

$$\ell = v_f \tau. \quad (2.18)$$

D'une manière similaire, la conductivité thermique phononique  $\kappa_{ph}$  est décrite avec :

$$\kappa_{ph} = \frac{1}{3} C_{ph} v \ell, \quad (2.19)$$



## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

où nous avons plutôt la chaleur spécifique phononique  $C_{ph}$  et  $v$  la vitesse du son dans le cristal.

Le libre parcours moyen dépend de la température et cette dépendance se traduit dans la conductivité thermique par trois régimes différents selon la température. Ces trois régimes sont reliés à la température de Debye  $\theta_D$  et déterminent le type de diffuseurs le plus fréquent des phonons. La température de Debye est unique pour chaque matériau. Lorsque l'on est aux très basses températures ( $T \ll \theta_D$ ), la contribution phononique a une dépendance cubique en température ( $\kappa_{ph} \propto T^3$ ) et c'est la taille de l'échantillon qui va dominer la diffusion des phonons et réduire leur capacité à transporter la chaleur. Pour une température intermédiaire ( $T < \theta_D$ ), les diffuseurs de phonons sont surtout les impuretés présentes dans le cristal. La conductivité thermique a alors une dépendance en température selon  $e^{-\theta_D/T}$ . Finalement, aux températures supérieures à la température de Debye ( $T > \theta_D$ ), les phonons sont surtout diffusés sur eux-mêmes et suivent une dépendance inverse à la température ( $1/T$ ). Une représentation de ces différents régimes sur la conductivité thermique phononique est tracée à la figure 2.4 [32]. La forme de cette courbe, avec un maximum entre le moment où la diffusion est dominée par impuretés et celle des limites de l'échantillon, se retrouve dans plusieurs des mesures du chapitre 3 et en annexe A. En théorie toutes les mesures de conductivité thermique devraient donc tendre vers zéro quand la température tend vers zéro. En pratique il est toutefois très difficile d'atteindre des températures de plus en plus basses.

Si la structure du cristal affecte la conductivité électrique, il en va de même pour la conductivité thermique. La dépendance peut toutefois être différente que pour le courant électrique, puisque les différents porteurs de chaleur peuvent avoir une mobilité différente selon la direction de propagation et être différente de la mobilité des électrons. Par exemple, dans les cuprates étudiés, soit la famille du LSCO, la conductivité thermique électronique dans l'axe  $a$  et  $b$  sont assez similaire pour que l'on puisse dire que la partie électronique de  $\kappa_{xx} \approx \kappa_{yy}$ . La conductivité thermique selon l'axe  $c$  par contre est très différente des deux autres directions et demande une mesure à part entière pour déterminer  $\kappa_{zz}$  électronique. En même temps, la conductivité thermique des phonons est identique dans les trois directions, voir la figure 3.2 du chapitre des résultats.

Une autre manière de voir l'effet des électrons dans le transport thermique est en ajoutant un champ magnétique pour faire dévier les particules chargées dans l'optique d'obtenir la conductivité thermique transverse  $\kappa_{xy}$ . Cette mesure beaucoup plus ardue expérimentalement se trouve être l'objet de la prochaine sous-section.

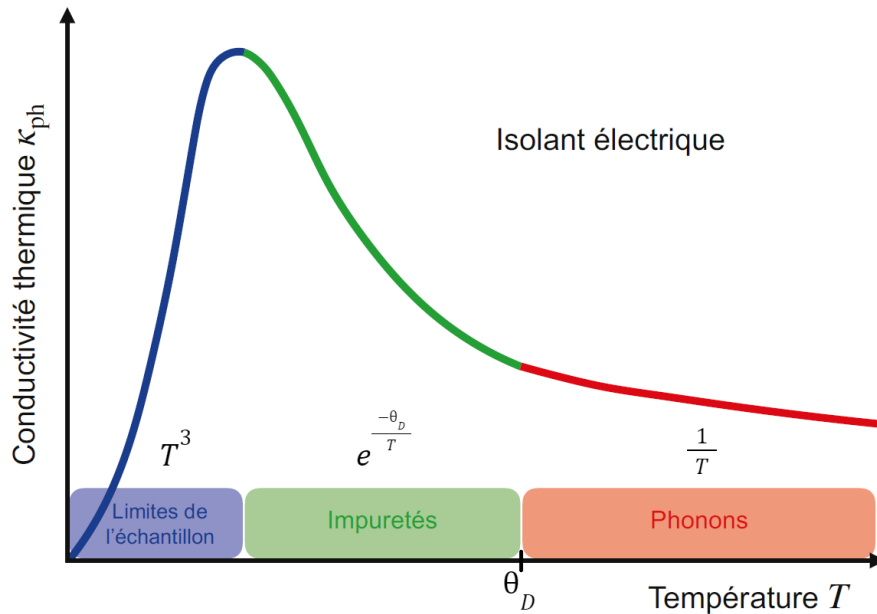


FIGURE 2.4 Conductivité thermique phononique et les diffuseurs principaux de phonons selon la température pour un isolant électrique. Figure tirée de [32] et modifiée.

#### 2.1.4 Conductivité thermique transverse (effet Hall thermique) $\kappa_{xy}$

De la même manière que l'effet Hall électrique, les particules et quasi-particules qui transportent l'entropie peuvent être déviées par un champ magnétique s'ils ont un mécanisme pour se coupler avec celui-ci. Dans un matériau où seuls les électrons peuvent se coupler au champ magnétique, la mesure de  $\kappa_{xy}$  offre donc une manière d'identifier la contribution électronique dans la conductivité thermique totale. De même, dans des isolants cette mesure permet d'identifier s'il y a d'autres excitations qui peuvent se coupler au champ magnétique.

Si l'on revient à l'effet Hall thermique lui-même, on voit tout de suite l'analogie avec l'effet Hall électrique où des charges sont déviées d'un côté. Dans la version thermique, la chaleur est dirigée préférentiellement d'un côté à cause du champ magnétique et il y aura un côté plus chaud que l'autre causant un gradient thermique transverse dans l'échantillon. La conductivité thermique transverse cherche à quantifier comment une substance conduit la chaleur perpendiculairement à la direction du courant de chaleur de la même manière que  $\sigma_{xy}$ . En suivant la même démarche que pour  $\sigma_{xy}$ , c'est-à-dire en se limitant dans la direction  $x$  et avec un champ magnétique dans l'axe  $z$ , la conductivité thermique transverse s'écrit

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

comme :

$$j_y = -\kappa_{yx} \nabla_x T - \kappa_{yy} \nabla_y T = 0; \quad (2.20)$$

$$\kappa_{yx} = -\kappa_{yy} \frac{\nabla_y T}{\nabla_x T}; \quad (2.21)$$

$$\kappa_{yx} = -\kappa_{yy} \frac{\Delta T_y}{\Delta_x} \frac{l}{w}; \quad (2.22)$$

$$\kappa_{xy} \approx -\kappa_{xx} \frac{\Delta T_y}{\Delta T_x} \frac{l}{w}. \quad (2.23)$$

Encore une fois, il ne s'agit que d'une des composantes du tenseur global de conductivité thermique, il est donc également possible de définir  $\kappa_{zy}$  où le courant de chaleur est injecté suivant l'axe  $z$  et le champ magnétique dans l'axe  $x$  produisant un gradient dans la direction  $y$ .

Comme il a été mentionné précédemment, dans le cas spécifique des échantillons de LSCO,  $\kappa_{xx} \approx \kappa_{yy}$ , puisque l'axe  $a$  et l'axe  $b$  sont très similaires et dans le même plan. Il est donc possible de remplacer  $\kappa_{yy}$  par  $\kappa_{xx}$ . En ayant des thermomètres pour mesurer  $\Delta T_x$  et d'autres pour mesurer  $\Delta T_y$  tel que montré à la figure 2.3, on peut obtenir  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{xy}$  en une seule mesure. Par contre, puisque le LSCO est pas cubique, c'est à dire que les axes  $a$  et  $c$  n'ont pas les mêmes longueurs,  $a$  et  $b$  sont dans un même plan, alors que  $c$  est perpendiculaire aux plans  $\text{CuO}_2$  (figure 1.2). On ne peut pas remplacer  $\kappa_{yy}$  par  $\kappa_{zz}$  puisque  $\kappa_{zz} \neq \kappa_{yy}$ . Obtenir  $\kappa_{yy}$  et  $\kappa_{zy}$  en une seule prise de mesure n'est donc pas possible. Pour cela, il faudrait être capable de changer la direction du courant de chaleur durant l'expérience. De plus, les échantillons sont taillés pour une seule mesure (soit  $\kappa_{xy}$  ou  $\kappa_{zy}$ , pas les deux). Donc pour calculer  $\kappa_{zy}$  il nous faut utiliser les données venants de la mesure d'un autre échantillon. Obtenir  $\kappa_{zy}$  à un dopage qui n'a jamais été mesuré nous oblige donc à prendre séparément  $\kappa_{xx}$  et double le temps requis pour terminer l'expérience. Le point focal de ce mémoire est la mesure de  $\kappa_{zy}$  :

$$\kappa_{zy} = -\kappa_{zz}^* \frac{\Delta T_z}{\Delta T_y} \frac{l}{w}, \quad (2.24)$$

où  $\kappa_{zz}^*$  est la conductivité thermique longitudinale dans l'axe  $c$  ajustée par rapport à  $\kappa_{xx}$  de l'axe  $a$  en se servant de données d'échantillons similaires provenant, si possible, du même échantillon mère, mais taillés pour une mesure en  $\kappa_{xx}$ . Essentiellement, on considère que  $\kappa_{xx}$  ne varie pas dramatiquement d'un échantillon à l'autre.

## 2.1. ASPECTS THÉORIQUES

---

### 2.1.5 Loi de Wiedemann-Franz

Maintenant que nous avons vu qu'il est possible pour les électrons de transporter à la fois un courant électrique et un courant de chaleur, nous allons regarder la relation entre les deux.

Pour trouver ce lien, commençons par faire le rapport de la conductivité thermique électronique ( $\kappa_e$ ) de l'équation 2.17 et la conductivité électrique ( $\sigma$ ) de l'équation 2.1.1 :

$$\frac{\kappa_e}{\sigma} = \frac{1}{3} C_{el} v_f \ell \frac{m^*}{ne^2 \tau}. \quad (2.25)$$

Selon le modèle de Sommerfeld, la chaleur spécifique électronique est donnée par :

$$C_{el} = \frac{\pi^2}{2} k_B n \frac{T}{T_f}. \quad (2.26)$$

Il est également à noter que la vitesse de Fermi peut être isolée de l'énergie cinétique :

$$E_f = \frac{1}{2} m^* v_f^2 = k_B T_f. \quad (2.27)$$

Maintenant, nous pouvons réécrire l'équation 2.25 avec la chaleur spécifique électronique de l'équation 2.26 et en remplaçant  $\tau$  de l'équation 2.18 :

$$\frac{\kappa_e}{\sigma} = \frac{1}{3} \frac{\pi^2}{2} k_B n \frac{T}{T_f} v_f \ell \frac{m^* v_f}{ne^2 \ell}; \quad (2.28)$$

$$\frac{\kappa_e}{\sigma} = \frac{1}{3} \pi^2 k_B \frac{T}{T_f} \frac{1}{2} \frac{m^* v_f^2}{e^2}; \quad (2.29)$$

$$\frac{\kappa_e}{\sigma} = \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B^2}{e^2} T. \quad (2.30)$$

Ce rapport entre ces deux conductivités est donc relié par une fonction linéaire en température multiplié par une constante, le nombre de Lorenz :

$$L_0 \equiv \frac{\pi^2}{3} \left( \frac{k_B}{e} \right)^2 = 2.44 \times 10^{-8} \text{ W} \cdot \Omega \cdot \text{K}^{-2}. \quad (2.31)$$

Quand l'entropie et la charge sont à la fois transportées par les électrons et seulement ceux-ci, on obtient la loi de Wiedemann-Franz. On s'attend à ce que cette relation soit respectée à très basses et très hautes températures. Un graphique montrant les courbes de  $\kappa/T$  et  $L_0\sigma$  en fonction de la température devrait donc montrer que celles-ci se joignent dans la limite  $T \rightarrow 0$ , si les électrons sont bel et bien les porteurs de chaleur.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

La raison pourquoi cette relation n'est pas respectée pour des températures intermédiaires même en ne regardant que les électrons est assez simple. Peu importe les collisions, la charge est toujours conservée dans un courant électrique et seule la diffusion est un frein pour la conductivité électrique. Dans le cas de la conductivité thermique par contre, il n'est pas garanti qu'une collision conserve l'énergie transportée par les électrons. Lors d'une collision inélastique, les électrons peuvent transférer de l'énergie au cristal en plus d'être victime de la diffusion. Il y a donc deux manières principales de dégrader la conductivité thermique, par le changement d'impulsion et la perte d'énergie, alors que la conductivité électrique est principalement influencée par le changement d'impulsion [29].

## 2.2 Aspects expérimentaux

---

Dans les sections qui suivent, nous allons passer en revue le parcours de l'échantillon de sa synthèse à sa mesure. Nous allons donc discuter de l'échantillon, ses connexions avec la sonde, la sonde elle-même et finalement tout l'appareillage utilisé lors d'une mesure pour obtenir les graphiques du chapitre 3.

### 2.2.1 Croissance des échantillons

Le groupe Taillefer mesure un grand nombre d'échantillons de matériaux divers qui demandent un niveau de pureté exceptionnel. La croissance d'un matériau en particulier pouvant demander des années à perfectionner, nous préférons demander la collaboration de différents groupes se spécialisant dans leur synthèse. Certains échantillons proviennent donc de l'Université du Texas à Austin, d'autres de l'Université de Tokyo, de Bristol, de McMaster. Certains proviennent même du département de physique ici à Sherbrooke, par exemple du groupe de Patrick Fournier.

L'échantillon idéal que l'on recherche pour les mesures de transport thermique est avant tout un monocristal, c'est-à-dire que notre échantillon est constitué d'un seul cristal dont la frontière est délimitée par les surfaces de l'échantillon. L'opposé d'un monocristal est un polycristal qui contient plusieurs petits cristaux dont la croissance c'est effectuée dans des directions différentes et fusionnés ensemble à un certain point. On veut éviter ici les défauts qui sont présents aux frontières des polycristaux et dégradent nos courants électriques et thermiques. Puisque nous utilisons des échantillons dopés, il est très important que ce dopage soit uniforme pour s'assurer que l'on mesure bien au dopage que l'on pense mesurer. Si l'on regarde le courant électrique, il peut prendre un chemin très différent au

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

travers de l'échantillon pour éviter les zones avec des concentrations différentes en dopants. Dans de tels cas, la mesure qui serait effectuée serait à un dopage qui n'est pas tout à fait celui de l'ensemble de l'échantillon, ajoutant de l'incertitude dans nos données. Finalement, on cherche à avoir le moins d'impuretés possible, autant venant de l'inclusion d'atomes étrangers ou de défauts structuraux. Ces impuretés ont pour effet de réduire les valeurs de conductivités, dans de tels cas, nous ne mesurons pas seulement le matériau lui-même comme il devrait l'être, mais également l'effet de ces impuretés qui peut être différent d'un échantillon à l'autre et rendre plus difficile de reproduire des résultats.

Bien que la préparation de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LSCO),  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Nd-LSCO) et  $\text{La}_{1.8-x}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Eu-LSCO) comporte chacune des subtilités pour obtenir la meilleure croissance, pureté et homogénéité, la technique la plus couramment utilisée est la méthode de zone fondue (*travelling solvent floating zone*). Cette étape n'étant pas directement effectuée par notre groupe, le lecteur peut obtenir plus d'informations en lisant par exemple une publication du groupe Gaulin à McMaster [33].

Une des étapes après la croissance, mais avant la pose de contacts, qui peut être faite dans le groupe est l'étape de recuit et sert à diminuer les défauts structuraux. Une fois le cristal terminé, il reste à déterminer l'orientation des axes cristallins (axe  $a$ ,  $b$  et  $c$ ), ce qui est habituellement fait par le fabricant du cristal en se servant d'une technique de diffraction des rayons-x sur les plans cristallins. Cette étape peut être réalisée à l'Université de Sherbrooke. Finalement, un échantillon mère est coupé suivant les axes cristallins puis nous est envoyé.

### 2.2.2 Contacts

Les échantillons tels qu'ils nous sont envoyés ne sont pas prêts pour les mesures. En effet, nous recevons des échantillons de grandes tailles, soit quelques centimètres, qui doivent être préparés pour être plus aisément mesurés. Un échantillon idéal pour les mesures thermiques est long, moyennement large et très mince, par exemple 1.5 mm de long par 0.5 mm de large et 0.15 mm d'épaisseur.

Pour obtenir des échantillons de cette taille, nous le coupons à l'aide d'une scie à fil de tungstène qui utilise la friction de diamants en suspension dans de l'huile minérale pour couper un échantillon. Certains de nos échantillons sont ensuite polis pour avoir une surface plus régulière ou être amincis. Certains échantillons et matériaux sont trop fragiles pour être coupés de la sorte et il faut donc plutôt prendre des fragments ayant été clivés. Heureusement les échantillons de (Nd,Eu)-LSCO utilisés dans ce mémoire sont assez gros et robustes pour être coupés à la taille voulue et manipulés normalement sans peur de les

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

briser.

Une fois coupé, il faut quelque chose pour connecter les instruments de mesure avec l'échantillon lui-même. Dans la plupart des cas, nous utilisons des fils d'argent de 25, 50 ou 100  $\mu\text{m}$  de diamètre que l'on fait tenir à la surface de nos échantillons à l'aide de vernis GE (*General Electric*), de peinture d'argent *DuPont 4929N* ou d'époxy d'argent *Epo-Tek H20E* selon la situation.

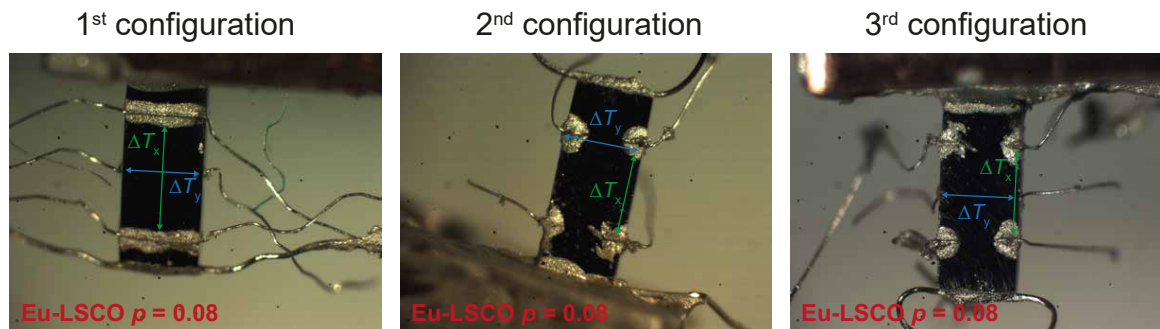
Dans le cas de mesures électriques, il faut bien entendu un contact qui est un bon conducteur électrique, donc le vernis GE qui est un isolant est hors de question. Il faut donc utiliser soit la peinture d'argent qui s'applique plus rapidement, mais est moins durable ou faire un contact plus permanent avec l'époxy. Dans le cas des cuprates où l'axe  $c$  est vastement moins conducteur que l'axe  $a$  ou  $b$ , nous préférons utiliser l'époxy pour "court-circuiter" l'axe  $c$ . Puisqu'après la cuisson de l'époxy les atomes d'argent pénètrent l'échantillon sur plusieurs plans de cuivre-oxygène, les électrons transportant le courant peuvent plus facilement se rendre aux contacts. Nous appliquons également dans ces cas de l'époxy sur les côtés de l'échantillon pour la même raison. À la suite de l'application des contacts, il faut recuire l'échantillon et ses contacts pour que le vernis, la peinture ou l'époxy sèche et le contact durcisse. Cette cuisson dépend de ce qui a servi à faire le contact. Le vernis ne demande qu'un certain temps à l'air ambiant sous une lampe chauffante. Pour la peinture d'argent, il faut soit environ une heure à l'air ambiant ou quelques minutes sur une plaque chauffante à 150 °C pour être sec. Finalement, pour l'époxy il faut une atmosphère d'oxygène à 500 °C pendant une heure pour que le contact pénètre profondément l'échantillon. Dans les cas où nous avons un isolant, le courant et la chaleur dans notre cristal ne sont pas transportés par les électrons, il n'est donc pas nécessaire de faire pénétrer l'époxy dans l'échantillon et seulement cinq minutes à 150 °C sur une plaque chauffante suffisent pour cuire les contacts.

Dans le cas de mesures thermiques, nous avons besoin d'un contact qui peut transporter de la chaleur d'un point sur l'échantillon vers un thermomètre ou un thermocouple. Les trois choix listés plus haut sont donc acceptables. Si un contact est un moins bon conducteur, le temps de stabilisation pour la prise d'un point sera plus long. Dans le cas de contacts trop conducteurs, ils pourraient affecter les mesures en changeant le gradient thermique à la surface de l'échantillon. Le choix du type de contact va alors dépendre du type d'échantillon et des mesures. La peinture d'argent va moins bien coller sur une surface très lisse, mais c'est une méthode rapide. La peinture d'argent a tendance à ne pas bien tenir pour plusieurs mesures, il faut donc refaire les contacts ou utiliser de l'époxy. L'époxy va durer plus longtemps (plusieurs cycles de mesures et réchauffement à température pièce), mais prend du temps à cause du recuit. Le vernis va coller à presque tout, mais sèche presque trop rapidement.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

Le vernis GE est le plus difficile à manipuler et n'est utilisé qu'en dernier recours pour les contacts, il est plus couramment utilisé pour faire tenir les autres instruments sur la sonde.

L'application des contacts est une étape cruciale et très délicate. En effet, chaque contact est appliqué à la main (ou plutôt à la pince) à l'aide d'un microscope binoculaire. Nos échantillons étant habituellement de l'ordre du millimètre de long et les fils plus minces qu'un cheveu (voir figure 2.9), il serait très difficile de le faire à l'oeil nu. Également, puisque chaque échantillon est différent, automatiser le procédé n'est pas encore à notre portée. Un bon contact doit prendre le moins de surface sur l'échantillon possible, tout en étant bien séparé des autres puisque l'étalement des contacts engendre une grande incertitude dans les mesures. Il faut savoir qu'il est possible de retirer aisément la peinture et le GE avec un peu d'éthanol et un petit coup délicat de pinceau, mais l'époxy demande de gratter l'échantillon ou de le polir, ce qui risque de l'endommager. Lorsqu'elle est mal préparée, la peinture d'argent peut être trop liquide et s'étaler sur l'échantillon.



**FIGURE 2.5** Montage photo de différentes configurations de contacts sur un échantillon de Eu-LSCO utilisé pour des mesures de  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{xy}$ . La première et troisième configuration ont des contacts transverses "de Hall" alors que la deuxième configuration n'a que quatre contacts, tous de  $25 \mu\text{m}$ . Les contacts qui sont utilisés pour les mesures  $\Delta T_x$  et  $\Delta T_y$  sont identifiés. Sur chacune des configurations, on peut voir le bloc de cuivre d'un côté et de l'autre le fil d'argent de  $50 \mu\text{m}$  allant vers l'élément chauffant

Les trois configurations de contacts qui sont montrées à la figure 2.5 sont utilisées selon l'échantillon. Dans le cas d'un échantillon plus gros, la première configuration est souvent utilisée. Pour des échantillons plus petits où il n'y a pas suffisamment de place pour placer des contacts transverses au milieu, on se contente de quatre contacts dans la deuxième configuration. La troisième configuration est utilisée dans le but d'éliminer l'effet de l'argent dans la première configuration. En effet, nos fils sont bien réels et il faut tenir compte qu'eux aussi conduisent la chaleur et l'électricité. Dans le cas où les contacts sont comparables à la taille de l'échantillon leurs effets peuvent affecter grandement les mesures, surtout si la peinture "déborde" du contact et est étalée sur la surface de l'échantillon. Dans le cas où



## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

la peinture d'argent d'un contact touche celle d'un autre, il peut y avoir un court-circuit et gâcher la mesure. Dans le cas où cela se produit, il faut utiliser de l'éthanol et un pinceau pour délicatement tenter de retirer de débordement, ce qui finit bien souvent par retirer tous les contacts d'un échantillon et forcer à tout recommencer. Finalement, puisqu'encore une fois nous travaillons dans la réalité, il est impossible de placer les contacts exactement en face l'un de l'autre de chaque part de l'échantillon, qui est lui-même loin d'être un prisme rectangulaire parfait, ce qui induit une incertitude dans les mesures. Pour réduire un peu cette incertitude, nous antisymétrisons nos résultats lors de nos calculs de  $\Delta T_y$ , c'est-à-dire que nous effectuons une mesure à un champ magnétique fixe et recommençons la même mesure dans les mêmes conditions, mais avec un champ d'une polarité inversée. Il suffit alors de prendre la différence de signal entre les deux mesures pour extraire  $\Delta T_y$  avec une grande précision.

Une fois les contacts réalisés, il reste à les placer dans les instruments de mesure et pour cela on utilise des sondes. Dans le cas de mesures thermiques, on place délicatement les échantillons sur un bloc de cuivre que l'on maintient à l'aide de peinture d'argent pour assurer un bon contact thermique. Ce bloc de cuivre sera alors monté sur le porte-échantillon d'une des sondes. Dans le cas de mesures électriques, nous voulons un support qui transporte la chaleur, pour thermaliser à certaines températures, mais qui reste isolant pour ne pas affecter nos mesures électriques. Nous utilisons donc pour ce faire habituellement un support sous la forme d'une plaque de saphir ou très rarement de verre auquel on vient temporairement coller notre échantillon avec un peu de vernis GE.

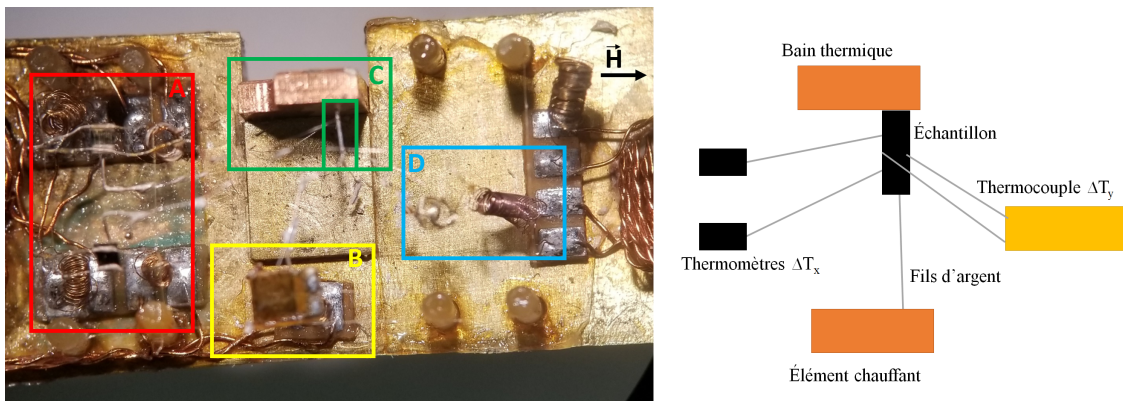
### 2.2.3 Sonde et montage

Ce que l'on cherche à obtenir de nos mesures, c'est l'évolution des propriétés physiques jusqu'aux très basses températures et en fonction du champ magnétique. Bien entendu, nos échantillons ne sont pas simplement laissés à flotter directement dans un bain d'hélium liquide pour les refroidir, nous utilisons des équipements un peu plus polyvalents.

Pour contrôler la température, tenir les thermomètres, l'élément chauffant et l'échantillon, on se sert d'une sonde qui sera elle-même dans un cryostat contrôlant la température et le champ magnétique. Les deux types de cryostats utilisés durant ce mémoire, le VTI et le PPMS seront expliqués plus en détail dans la prochaine sous-section. Deux sondes qui sont utilisées pour des mesures de transport thermique. La "sonde du VTI", nommé selon le cryostat (un VTI) et la "sonde de Tallahassee (TLH)" nommé du laboratoire de champ magnétique intense à Tallahassee seront présentées durant ce chapitre. Les deux sondes ont en commun la possibilité de supporter la prise de mesures sur deux échantillons simultanément.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

Chacune des sondes peut être divisée en trois sections différentes. La section porte-échantillon, qui se retrouve au coeur du cryostat et de la bobine supraconductrice, a pour fonction de maintenir les échantillons dans une bonne condition de mesure. Cette section qui fait une douzaine de centimètres de long est entourée d'un cylindre de laiton qui peut être pompé en continu par une turbopompe pour maintenir un vide extrême, dans certains cas, soit plus d'un milliardième de la pression atmosphérique normale (entre  $1.5 \times 10^{-7}$  et  $5 \times 10^{-8}$  mbar) pour éviter d'affecter les mesures thermiques. En fait, ce vide est maintenu également à cause des basses températures durant les mesures par le processus de cryo-pompage, où le gaz qui se trouve dans la sonde se solidifie sur les parois de celle-ci. Le porte-échantillon est muni d'un élément chauffant électrique fonctionnant conjointement avec un thermomètre qui permet de réguler la température suivant les directives d'un PID<sup>1</sup>. Il y a bien entendu sur le porte-échantillon les instruments pour la mesure, comme les thermomètres ou thermocouples, les éléments chauffants et évidemment les échantillons. Tous ces éléments, sauf les échantillons, sont isolés de la sonde en étant suspendus par des fils de kevlar, qui sont très résistants tout en étant peu conducteurs de chaleur. Ces éléments sont donc à une température la plus proche possible de celle du contact de l'échantillon auquel ils sont attachés et sont thermalisés par ceux-ci. Ils sont également reliés électriquement au reste de la sonde par des bobines de platine-tungstènes qui sont très peu conductrices de chaleur. Quant aux échantillons, ils sont thermalisés à la sonde avec un bloc de cuivre. Ces détails sont visibles à la figure 2.6.



**FIGURE 2.6** Image rapprochée d'un échantillon prêt pour une mesure sur la sonde de TLH. La partie A) en rouge contient deux thermomètres cernox pour  $\Delta T_x$  reliés à la sonde par des bobines de platine-tungstène. La partie B) jaune contient l'élément chauffant produisant le courant de chaleur. La partie C) verte est l'échantillon sur son bloc de cuivre. La partie D) bleue contient le thermocouple pour  $\Delta T_y$ . Tous ces éléments sont reliés par des fils d'argent et tenus par des fils de kevlar. La direction du champ magnétique est de gauche à droite.

1. Les PID ou Proportionnelle-Intégrale-Dérivée (*Proportional-Integral-Derivative*) sont une table de directive pour atteindre et maintenir la température désirée.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

La deuxième section est "la canne", une tige d'acier inoxydable creuse d'une peu moins de deux mètres de long permettant non seulement de descendre les échantillons au coeur du cryostat, mais également de pomper l'air dans le porte-échantillon. Sa longueur est calculée pour amener le porte-échantillon exactement au centre de la bobine supraconductrice de l'électroaimant du cryostat. Un champ magnétique constant et bien défini étant très important pour les mesures. Autour de la canne sont également enroulés les fils de cuivre connectés aux instruments de mesure dans le porte-échantillon, nous permettant d'avoir des appareils de mesures gros et encombrants en dehors du cryostat. Cette canne est conçue pour réduire la conduction de chaleur de la pièce vers les échantillons, ce qui a l'inconvénient de la rendre fragile.

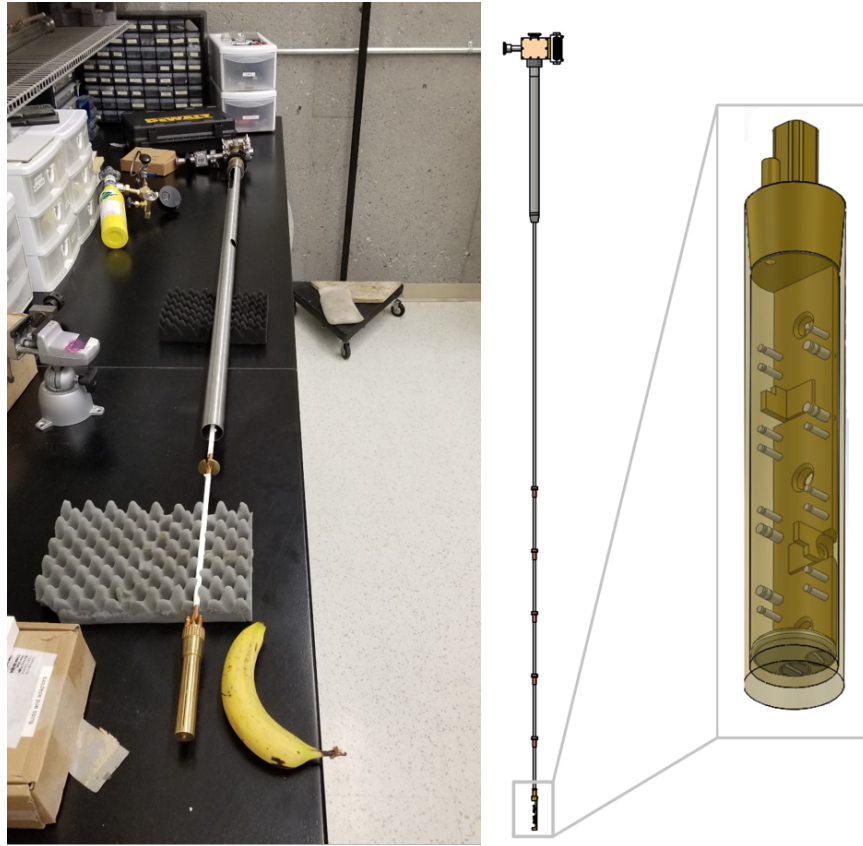
Finalement, la troisième section est celle qui sort du cryostat et porte les ouvertures permettant de pomper sur le porte-échantillon et de connecter les fils des instruments de mesure. Pour éviter un signal parasite provenant de connexions entre plusieurs métaux, les connexions de la sonde provenant du porte-échantillon jusqu'à l'appareillage de mesure à l'extérieur du cryostat sont entièrement en cuivre continu sans soudure. Une photo et une version schématisée sont présentées à la figure 2.7.

Une des différences entre la sonde du VTI et celle de TLH est que celle de TLH a été conçue pour entrer dans l'étroite bobine de l'électroaimant des laboratoires de champs magnétiques intenses de Tallahassee. Elle a donc un porte-échantillon plus étroit que la "sonde du VTI". Également, alors que la sonde du VTI est installée directement dans le cryostat, la sonde de TLH est protégée d'une "chaussette" d'acier inoxydable avant d'être placée dans le cryostat. Cette chaussette étant creuse, il faut faire le vide à l'intérieur pour éviter que l'air se solidifie à basse température lors du refroidissement de la sonde. Puisque l'on veut conserver le pouvoir réfrigérant du cryostat, on doit ajouter manuellement une petite quantité d'hélium gazeux dans ce vide. Il y a donc deux points d'entrées sur la sonde de TLH, une pour pomper la chaussette et une pour pomper la canne, alors que sur la sonde du VTI il n'y a que l'entrée pour la canne.

Une autre différence entre les deux sondes, mais qui pourrait être changée si on le désirait, sont les thermomètres. Alors que sur la sonde du VTI on n'utilise que des thermocouples, sur la sonde de TLH on utilise des thermomètres cernox pour prendre  $T^+$  et  $T^-$  et un thermocouple pour  $\Delta T_y$ . Les thermocouples fonctionnent sur le principe de l'effet Seebeck, où il se crée une différence de potentiel dans un métal lorsque les extrémités de celui-ci sont à des températures différentes. L'effet Seebeck est décrit selon :

$$S = -\frac{|\mathbf{E}|}{|\nabla T|} = -\frac{\Delta V}{\Delta T}. \quad (2.32)$$

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX



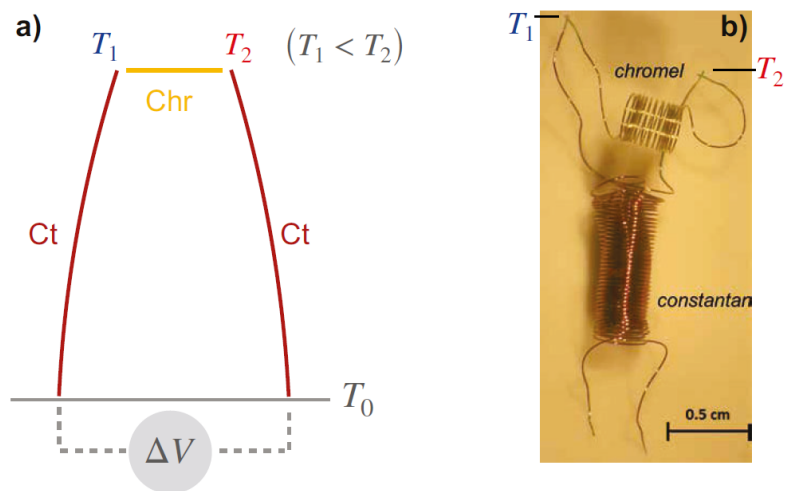
**FIGURE 2.7** À Gauche, nous avons une photo de la sonde du VTI avec une banane pour donner un sens de l'échelle au lecteur. À droite, nous avons un schéma de la sonde de TLH tiré de [31].

L'effet Seebeck peut être imaginé en pensant que les électrons "chauds" ont plus d'énergie que les électrons "froids". Un électron avec plus d'énergie se déplacera plus vite vers la région froide et il y aura donc une accumulation des porteurs de charge dans le sens opposé au gradient thermique créant un champ électrique qui dépend des porteurs.

Maintenant que l'on connaît l'effet Seebeck, il reste à l'utiliser. On ne peut pas tout simplement placer un fil de métal entre la sonde à une température connue  $T_0$  et à un endroit sur l'échantillon où l'on cherche la température, car mesurer une différence de potentiel entre ces deux points demanderait d'avoir d'autres fils qui auraient eux-mêmes un gradient électrique causé par l'effet Seebeck. La solution est d'utiliser une combinaison astucieuse de deux métaux différents se touchant là où l'on veut connaître la température et de mesurer leur différence de potentiel sur la sonde à  $T_0$ . On obtient alors une différence de potentiel causée uniquement par le gradient thermique entre l'échantillon et la sonde, qui, lorsque comparée à une table d'effet Seebeck, permet de déterminer la température

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

avec une grande précision. Il s'agit là de la description d'un thermocouple qui est utilisé pour déterminer  $T^+$  et  $T^-$ . Dans le cas de  $\Delta T_y$ , où l'on cherche un gradient très faible, on utilise plutôt un thermocouple différentiel présenté à la figure 2.8. Une augmentation de la température augmente le signal Seebeck dans les mesures d'un thermocouple, le bruit restant le même, un thermocouple est plus exact à haute température. Également, il existe plusieurs classifications de thermocouples selon les métaux utilisés, chacun ayant des avantages et inconvénients. Le type "E" est utilisé pour nos mesures, car il offre le plus haut signal par gradient thermique, donc une mesure plus précise d'un faible gradient et peut être utilisé à très basse température.



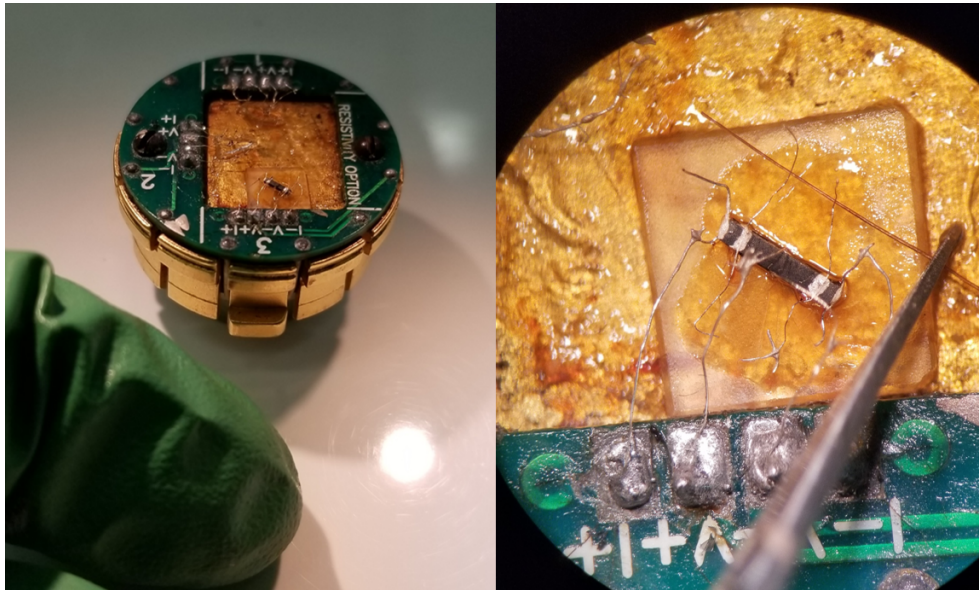
**FIGURE 2.8** a) Schéma d'un thermocouple différentiel de type "E" constitué de chromel et constantan servant à déterminer  $\Delta T_y$ . b) Image réelle de ce thermocouple tiré de [32]. Les points  $T_1$  et  $T_2$  sont reliés thermiquement à l'échantillon par des fils d'argent.

Pour ce qui est des cernox, qui sont simplement des résistances qui varient avec la température, on calibre celles-ci à chaque mesure en se servant des points *Heat Off* (sans que l'élément chauffant soit activé) en sachant qu'ils sont à la température de la sonde ( $T_0$ ). Cette calibration consiste simplement à placer les mesures de résistance de nos cernox en fonction de la température de la sonde pour obtenir une courbe. Une valeur de résistance quelconque peut alors être comparée à la courbe pour déterminer la température. Les cernox ont la propriété d'avoir une résistance qui augmente très fortement à basse température, ce qui les rend plus précises à ce moment, puisqu'une petite variation de température entraîne une forte variation de leur résistance aisément mesurable. Cependant, leur résistance varie également avec le champ magnétique, ce qui explique pourquoi elles sont calibrées durant chaque mesure.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

Ces deux sondes sont utilisées pour les mesures thermiques. Par contre, nous effectuons aussi des mesures électriques où nous utilisons un autre type de porte-échantillon, une "puck" de PPMS utilisée uniquement dans le PPMS. Ce porte-échantillon possède trois canaux ayant chacun la possibilité d'appliquer un courant et de mesurer une différence de potentiel. Ces canaux nous permettent donc d'effectuer trois mesures de résistivité ou d'effet Hall simultanément. La *puck* est présentée à la figure 2.9.



**FIGURE 2.9** À gauche une *puck* de PPMS avec un doigt pour échelle et à droite un échantillon typique connecté sur le canal 3 et collé sur un bloc de saphir par du vernis GE. Dans la figure de droite, il y a une pince tenant un cheveu humain pour aider le lecteur à visualiser à quel point les échantillons sont petits.

### 2.2.4 Instrumentation et équipement

Nous nous retrouvons maintenant dans la section de l'équipement à plus grande échelle, car même si nos échantillons sont de l'ordre du millimètre, tout l'équipement et l'appareillage nécessaire pour une seule mesure peuvent facilement prendre une pièce.

Commençons par les cryostats, puisqu'ils ont été maintes fois cités précédemment. Un cryostat, de *cryo*, froid et *stat*, stable est simplement tout appareil permettant de refroidir et de maintenir une température cryogénique, soit inférieure à  $-120$  °C. Votre réfrigérateur à la maison n'est donc pas tout à fait un cryostat, mais plutôt une version à "haute-température". Il existe plusieurs types de cryostats, mais dans le groupe Taillefer nous utilisons surtout un PPMS, un VTI et un frigo à dilution.

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

Le PPMS (*Physical Property Measurement System*) est un élément extrêmement polyvalent nous permettant de mesurer rapidement les propriétés des échantillons de 2 à 400 K. Bien que ce mémoire se consacre aux propriétés de transport, les mesures possibles dans le PPMS incluent également la dilatation thermique, l'aimantation et bien d'autres. Un logiciel d'acquisition de données et de contrôle des conditions expérimentales est inclus avec le PPMS facilitant grandement la prise de mesures, et ce, même pour quelqu'un d'inexpérimenté. Dans ce système est également intégré un électroaimant allant jusqu'à 16 T et les températures sont maintenues basses à l'aide d'une garde d'hélium liquide entourée d'une garde d'azote liquide. Notre PPMS est accompagné d'un liquéfacteur d'hélium, réduisant son entretien à trois remplissages d'azote liquide par semaine. Finalement, une pompe permet de faire le vide dans la chambre de tests. Un PPMS est montré à la figure 2.10.

Un deuxième type de cryostat, qui lui a été utilisé pour toutes les mesures thermiques présentées dans cette thèse est le VTI (*Variable Temperature Insert*) montré à la figure 2.10. Cet appareil ne peut pas fonctionner par lui-même et est plutôt plongé dans un cryostat plus gros que l'on nomme simplement "le cryostat", qui est un grand trou creusé dans le sol du laboratoire. Il contient un bain d'hélium liquide isolé de l'environnement et dans ce bain, un électroaimant. Nous avons trois de ces "cryostats" dans le sol en marche, deux avec un électroaimant de 15-17 T et un de 18-20 T. Ce champ magnétique est d'ailleurs le plus puissant du Québec à l'écriture de ce mémoire, nous permettant de mesurer des propriétés et phases inédites des matériaux. Ce cryostat est présent à la figure 2.11.

Le VTI peut refroidir ce qu'il contient, par exemple la sonde de TLH, à l'aide d'une petite ouverture, la valve pointeau (*needle valve*). Cette valve possède la dure tâche de laisser passer exactement la quantité souhaitée d'hélium liquide du bain vers l'intérieur du VTI. Cette valve est contrôlée précisément par ordinateur et donne tout le pouvoir réfrigérant au VTI, une ouverture plus grande de la valve refroidie plus alors que fermer la valve empêche le refroidissement. La raison pourquoi cette valve peut constamment faire rentrer de l'hélium dans le VTI sans que celui-ci soit inondé à un certain point est parce que le VTI est pompé constamment. Les pompes électriques sont situées dans un local adjacent au laboratoire pour éviter que les vibrations et le bruit affectent les mesures. Ces pompes sont reliées par de grands tuyaux en cuivre et renvoient l'hélium à un système central de récupération où il est liquéfié à nouveau. Comme on fait diminuer la pression de ce gaz en pompant dessus, il diminue en température. Le VTI lui-même peut donc utiliser de l'hélium liquide à  $\sim 4.2$  K pour descendre à un minimum de  $\sim 1.8$  K. Pour augmenter en température, le VTI est muni d'un élément chauffant électrique qui est également contrôlé par ordinateur.

Finalement, un troisième cryostat qui n'a été utilisé qu'une seule fois durant cette maîtrise est le frigo à dilution. Cet appareil se sert d'une propriété qu'ont les deux isotopes d'hélium,

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX



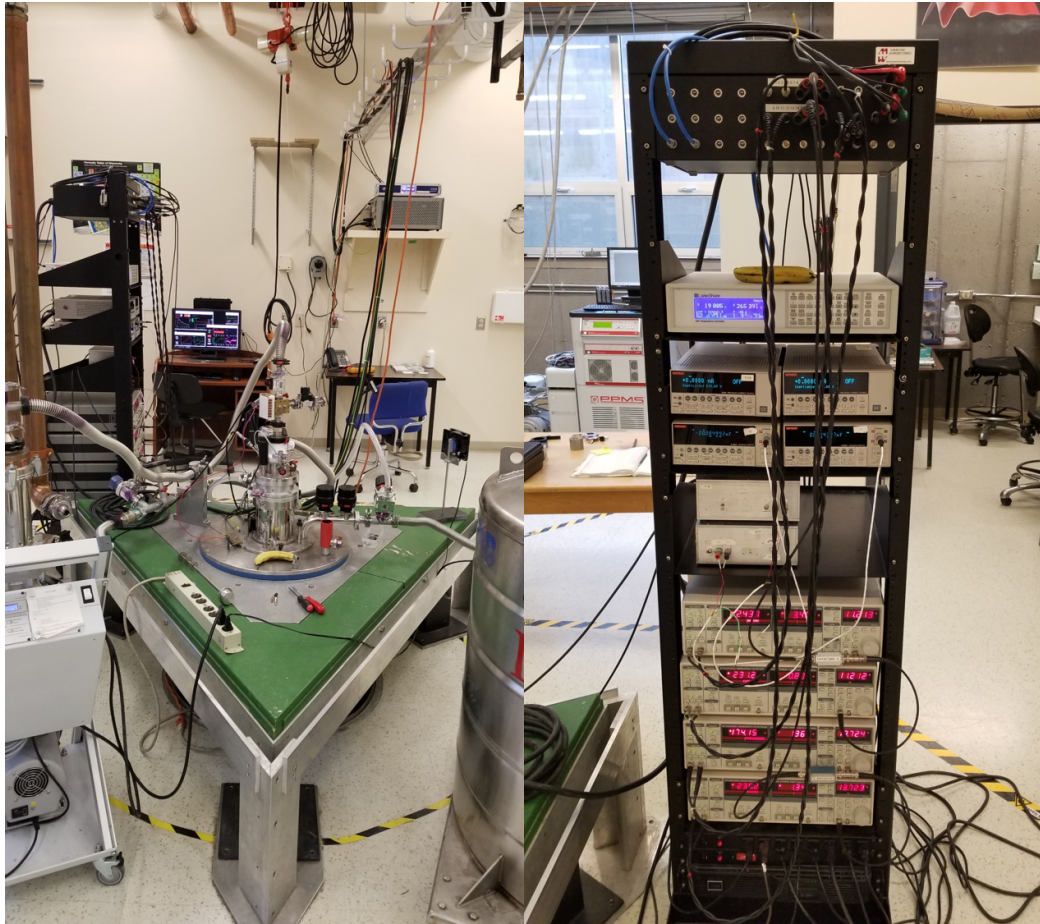
**FIGURE 2.10** À gauche, nous avons un cryostat de type PPMS permettant d'atteindre des champs magnétiques de 16T et des températures de 2-400K. Le liquéfacteur d'hélium est présent sur la photo, en plus des nombreux fils de mesures. À droite, nous avons un VTI sorti de son socle permettant des températures de l'ordre de 2 jusqu'à 300 K d'une manière extrêmement stable. Pour l'échelle des deux systèmes, une banane est présente dans les deux images.

l'hélium 3 et 4, d'absorber de l'énergie du milieu ambiant lorsqu'ils sont mélangés. Cette propriété étant présente jusqu'au zéro absolu, il est possible de concevoir un système qui peut être refroidi jusqu'à des températures extrêmement faibles. Dans le laboratoire, le minimum que nous avons atteint est de l'ordre de 10 mK, mais à ce point les thermomètres ne sont pas bien calibrés. Certains cuprates ont des propriétés très intéressantes à très basse température qui ne sont accessibles qu'avec un frigo à dilution.

Outre les cryostats, il serait impossible de prendre des mesures sans les équipements électroniques. Parmi ces équipements, il y a bien entendu les ordinateurs où sont installés les programmes de contrôle comme *Labview* ou le système d'exploitation du PPMS. Ces



## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

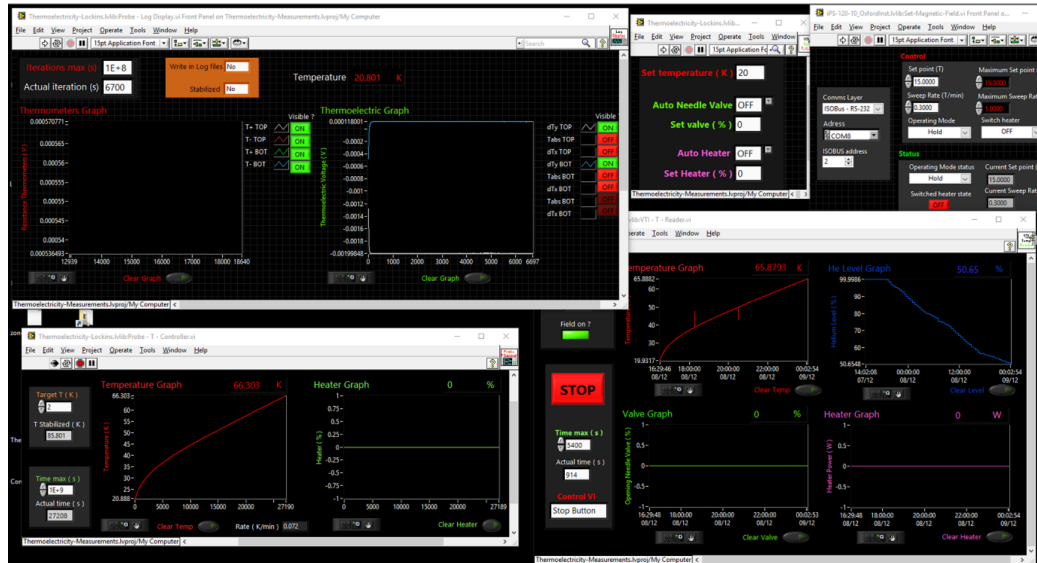


**FIGURE 2.11** À gauche, nous avons un "cryostat" ou plutôt la partie émergée et qui est tenue en place par une table à air comprimé de forme triangulaire. Au centre se trouve un VTI en train d'être utilisé. De part et d'autre du cryostat, on peut voir partiellement à gauche la pompe qui maintient le vide dans le porte-échantillon et le tuyau de cuivre vers la pompe principale du VTI. À droite de cette image se trouve un Dewar d'hélium liquide pour remplir le bain du cryostat entre les mesures. En arrière-plan se trouve l'ordinateur contrôlant les mesures et en haut sur le mur, l'appareil qui contrôle l'aimant. Dans l'image de droite, nous avons un "rack" d'appareils servant à la prise de mesure de haut en bas : les prises reliant les fils de la sonde vers les instruments, un contrôleur de température de la sonde *Lakeshore* 340, deux sources de courant *Keithley* 622, deux nano voltmètres *Keithley* 2182A, deux préamplificateurs fait maison et finalement quatre amplificateurs synchrones *Lock-In* SR830.

programmes nous permettent de choisir les températures où l'on veut prendre une mesure, les temps d'attente pour la stabilisation à une température, le champ magnétique, le courant que l'on applique dans les échantillons, bref tout ce qui concerne la mesure. En plus, tout cela à distance, ce qui est essentiel pour des mesures qui durent aussi longtemps et en temps de pandémie. Un exemple est présenté à la figure 2.12. Ce centre de contrôle envoie

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

des commandes aux différents appareils qui eux permettent la mesure, un tel montage est montré à l'image de la figure 2.11. Tous ces équipements sont essentiels pour s'assurer de la répétabilité des résultats.



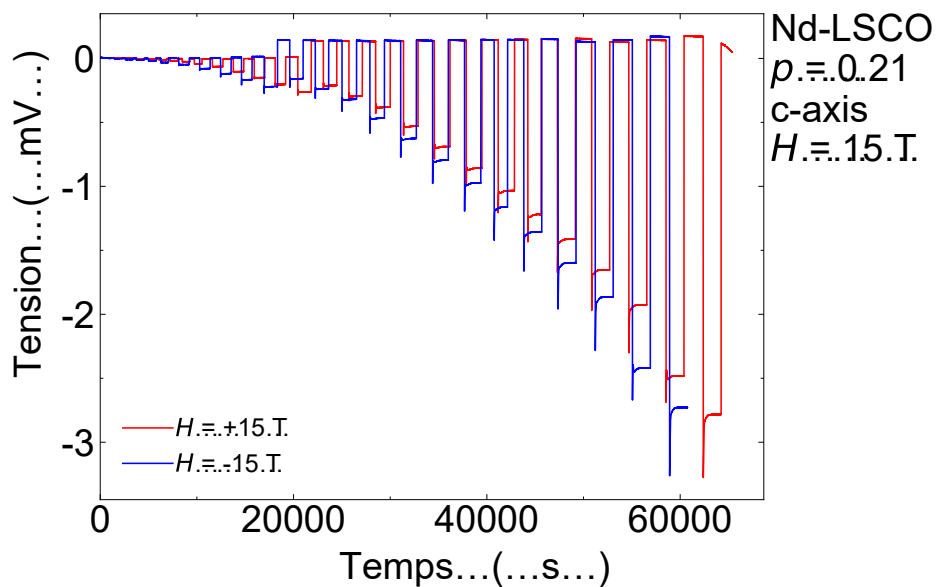
**FIGURE 2.12** Voici une image de ce que l'on voit à l'écran lors de la prise d'une mesure d'effet Hall thermique. Le programme *Labview* permet de contrôler les instruments de mesure, ainsi que la température et le champ magnétique. Il peut également tracer et enregistrer les données en temps réel.

Dans le cas de la sonde de TLH et du VTI, un des appareils est le *Lakeshore 340* qui a la dure tâche de s'assurer que la sonde est bel et bien à la température voulue. Pour ce faire, cet appareil est connecté au thermomètre et à l'élément chauffant placé sur le porte-échantillon de la sonde et suivant une table de PID, c'est le *Lakeshore* qui envoie le courant pour ajuster la température de la sonde. Il est aussi possible de demander au *Lakeshore* de changer de température à une vitesse fixe, ce qui est important pour éviter une trop forte dilatation thermique des échantillons qui pourrait les endommager. Nous avons également besoin de sources de courant pour appliquer la chaleur dans nos échantillons pour nos mesures. Il faut calculer à l'avance une fonction de courant pour savoir quel flux de chaleur on souhaite injecter dans l'échantillon. Chaque substance et échantillon ayant une conductivité thermique et une taille différente, il faut ajuster le courant pour chaque échantillon pour avoir un faible gradient thermique, tout en pouvant effectuer nos mesures. Un gradient thermique trop élevé rend difficile de mesurer les propriétés de l'échantillon à une certaine température finie, puisqu'un bout de l'échantillon peut être par exemple à 50 K et l'autre à 60 K. À l'opposé, puisque le signal  $\kappa_{xy}$  et  $\kappa_{zy}$  demandent un courant de chaleur à dévier, il faut un minimum de puissance pour surpasser le bruit ambiant. Nous programmons donc une fonction de courant pour avoir entre trois et cinq pour cent de gradient thermique dans

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

l'échantillon par rapport à la température de la sonde notée  $T_0$ , donc un gradient de 3-5 K lorsque l'on mesure à 100 K.

Une fois le courant de chaleur établi dans les échantillons, vient finalement le temps de la mesure. Le signal de différence de potentiel venant des thermocouples, de l'ordre du nanovolt, est encore extrêmement faible et il faut d'abord amplifier le signal d'un facteur 1000 avec nos préamplificateurs maison. Ce signal est ensuite mesuré par des nano voltmètres *Keithley* 2182A pour finalement être enregistré par l'ordinateur central dans un fichier. Pour les cernox, on peut directement prendre leur résistance en se servant d'amplificateurs synchrones *Lock in* SR830. Pour obtenir un point de mesure, après avoir attendu que la température soit stable, nous moyennons toujours les valeurs venant des thermomètres pendant trois minutes. Une mesure brute ressemble à ce qui est montré à la figure 2.13.



**FIGURE 2.13** Données brutes la différence de potentiel d'un thermocouple mesurant la différence de température transverse pour les deux champs magnétiques en fonction du temps. La tension est moyennée durant 180 secondes lorsque les conditions sont stables, c'est à dire la température est fixe et la tension forme un plateau. Les hauts et bas sont une conséquence de la mesure avec et sans courant de chaleur (*heat off*, *heat on*). Le décalage en volts entre les deux courbes est ce que l'on cherche à observer, soit le  $dT_y$  provenant de l'effet Hall thermique obtenu après antisymétrisation des deux courbes. Il faut noter qu'un amplificateur a multiplié par 1000 la tension. Pour les basses températures au début de la mesure (temps  $\rightarrow 0$ ), nous observons des variations de l'ordre du nanovolt.

Avec toutes ces données en main, obtenues à deux valeurs de champ magnétique opposées et plusieurs dizaines de températures, il ne reste qu'à analyser les résultats que nous

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

avons obtenus, ce qui sera présenté au chapitre 3.

### 2.2.5 Difficultés expérimentales

Aucune expérience n'est sans encombres et la tâche de l'expérimentateur est de réduire le plus possible les sources d'erreurs lors des mesures. Cette section porte sur les obstacles qui se sont opposés à la précision et justesse des mesures durant cette maîtrise.

Une partie cruciale de l'expérience et qui affecte le reste est la pose des contacts qui peut prendre plusieurs heures. Le point important à tenir en compte lorsque l'on place des contacts c'est que chaque mouvement des pinces peut réduire la qualité des contacts qui sont déjà sur l'échantillon ou que l'on tente de placer. Dans le pire des cas, un mauvais mouvement peut endommager de manière permanente l'échantillon. Il est donc recommandé, surtout pour les novices, de ne pas chercher la perfection et de se limiter à l'adéquat, parfois le mieux est l'ennemi du bien. Il est assez fréquent qu'un des contacts se détache lors d'une mesure ou que l'échantillon se détache de son bloc de cuivre. Dans un tel cas, il est préférable d'arrêter la mesure et de régler le problème en recollant ce qui a lâché, ce qui peut malheureusement rajouter plusieurs jours à la prise de mesure.

Comme dans toutes les mesures, il y a un certain degré d'incertitude dans les valeurs que nous obtenons. La source majeure d'incertitude provient des contacts. Il est difficile d'obtenir des contacts parfaitement alignés et la peinture et l'époxy d'argent élargissent les contacts sur l'échantillon. Le choix de la configuration des contacts (voir figure 2.5) induit également une incertitude sur la conductivité thermique et électrique de l'échantillon autour des contacts. Il est donc difficile d'avoir une valeur précise des distances entre les contacts, doit-on prendre la distance entre les fils d'argent ou de l'extrémité de l'époxy d'argent sur l'échantillon ? Cette distance étant nécessaire pour les mesures, elle cause une source d'incertitude importante de l'ordre similaire à un facteur multiplicatif de l'ordre de  $\pm 20\%$  (vu plus en détail en annexe B). Pour éviter la contamination du signal par un mauvais alignement des contacts transverses, c'est-à-dire mesurer un signal  $\Delta T_y$  plus grand que ce l'on devrait observer à cause d'une contamination du gradient transverse par le gradient longitudinal  $\Delta T_x$  entre ces deux contacts mal alignés, il faut faire une mesure avec un champ magnétique d'une polarité inversée. Ce deuxième champ double donc le temps de prise de mesure, mais évite beaucoup de bruit. Pour avoir les mêmes conditions expérimentales, il est important de faire ces deux champs à la suite l'un de l'autre, avec s'il le faut un transfert d'hélium entre les deux. Si quoi que ce soit a changé entre les deux champs, on ne peut pas être certain que l'on mesure bien la même chose. Avec ces deux champs, prendre les points pour avoir une courbe de 2 à 100 K peut donc prendre deux jours pour une courbe sans

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

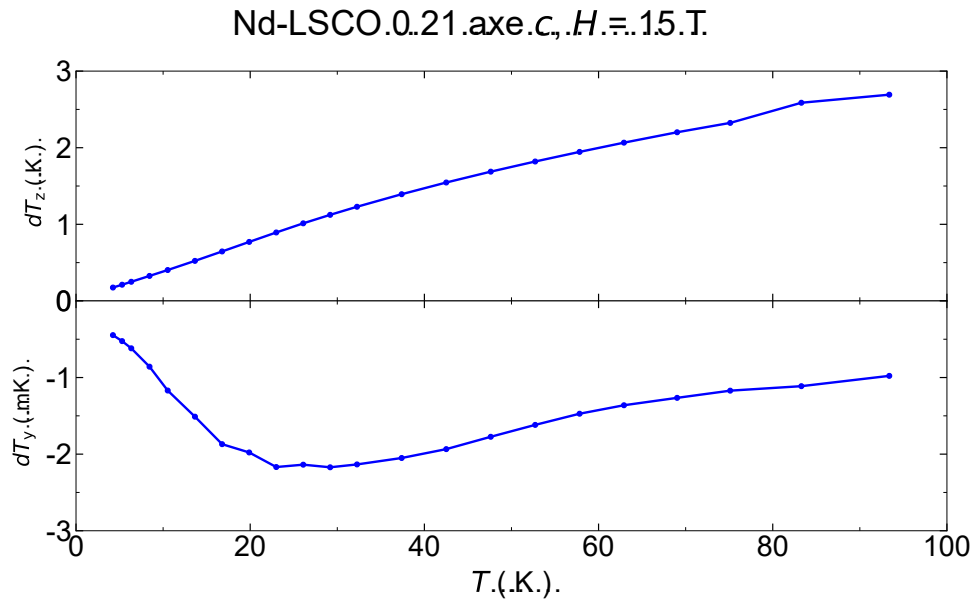
champ ( $\kappa_{nn}$ ) et trois à quatre jours de plus pour une courbe en champ ( $\kappa_{ny}$ ). C'est bien sûr si tout va bien.

Pour éviter d'obtenir du bruit électronique, les instruments de mesure sont branchés sur une mise à la terre "propre", qui est séparée de la mise à la terre de tout usuelle du reste du réseau électrique. Nous utilisons également un préamplificateur fonctionnant avec des piles pour éviter le bruit de 60 Hz provenant du secteur. Un problème électrique peut survenir si un fil court-circuite quelque part. Dans ce cas, il faut vérifier la ligne fautive avec un multimètre jusqu'à trouver la zone fautive. Dans certains cas, le mouvement des fils suspendus entre le VTI et les appareils de mesures peuvent causer du bruit électronique. Les mesures d'effet Hall thermique sont incroyablement sensibles et demandent toutes les précautions.

Dans le cas de l'effet Hall thermique, la prise de mesure elle-même est un défi. En effet, le gradient thermique que l'on cherche à mesurer est de seulement quelques millièmes de kelvin,  $dT_y$  est en effet autour de 1000 fois plus petit que le gradient  $dT_x$  (voir figure 2.14). Pour être capable de mesurer une si faible variation de température, il est essentiel d'avoir des instruments de mesure extrêmement précis et un niveau de bruit minimal. C'est pour cette raison que l'on peut attendre plus d'une heure que l'échantillon se stabilise avant de mesurer un seul point à une seule température. De plus, notre cryostat demande à être rempli d'hélium liquide avant chaque mesure, ce qui déstabilise le système pour environ huit heures avant même d'avoir commencé à prendre des données.

Parfois, lorsque vient le temps à l'ordinateur de prendre la moyenne pour la mesure, il peut survenir un déséquilibre quelconque qui affecte la mesure, mais seulement au moment où la moyenne est prise. Il survient donc un point aberrant. Il est possible de corriger ce point manuellement en allant regarder dans les enregistrements de la mesure et prendre la moyenne sur des points avant le déséquilibre. Si ce n'est toujours pas mieux, il faut parfois retirer ce point.

Un autre problème concerne les pertes de chaleur. Dans les mesures électriques, on sait par conservation de la charge que le courant ne peut aller ailleurs que dans les fils, mais ce n'est pas le cas pour les mesures thermiques. En effet, toute substance transmet la chaleur par conduction, ce qui implique des pertes vers la sonde malgré les matériaux isolants que l'on utilise. Il y a également les pertes par radiation. Ces pertes surviennent pour d'importants ratios de surface sur volume, par exemple lorsque la chaleur se transmet dans de longs fils minces et lorsqu'il y a une forte différence de température entre la sonde et le VTI. Ces pertes se manifestent sous la forme d'une augmentation artificielle de  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{xy}$  à haute température ( $T > 50$  K). Pour limiter ces pertes, on cherche à réduire le gradient



**FIGURE 2.14** Gradient thermique longitudinal  $dT_z$  dans le panneau du haut et le gradient thermique transverse  $dT_y$  en bas pour une même mesure dans le même échantillon de Nd-LSCO  $p = 0.21$  axe  $c$ . La différence entre les deux est environ un facteur 1000 (0.1%) et explique en partie la difficulté de la mesure.

de température dans l'échantillon avec une fonction de courant plus faible et en utilisant des fils de plus grand diamètre, ce qui augmente aussi le temps de stabilisation. Ce qui compte surtout dans les pertes par radiation c'est la différence de température entre la sonde et le VTI. Puisque le VTI aussi envoie des radiations vers la sonde, plus leur différence de température est faible, moins il y aura de pertes du côté de la sonde.

### 2.2.6 Résumé de la mesure

Voici la version courte du parcours des échantillons pour la mesure de l'effet Hall thermique dans le VTI avec la sonde de TLH ou la sonde du VTI, en supposant que tout va bien à chacune des étapes :

- Synthèse des cristaux par un partenaire;
- Orientation des axes cristallins des cristaux par diffraction des rayons X;
- Les échantillons sont reçus, coupés et nommés;
- Application des contacts (GE, peinture d'argent, époxy) et recuit si nécessaire;
- L'échantillon est collé sur un bloc de cuivre avec de la peinture d'argent;
- Installation du bloc de cuivre sur la sonde et connexion des contacts;
- La sonde est pompée à vide et transférée dans le VTI;

## 2.2. ASPECTS EXPÉRIMENTAUX

---

- Activation du champ magnétique, exemple 15 teslas ;
- La sonde est refroidie à 2-3 K et stabilisée pendant  $\sim 8$ h ;
- Stabilisation à une température cible et mesure *Heat off* des thermomètres ;
- Application d'un courant de chaleur et mesure *Heat on* des thermomètres ;
- Répétition des deux précédentes étapes pour toutes les températures cibles ;
- Répétition des mesures à champ magnétique inverse pour l'antisymétrisation ;
- Remise à la température pièce de la sonde et changement des échantillons ;
- Analyse des résultats et planification des prochaines mesures.

Pour une mesure électrique dans le PPMS, la mesure est essentiellement la même chose, mais la sonde est plutôt une *puck* et est placée dans le PPMS. Le bloc de cuivre est remplacé par un morceau de saphir (isolant électrique, mais bon conducteur thermique) et les mesures électrique se font en continu avec un changement très graduel de la température plutôt qu'une stabilisation.

## Chapitre 3

# Résultats et discussion sur les phonons chiraux

Durant cette maîtrise au cours des deux dernières années, 38 échantillons de 5 substances différentes furent mesurés : 1 BEDT, 2  $\text{Cu}_3\text{TeO}_6$ , 5 Eu-LSCO, 11 LSCO et 19 Nd-LSCO. Sur ces échantillons ont été pris 22 séries de mesures de résistivité, 20 d'effet Hall électrique, 21 de conductivité thermique, 21 d'effet Hall thermique, 5 d'aimantation, 4 de Seebeck et 1 de dilatométrie. Pour faciliter la compréhension des mesures, seuls les résultats les plus pertinents et concernant le sujet principal de la maîtrise seront présentés dans le présent chapitre. Les autres mesures intéressantes reliées au projet sont condensées et ajoutées en annexe [A](#).

Tel que discuté dans le chapitre [1.2](#), l'objectif de ce projet est d'observer l'effet Hall thermique dans la famille du cuprate LSCO suivant l'axe  $c$  dans le but d'identifier les porteurs de chaleur responsables du signal négatif dans l'effet Hall thermique dans une optique de mieux comprendre la phase pseudogap. Les principaux porteurs, outre les électrons, peuvent être les magnons ou d'autres excitations plus exotiques comme les spinons, ou bien des phonons. Puisque seuls les phonons sont aussi mobiles dans l'axe  $a$  que dans l'axe  $c$ , la mesure d'effet Hall thermique dans l'axe  $c$ , caractéristique unique de cette étude, permet donc de déterminer lequel de ces porteurs est responsable du signal observé dans la phase pseudogap. Dans le cas de phonons chiraux, il faut également un mécanisme pour expliquer le couplage entre les phonons et le champ magnétique.

Au cours de ce chapitre nous allons présenter au lecteur pourquoi nous pensons que l'hypothèse la plus probable est celle des phonons chiraux se couplant "intrinsèquement" à leur environnement en utilisant comme argument l'isotropie de  $\kappa_{xy}$  et  $\kappa_{zy}$ , prouvant que les



### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

porteurs de chaleurs doivent être aussi mobiles dans différents axes et que seuls les phonons peuvent répondre à ce critère.

Vient ensuite la tâche de déterminer par quel mécanisme les phonons deviennent chiraux. À l'aide de mesures d'effet Hall thermique perpendiculaires aux plans  $\text{CuO}_2$ ,  $\kappa_{zy}$ , obtenues à l'intérieur et à l'extérieur de la phase pseudogap, nous pensons pouvoir éliminer comme cause possible les domaines structuraux, les impuretés magnétiques et les impuretés d'oxygène.

L'origine de la chiralité des phonons dans le pseudogap demeure un mystère.

## 3.1 Résultats expérimentaux

---

### 3.1.1 Observations de phonons chiraux

Nous allons commencer l'étude de l'effet Hall thermique dans le composé parent LCO non dopé. Ce matériau est un isolant de Mott, autrement dit, il n'y a pas de charges libres dans le cristal pouvant conduire la chaleur, la composante de conductivité thermique électronique est donc nulle ( $\kappa_e = 0$ ). À basse température ( $T < 100$  K), les phonons sont donc les principaux porteurs de chaleur pour la conductivité thermique longitudinale  $\kappa_{xx}$ . De prime abord, comme présenté dans la motivation, nous savons que les électrons ne peuvent pas être directement responsable du signal d'effet Hall thermique observé. Quand est-il des autres porteurs de chaleur ?

Notre premier candidat pour expliquer l'effet Hall thermique observé est les magnons. Les magnons sont des quasi-particules bosoniques qui n'ont pas de charge, mais ont un spin ( $s = 1$ ). En fait, ils peuvent être vus comme une onde de spin. Ils peuvent donc se propager dans un isolant antiferromagnétique comme le LCO et peuvent transporter de l'entropie (chaleur). Une étude sur la conductivité thermique des magnons dans le LCO a déjà été réalisée par le groupe de C. Hess et est montrée à la figure 3.1. Ce groupe a mesuré la conductivité thermique à la fois dans l'axe  $a$  et l'axe  $c$ . Ils ont également déterminé la contribution thermique des magnons  $\kappa_{mag}$  dans ces deux mêmes directions. Résultat très important que l'on peut observer de cette étude est que cette contribution diminue en amplitude aux températures où la conductivité thermique totale atteint son maximum à la fois dans l'axe  $a$  ( $\kappa_a$ ) et dans l'axe  $c$  ( $\kappa_c$ ) autour de 30 K. Il est également à noter que la contribution des magnons n'est présente que pour l'axe  $a$ , les magnons n'ayant pas de dispersion suivant l'axe  $c$ , ils ne sont pas très mobiles entre les plans. Une mesure de l'effet

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Hall thermique dans l'axe  $c$  devrait donc nous permettre de déterminer s'ils sont les porteurs de chaleur dans nos échantillons.

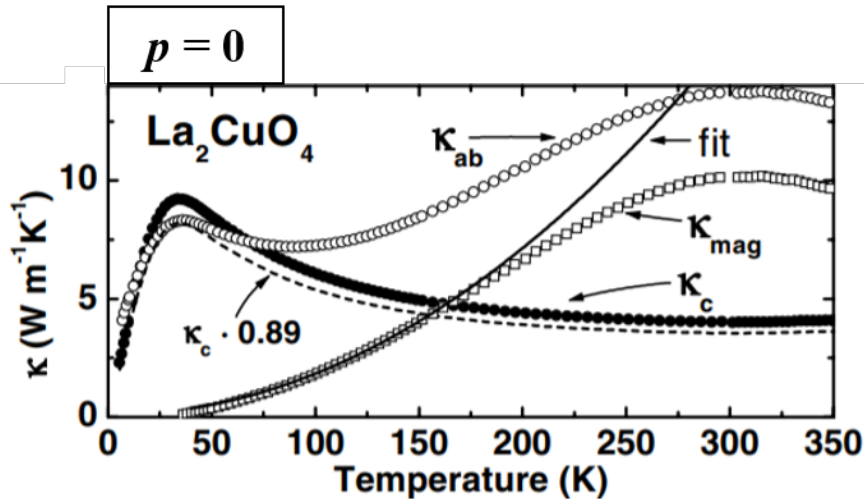
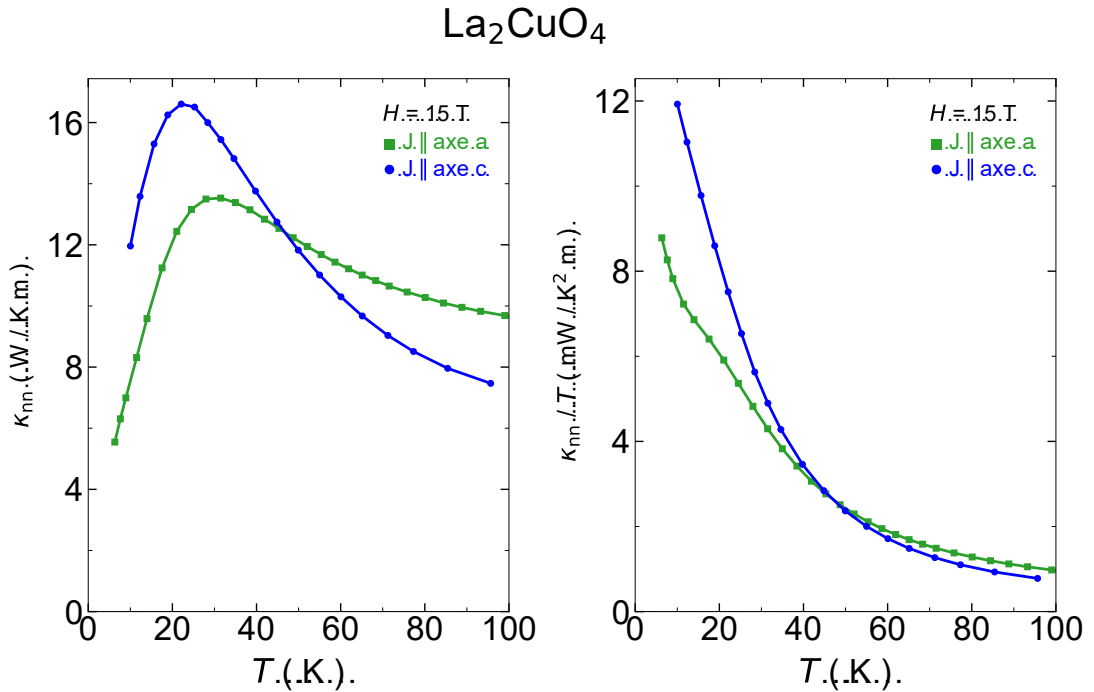


FIGURE 3.1 Conductivité thermique dans le LCO en fonction de la température selon le groupe de C. Hess [34]. On peut y voir que la contribution des magnons diminue fortement à basse température près du pic où les conductivités dans l'axe  $a$  et  $c$  sont très similaires, soit autour de 30 K.

Nous pouvons commencer par regarder la conductivité thermique dans nos propres échantillons de LCO suivant les axes  $a$  et  $c$ . Les mesures suivant l'axe  $a$  étant obtenues avec l'échantillon qui avait été mesuré précédemment dans le papier ayant motivé ce projet [17] et celles suivant l'axe  $c$  à partir d'un autre échantillon de LCO, mais où l'on applique le gradient thermique selon l'axe  $c$  ( $J \parallel c$ ), voir la section 2.1.3 pour le montage. On peut voir à la figure 3.2 que nous obtenons un résultat démontrant que la conductivité thermique longitudinale est à peu près isotrope suivant les deux axes, en considérant qu'il s'agit de deux échantillons différents. À basse température, les phonons agissent donc de la même manière dans la conductivité thermique lors de leur propagation selon l'axe  $a$  ou l'axe  $c$ . Ces résultats viennent confirmer ceux du groupe de C. Hess quant à la quasi-isotropie à basse température de la conductivité thermique.

Si l'on se tourne maintenant vers les données d'effet Hall thermique dans ces deux mêmes échantillons, nous pouvons observer à la figure 3.3 que le signal selon les deux axes est isotrope. Ce résultat indique que les porteurs de chaleur ont une mobilité similaire suivant les deux axes perpendiculaires. Dans un cas contraire où les porteurs seraient beaucoup plus mobiles selon l'axe  $a$  que dans l'axe  $c$ , on s'attendrait à un signal beaucoup plus anisotrope de plusieurs ordres de grandeur entre les deux axes. Les magnons et spinons ont une dispersion très anisotrope, alors que les phonons ont une dispersion isotrope. **Puisque une isotropie**

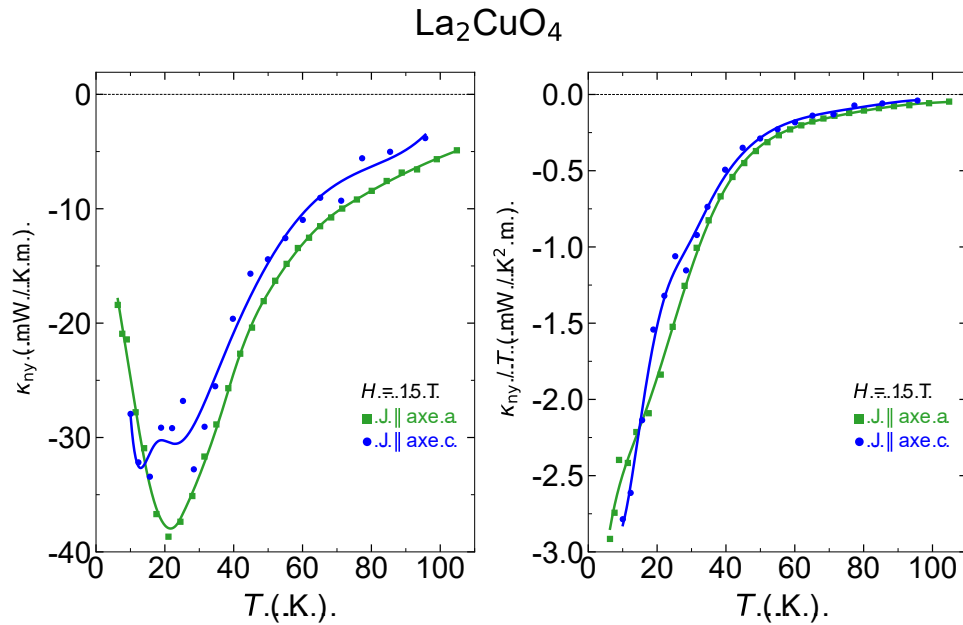


**FIGURE 3.2** Conductivité thermique longitudinale  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{zz}$  à gauche et  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{zz}$  divisé par la température à droite, tous deux en fonction de la température dans le composé parent LCO. Étant un isolant de Mott, cette conductivité est attribuable aux phonons pour  $T < 30 \text{ K}$ , où la contribution des magnons devient négligeable. On utilise  $\kappa_{nn}$  où  $nn$  peut être  $xx$  ou  $zz$ .

est observée dans la conductivité thermique, il s'agit là d'une forte évidence démontrant que les porteurs de chaleur responsables de l'effet Hall thermique dans  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  ne sont pas les magnons ou d'autres excitations plus exotiques comme les spinons, mais bien des phonons.

### 3.1.2 Phase pseudogap et chiralité

Si l'on augmente le dopage en strontium pour avoir une plus grande concentration en trous mobiles, nos échantillons deviennent de plus en plus conducteurs et certaines propriétés en sont affectées. Nous avons donc pris les mêmes mesures de conductivité thermique, mais dans les composés dopés  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Nd-LSCO) et  $\text{La}_{1.8-x}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Eu-LSCO) pour obtenir la figure 3.4. Ces échantillons ayant une faible  $T_c \sim 20 \text{ K}$ , il est possible de supprimer la supraconductivité et d'atteindre l'état normal pour toute la plage de température étudiée (entre 2 et 100 K) avec un champ magnétique de 15 T. On peut voir que pour ces deux substances, les échantillons où la chaleur est envoyée selon l'axe



**FIGURE 3.3** À gauche, effet Hall thermique dans le composé parent LCO en fonction de la température et à droite effet Hall thermique divisé par la température en fonction de la température. Suivant la conductivité longitudinale, l'effet Hall thermique est isotrope dans les limites expérimentales dans l'isolant de Mott LCO où nous avons établi que les phonons sont les principaux porteurs de chaleur.

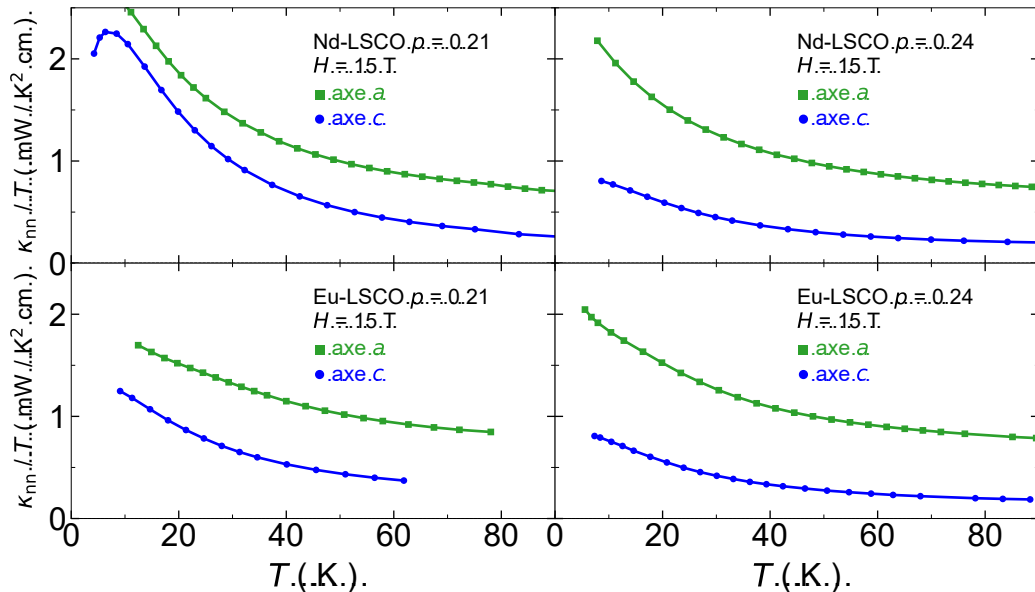
$a$  possèdent une plus grande conductivité thermique longitudinale que les échantillons du même dopage orientés selon l'axe  $c$ . Cette différence est attribuable à la conduction thermique des électrons  $\kappa_e$ , puisque nos échantillons sont maintenant conducteurs. Puisque les électrons ne sont pas aussi mobiles dans l'axe  $c$  que dans les plans  $ab$ , la contribution thermique électronique est beaucoup plus faible dans l'axe  $c$  ( $\rho_c/\rho_a \simeq 250$ ) que la contribution thermique des phonons et peut être négligée. On peut remarquer entre les figures 3.2 et 3.4 que lorsque l'on augmente le dopage, la valeur absolue de la conductivité thermique diminue, ce phénomène est attribuable au fait que l'augmentation des électrons libres augmente le nombre de collisions entre porteurs, mais également au fait que le dopage réduit la qualité du cristal. Les impuretés de strontium qui produisent le dopage causent en effet des défauts dans la structure cristalline causant un grand nombre de diffusions. Pour des dopages très élevés ( $p > 0.26$ ), les échantillons vont avoir tendance à se former en amas et contenir beaucoup de fissures dégradant encore plus la conduction. Ces dopages (0.21 et 0.24) ont été choisis, car ils sont de part et d'autre de la transition annonçant la fin de la phase pseudogap dans ces deux composés, soit à  $p^* = 0.23$ . Les échantillons à un dopage de 0.21 sont donc à l'intérieur de la phase pseudogap  $p < p^*$  et ceux à 0.24 sont en dehors de cette phase  $p > p^*$ . Les conductivités thermiques longitudinales sont toutefois du même ordre

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

de grandeur et ont une dépendance similaire en température pour chacun des échantillons.

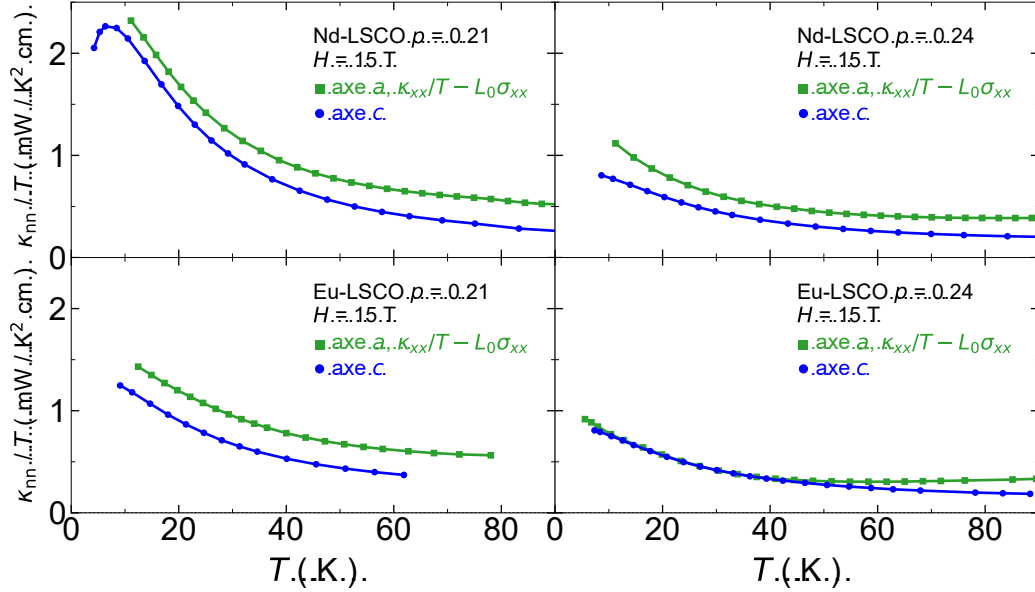
Pour s'assurer que le comportement isotrope de la conductivité thermique phononique est toujours présent à plus haut dopage, il est possible de retirer la contribution électronique dans la conductivité thermique totale en estimant celle-ci suivant la loi de Wiedemann-Franz et en soustrayant  $L_0\sigma_{xx}$  à  $\kappa_{xx}/T$ , tel que démontré à la figure 3.5. Une fois la contribution électronique retirée, on remarque que la conductivité thermique est presque isotrope entre les deux axes pour chacune des paires d'échantillons. Le comportement observé pour les phonons dans l'isolant de Mott est donc encore présent à plus haut dopage.

Il faut mentionner que ces mesures ont été effectuées dans différents échantillons entre l'axe  $a$  et l'axe  $c$ , ce qui pourrait expliquer la disparité. Il est également important de se souvenir que la loi de Wiedemann-Franz n'est valide que pour une température qui tend vers zéro, la soustraction est donc une approximation. Finalement, ce qui est recherché dans ces mesures n'est pas une exacte isotropie entre les deux axes, mais bien l'absence d'un facteur énorme entre les deux signifiant un comportement différent de celui observé dans la conductivité thermique de l'isolant de Mott.



**FIGURE 3.4** Conductivité thermique longitudinale dans quatre échantillons de Nd-LSCO et quatre de Eu-LSCO pour des dopages à l'intérieur  $0.21 < p^*$  et à l'extérieur  $0.24 > p^*$  de la phase pseudogap vs T.

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

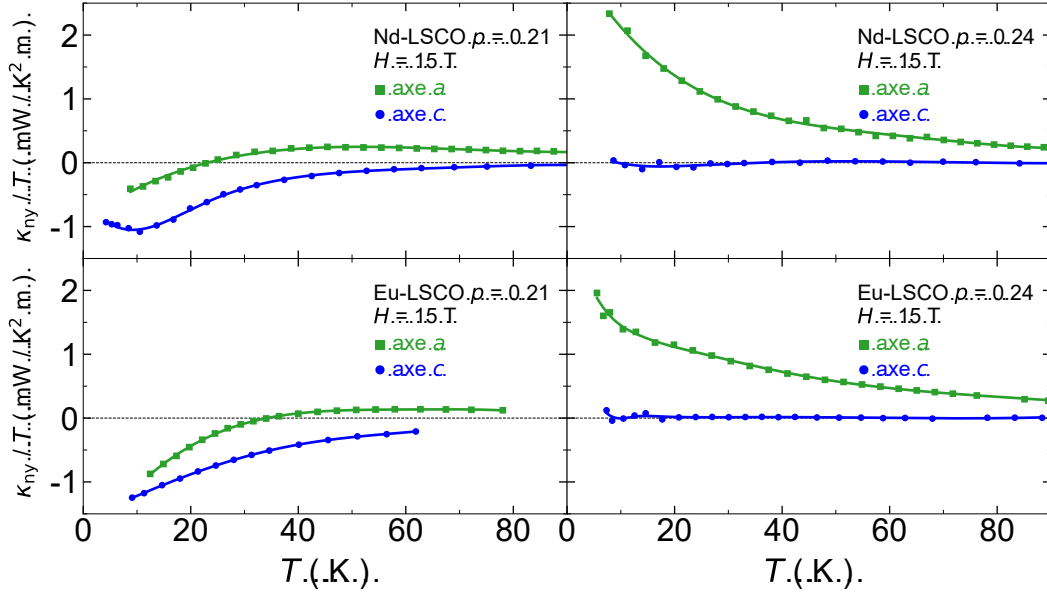


**FIGURE 3.5** Conductivité thermique après y avoir soustrait la contribution électronique estimée à partir de la loi de Wiedemann-Franz dans deux échantillons de le Nd-LSCO et deux de Eu-LSCO pour des dopages à l'intérieur  $0.21 < p^*$  et à l'extérieur  $0.24 > p^*$  de la phase pseudogap vs T.

Maintenant que nous avons démontré que le comportement des phonons est environ le même pour les axes cristallins  $a$  et  $c$  pour plusieurs dopages différents, nous allons nous pencher sur l'effet Hall thermique qui a également été mesuré dans les mêmes échantillons. Ces résultats sont présentés à la figure 3.6 où on peut y voir que la partie négative du signal, que l'on attribue aux phonons, est présente dans les deux axes et les deux composés qui ont un dopage de  $p = 0.21$ . Le signal dans les axes  $c$  demeure négatif pour toutes les températures de la plage de mesure, soit inférieur à 100 K, alors que le signal dans les axes  $a$  change de signe. Lorsque l'on se dirige de l'autre côté de  $p^*$ , soit à l'extérieur de la phase pseudogap à un dopage de  $p = 0.24$ , on remarque que le signal suivant les axes  $c$  est maintenant nul, ou au moins trop faible pour être détecté, et celui dans les axes  $a$  n'a plus de déviation vers le bas et reste positif pour toute la plage de température mesurée. **De toute évidence, l'effet Hall thermique négatif provenant des phonons est présent dans les deux axes dans la phase pseudogap** et dans l'axe  $a$  il y a également une contribution positive provenant des électrons. Cette contribution phononique disparaît à l'extérieur de la phase pseudogap et seul l'effet Hall thermique électronique positif, mobile seulement dans l'axe  $a$ , demeure visible. **L'effet Hall thermique négatif des phonons chiraux est donc une nouvelle propriété de la phase pseudogap.** Le mécanisme qui confère une chiralité aux

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

phonons dans la phase pseudogap, où chiral signifie simplement la capacité de se coupler au champ magnétique, reste toutefois à déterminer. Quelques mécanismes proposés seront le sujet de la prochaine section.

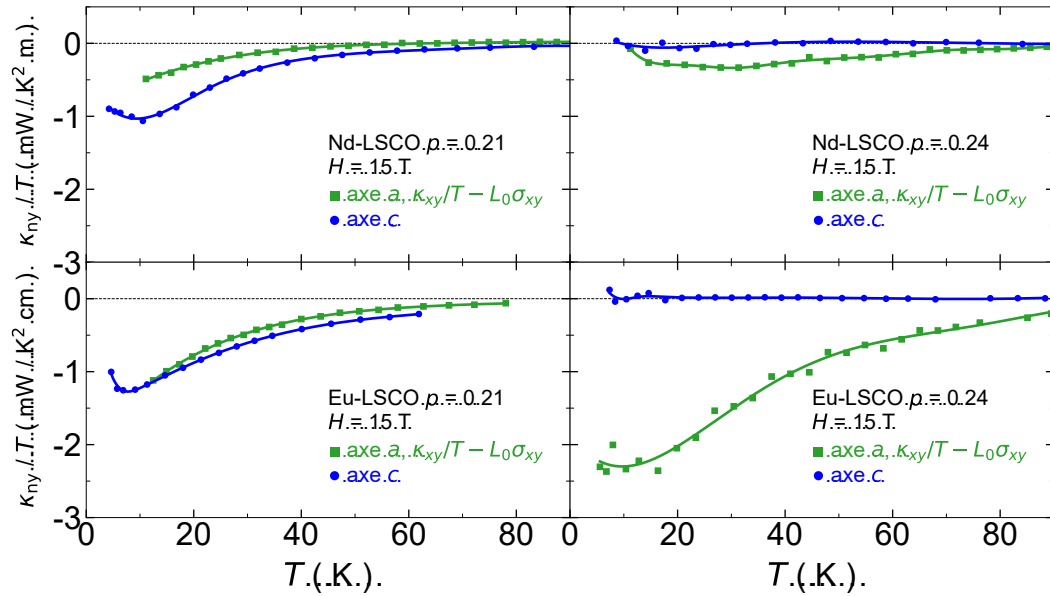


**FIGURE 3.6** Effet Hall thermique dans le Nd-LSCO et le Eu-LSCO à l'intérieur  $0.21 < p^*$  et à l'extérieur  $0.24 > p^*$  de la phase pseudogap en fonction de la température. À l'intérieur de la phase pseudogap, le signal que l'on attribue aux phonons est négatif et significatif, mais ce signal disparaît à l'extérieur de la phase pseudogap.

Il est également possible d'utiliser la même astuce de la loi de Wiedemann-Franz pour retirer la contribution électronique de  $\kappa_{xy}$ , ce qui est présenté au graphique 3.7. Il faut toutefois tenir compte que retirer la contribution électronique ne donne pas nécessairement la contribution phononique, mais détermine plutôt la valeur maximale que cette contribution phononique peut prendre. Il est possible que ce "signal" négatif observé pour l'échantillon de Eu-LSCO  $p = 0.24$  à la figure 3.7 soit en fait une approximation de la dégradation du transport thermique électronique par diffusions inélastiques. Ces pertes étant présentes dans un courant de chaleur, mais pas dans un courant électrique, elles peuvent expliquer la différence entre  $L_0\sigma_{xy}$  et  $\kappa_{xy}/T$  dans les matériaux sans phonons chiraux et le non-respect de la loi de Wiedemann-Franz pour les températures intermédiaires. L'échantillon de Eu-LSCO 0.24 axe  $a$  possède une grande conductivité électrique, mais une moins bonne conductivité thermique, puisque l'axe  $c$  ne comporte pas de partie négative due aux phonons, on peut supposer que cette différence est donc entièrement due aux pertes d'énergie lors des collisions des porteurs durant le transport de chaleur. Le Nd-LSCO  $p = 0.24$  axe  $a$  semble avoir

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

moins de pertes. Dans tous les cas, ces courbes correspondent à la contribution maximale que peut avoir l'effet Hall phononique selon l'axe  $a$ . Dans la phase pseudogap ( $p = 0.21$ ), la contribution phononique au transport thermique selon l'axe  $a$  est donc être du même ordre (Eu-LSCO) ou moitié moins grande (Nd-LSCO) que l'effet Hall thermique phononique observé selon l'axe  $c$ .



**FIGURE 3.7** Effet Hall thermique dans le Nd-LSCO et le Eu-LSCO à l'intérieur  $0.21 < p^*$  et à l'extérieur  $0.24 > p^*$  de la phase pseudogap en fonction de la température. La contribution électronique a été retirée en se servant de la loi de Wiedemann-Franz.

Il est important de mentionner que nous n'avons pas mesuré la dépendance magnétique de l'effet Hall thermique pour nos échantillons. La réalisation des mesures permettant de tracer la figure 3.6 prenant entre trois et quatre semaines, rajouter des champs magnétiques intermédiaires (par exemple 1, 2, 5 et 10 T) demanderait possiblement à doubler ce temps de mesure. Durant cette maîtrise, il le choix fut de mesurer un plus grand nombre d'échantillons à des dopages différents plutôt qu'un même échantillon à plusieurs champs magnétiques. Ces mesures pourraient permettre, entre autres, de répondre quant à la validité de la comparaison avec la loi de Wiedemann-Franz.

Avant de nous pencher sur les mécanismes de chiralité, nous pouvons regarder nos données sous une dernière couture. À la figure 3.8 se trouve l'évolution avec le dopage de l'amplitude du signal de l'effet Hall thermique divisé par la conductivité thermique



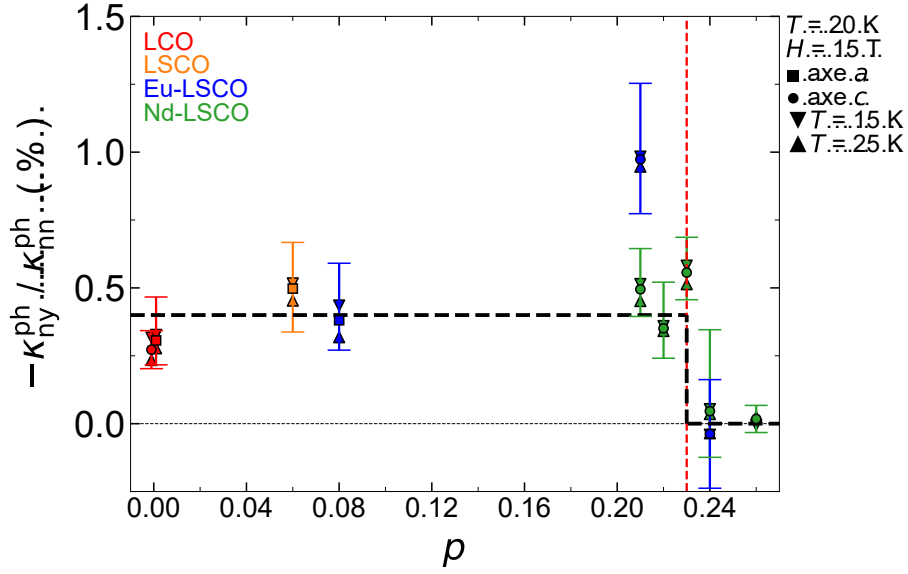
### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

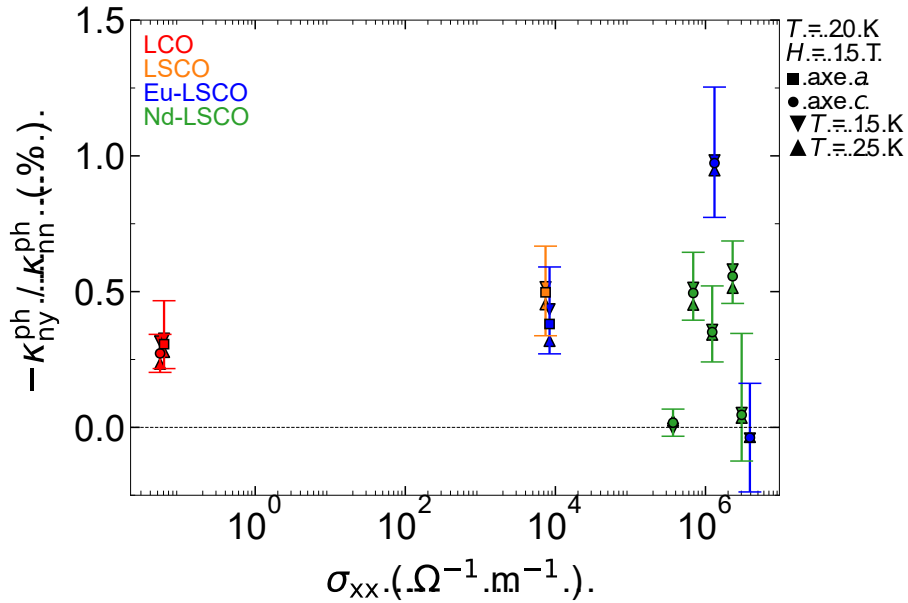
longitudinale ( $\kappa_{ny}/\kappa_{nm}$ ). Ce ratio, analogue à l'angle de Hall, est nommé ici "degré de chiralité" puisqu'il nous informe de la propension des phonons à être chiraux et interagir avec le champ magnétique. On y voit très bien que la chiralité disparaît en traversant  $p^*$  suivant le guide pour les yeux en trait pointillé noir. Pour obtenir la partie phononique du signal, ces données ont été prises selon l'axe  $a$  ( $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{xy}$ ) pour les trois dopages plus bas ( $p \leq 0.08$ ) où la densité de porteurs électroniques est assez faible pour considérer que la contribution thermique électronique est négligeable et le signal dominé par les phonons. Pour les dopages plus élevés ( $p > 0.08$ ), les mesures prises selon l'axe  $c$  ( $\kappa_{zz}$  et  $\kappa_{zy}$ ) ont été utilisées pour les mêmes raisons.

La mesure  $\kappa_{ny}/\kappa_{nm}$  étant susceptible d'être affectée en amplitude par les incertitudes, des barres d'erreur sont ajoutées. On y voit que pour les dopages  $p < p^*$ , l'amplitude du degré de chiralité est environ constante à 0.4%, alors qu'elle tombe à 0% pour les dopages  $p > p^*$ . Les incertitudes pour les dopages  $p < p^*$  sont principalement reliées à l'identification des facteurs géométriques de l'échantillon, ce qui n'a pour effet que de modifier l'amplitude du ratio, mais pas son allure. Pour  $p > p^*$ , en plus de l'incertitude des facteurs géométriques, il y a également une incertitude sur la valeur du gradient thermique transverse  $\Delta T_y$  qui est prise en compte. Puisque ce signal est inférieur à 0.3 mK autour de zéro pour ces points, l'incertitude étant aussi grande que la mesure, elle peut faire varier drastiquement l'amplitude du ratio et même son signe. On peut se référer à l'annexe B pour une explication plus poussée des incertitudes. On peut également tracer le même graphique, mais en fonction de la conductivité électrique (figure 3.9).

### 3.1. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX



**FIGURE 3.8** Effet Hall thermique phononique divisé par la conductivité thermique phononique à 20 K et 15 T en fonction du dopage. Le "degré de chiralité" devient nul à l'extérieur de la phase pseudogap ( $p^* > 0.23$ ). Les barres d'erreur pour les points à 20 K sont calculées à l'annexe B. La variation en température est montrée à  $T = 15$  et 25 K à l'aide de triangles. Finalement, les deux premiers points LCO à  $p = 0$  sont séparés en dopage pour faciliter la lecture.



**FIGURE 3.9** Effet Hall thermique phononique divisé par la conductivité thermique phononique à 20 K et 15 T en fonction de la conductivité électrique selon l'axe a. Même notation que la figure 3.8.

## 3.2 Mécanismes conférant une chiralité aux phonons

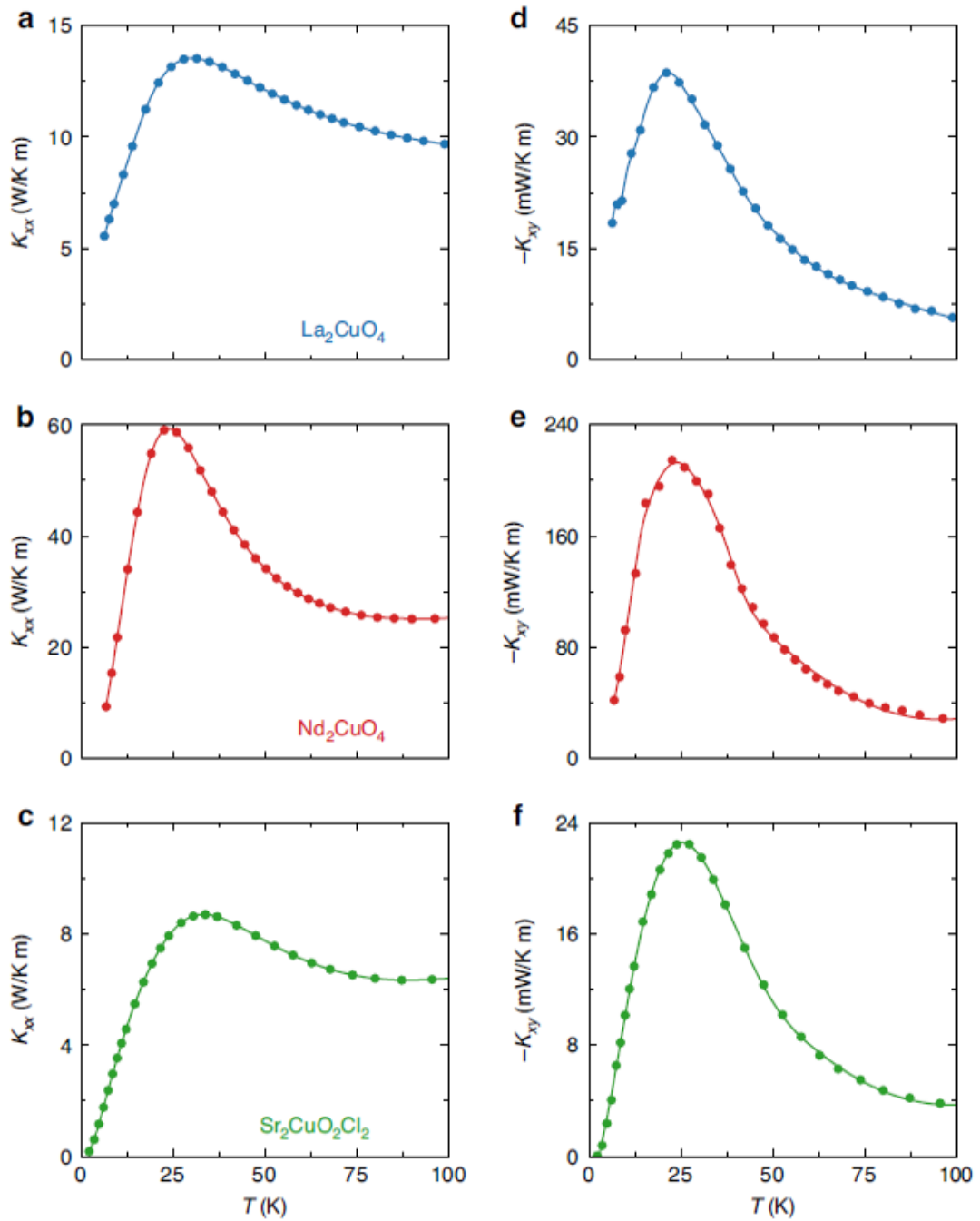
---

Les observations expérimentales que nous avons réalisées nous poussent à croire que les phonons deviennent chiraux dans la phase pseudogap des cuprates. Cependant, le mécanisme qui permet aux phonons de se coupler avec le champ magnétique est toutefois encore à déterminer. Après avoir répondu à une question, nous en soulevons plusieurs autres, cette section se veut donc une révision de plusieurs modèles proposés dont nous pouvons discuter les mérites suivant nos propres résultats. Ces hypothèses ont également été abordées dans le premier chapitre, dans la section 1.3 sur l'effet Hall thermique dans la littérature.

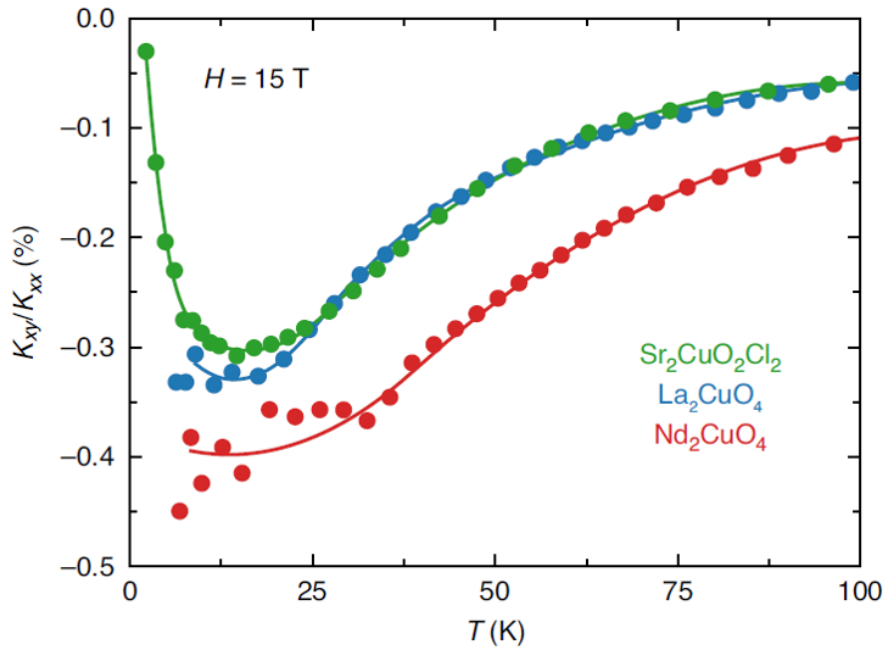
### 3.2.1 Impuretés magnétiques

Commençons tout d'abord par la diffusion des phonons sur des atomes magnétiques. Il s'agit du mécanisme qui a été proposé pour expliquer l'effet Hall thermique phononique dans le grenat  $Tb_3Gd_5O_{12}$  [19][18]. Dans ce grenat, les phonons sont déviés de manière préférentielle suivant leur diffusion sur les ions de terbium qui sont eux-mêmes influencés par le champ magnétique. Nos cuprates étant constitués en partie de terres rares (néodyme, europium et lanthane), ce mécanisme pourrait être à l'oeuvre sur les impuretés magnétiques de néodyme. Il faut toutefois se souvenir que les valeurs d'amplitudes du signal d'effet Hall thermique observé entre le Nd-LSCO et le Eu-LSCO (figure 3.6), ainsi que le degré de chiralité sont très similaires (figure 3.8), pourtant, si le néodyme est magnétique, l'europium ne l'est pas. Si le couplage entre les phonons et les impuretés magnétiques était responsable de la chiralité des phonons, on devrait s'attendre à avoir un signal plus fort dans le cuprate contenant ses ions magnétiques. De plus, puisqu'il y a une quantité similaire d'impuretés des deux côtés du pseudogap dans les échantillons de  $p = 0.21$  et  $p = 0.24$ , pourquoi est-ce que ce signal n'est visible que dans l'un des échantillons ? Pour en être certain, un autre membre du groupe, Marie-Ève Boulanger a menée une étude sur trois cuprates isolants de Mott, le  $La_2CuO_4$ , le  $Nd_2CuO_4$  et le  $Sr_2CuO_2Cl_2$ . Les résultats de ses mesures de conductivité thermique et d'effet Hall thermique sont présentés à la figure 3.10 et le degré de chiralité à la figure 3.11. On y voit que malgré les différences d'amplitudes dans les mesures de la figure 3.10, le ratio reste constant. **Malgré un changement d'ions (Sr-Nd-Eu-La), le degré de chiralité ne semble pas affecté. Également, puisqu'il n'y a pas de changement notable d'impuretés magnétiques entre  $p = 0.21$  et  $p = 0.24$ , le mécanisme invoqué pour  $Tb_3Gd_5O_{12}$  (atomes magnétiques) ne s'applique pas aux cuprates et ne peut donc pas être responsable de la chiralité des phonons dans la phase pseudogap.**

### 3.2. MÉCANISMES CONFÉRANT UNE CHIRALITÉ AUX PHONONS



**FIGURE 3.10** Conductivité thermique  $\kappa_{xx}$  dans le a)  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , b) le  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  et c) le  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  en fonction de la température. Effet Hall thermique pour les échantillons correspondants en d), e) et f). On remarque que les pics de conductivité thermique et d'effet Hall thermique sont tous environ aux mêmes températures ( $\sim 25$  K), reliant la conductivité thermique des phonons à l'effet Hall thermique phononique. Tiré de [35].



**FIGURE 3.11** Le degré de chiralité  $\kappa_{xy}/\kappa_{xx}$ , soit le ratio entre la conductivité thermique de Hall et la conductivité thermique, dans le  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , le  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  et le  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  en fonction de la température. On remarque que malgré les différents ions dans le matériau et les différentes amplitudes dans les mesures présentées à la figure 3.10, le ratio reste environ le même pour ces trois isolants de Mott. Tiré de [35].

### 3.2.2 Domaines structuraux

Une autre hypothèse méritant d'être abordée ici voudrait que l'origine de la chiralité soit due à la présence de domaines structuraux. Lors du refroidissement d'un échantillon sous une température de changement de phase, des domaines antiferrodistortifs se créeraient spontanément dans le matériau. Des phonons pourraient ensuite être diffusés sur les frontières de ces domaines de manière préférentielle lorsqu'un champ magnétique est appliqué créant le signal d'effet Hall thermique observé. Ce ne serait pas le premier matériau dont l'effet Hall thermique pourrait être expliqué par des domaines structuraux, puisque ce mécanisme a été proposé par le groupe de K. Behnia de l'ESPCI pour expliquer l'effet Hall thermique observé dans le titanate de strontium ( $\text{SrTiO}_3$ ) qui fait intervenir les effets de frontières de domaines structuraux [20]. Selon eux, c'est ce qui expliquerait pourquoi le signal  $\kappa_{xy}$  dans le  $\text{SrTiO}_3$  est 30 fois plus élevé que celui dans le  $\text{KTaO}_3$ , visible à la figure 1.9. Le  $\text{SrTiO}_3$  entre en effet dans une phase structurale antiferrodistortive sous 105 K, alors que le  $\text{KTaO}_3$  demeure cubique. Ce raisonnement est fondé sur le fait que l'amplitude de l'effet Hall thermique mesurée à une même température est différente après chaque cycle

### 3.2. MÉCANISMES CONFÉRANT UNE CHIRALITÉ AUX PHONONS

---

de réchauffement et refroidissement (figure 1.10).

Le Nd-LSCO  $p = 0.21$  axe  $c$ , où le signal phononique est observé, possède en effet des transitions de phase structurales, passant d'une phase orthorhombique de basse température (LTO1) à une phase tétragonale de basse température (LTT) lorsque la température est abaissée. Ce changement de phase produit une rotation des tétraèdres de cuivre-oxygène de la structure cristalline du Nd-LSCO, similairement à la rotation des tétraèdres de titane-oxygène du SrTiO<sub>3</sub>. Puisqu'il y a un changement de phase, il y a également des domaines structuraux dans le Nd-LSCO. Le problème avec cette hypothèse est qu'il en va de même pour le Nd-LSCO  $p = 0.24$  axe  $a$ . On peut en effet voir dans le diagramme de phase de la figure 3.12 regroupant des mesures de diffraction de neutrons et de rayons x du groupe de B. Gaulin de McMaster que ces deux dopages sont situés dans la même phase LTT[33] qui se termine à  $p = 0.26$ . Si les domaines structuraux associés à cette phase étaient responsables du signal observé dans l'effet Hall thermique de l'échantillon à  $p = 0.21$ , pourquoi est-ce qu'il n'est pas observé dans l'échantillon possédant les mêmes domaines structuraux à  $p = 0.24$  ? De plus, le signal d'effet Hall thermique est observé dans la phase LTO1 à des températures plus hautes que la transition vers la zone LTT ( $T \sim 60$  K pour  $p = 0.21$ ) et dans la phase LTO2 dans l'isolant de Mott à  $p = 0$ . Il est également important de noter qu'il n'y a pas de domaines structuraux dans les isolants de Mott NCO et SCOC présentés à la figure 3.11, mais un important signal d'effet Hall thermique est observé dans ces deux matériaux. Finalement, le signal observé est reproductible sans variations importantes sur plusieurs cycles thermiques [35]. **Les domaines structuraux associés avec cette phase structurale étant les mêmes aux dopages  $p = 0.21$  et  $p = 0.24$ , et n'étant pas présents dans NCO et SCOC, ils ne peuvent donc pas être à l'origine de la chiralité des phonons observée dans les échantillons à l'intérieur de la phase pseudogap.**

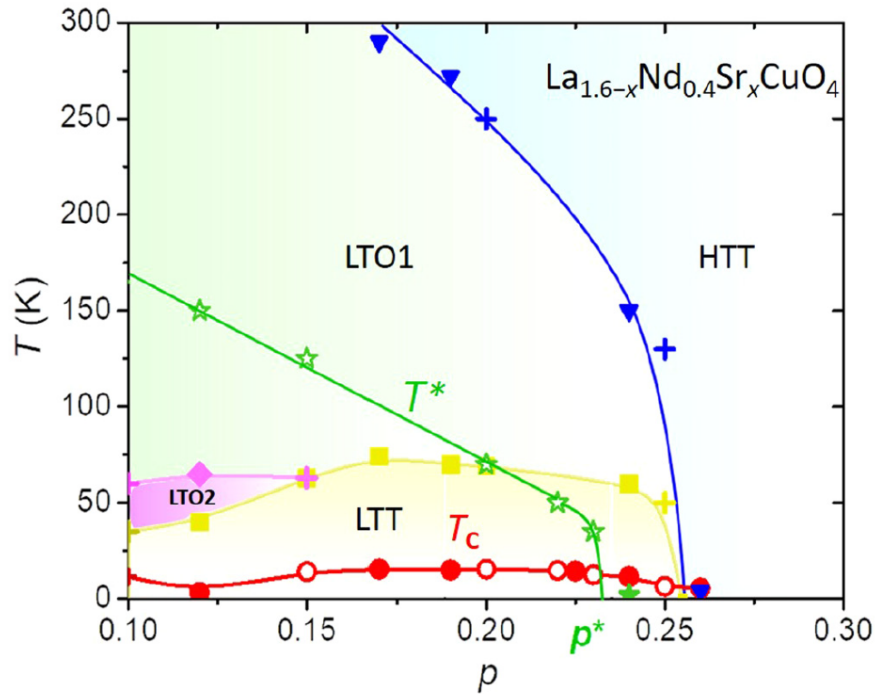


FIGURE 3.12 Diagramme de phases structurales pour le Nd-LSCO obtenu du groupe de B. Gaulin [33] en fonction du dopage et de la température. On y voit que les échantillons à dopage  $p = 0.21$  et  $0.24$  sont dans la même phase à basse température malgré leur signal  $\kappa_{ny}$  complètement différent.

Dans le même ordre d'idée que les domaines structuraux, on peut rapidement se pencher sur le cas de l'ordre de densité de charge. Cette phase qui brise la symétrie par translation et rotation est située à l'intérieur de la phase pseudogap et possède comme caractéristique le déplacement des charges sur les atomes d'oxygène pour former des structures ordonnées en forme de bandes. Cet ordre de charge a été relié à une diminution de la température critique du dôme supraconducteur [36]. Il a donc été observé que cette phase peut influencer d'autres propriétés des cuprates, il est donc possible que cette phase ait une influence sur notre mesure d'effet Hall thermique.

D'une autre part, il a été observé par le groupe de D. Hawthorn de Waterloo à la figure 3.13 que l'ordre de charge disparaît à un dopage supérieur à  $p = 0.17$ , ou tout du moins n'est pas présent pour des températures au-dessus de  $\sim 22$  K et n'est pas présent dans l'isolant de Mott. **La phase d'ordre de charge n'étant pas présente pour les dopages où un signal d'effet Hall thermique a été observé ( $p = 0$  et  $0.21$ ), cette phase ne peut être à l'origine de la chiralité des phonons.**

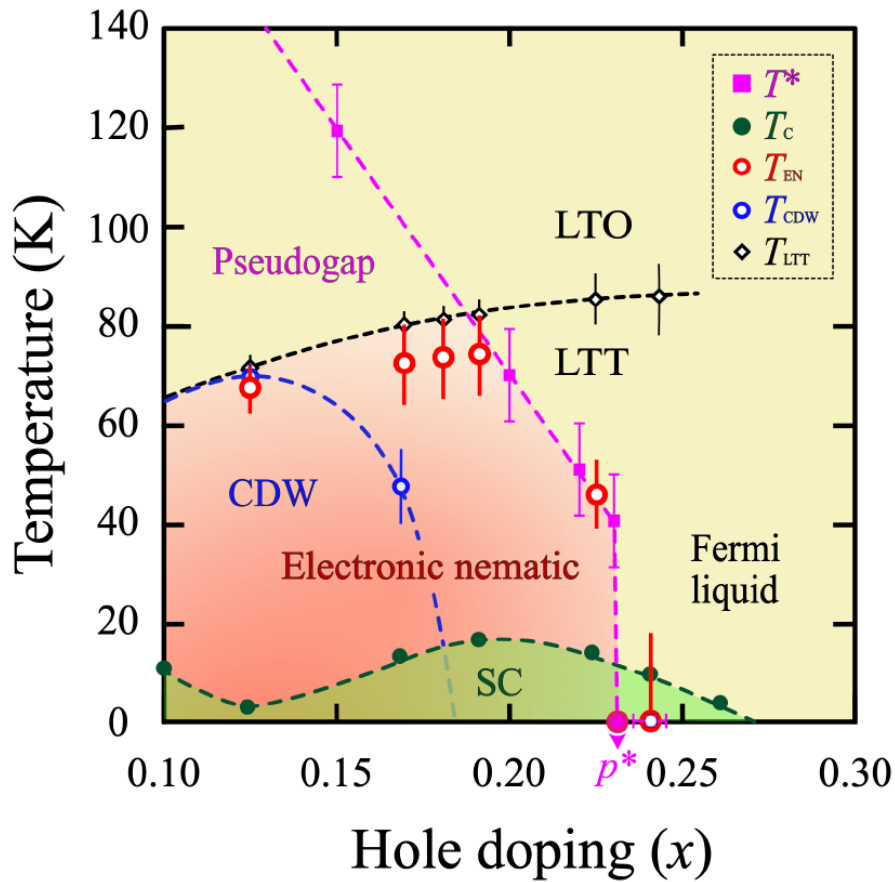


FIGURE 3.13 Diagramme de phases pour le Nd-LSCO obtenu du groupe Hawthorn [37] en fonction du dopage et de la température. On y voit que l'ordre de charge disparaît à  $p > 0.17$ , malgré le signal d'effet Hall thermique phononique persistant jusqu'à  $p^* = 0.23$ .

### 3.2.3 Impuretés d'oxygène

Du même ordre d'idée que les impuretés magnétiques, nous pouvons nous pencher sur l'hypothèse que ce signal négatif dans l'effet Hall thermique pourrait être dû à des impuretés d'oxygène. Selon cette théorie, il pourrait y avoir des défauts dans la structure de nos cristaux, plus spécifiquement l'absence de certains atomes d'oxygène dans les plans  $\text{CuO}_2$  et dans ces emplacements libres légèrement plus positifs que le reste du cristal ferait office de diffuseurs pour les phonons [21]. La figure 1.11 représente une telle diffusion. Le problème avec cette théorie est que les dopages au-dessus de  $p^*$  ont également ces impuretés et dans les mêmes proportions. Il ne devrait à priori pas y avoir de différence entre ces deux dopages s'il s'agissait du mécanisme responsable de notre signal. Il est également à noter que le  $\text{SrTiO}_3$  et le  $\text{KTaO}_3$  ont tous deux de l'oxygène alors que le  $\text{KTaO}_3$  ne démontre



### 3.2. MÉCANISMES CONFÉRANT UNE CHIRALITÉ AUX PHONONS

---

pas de signal fortement négatif. **Les niveaux d'impuretés d'oxygène étant les mêmes entre  $p = 0.21$  et  $p = 0.24$ , il ne peut s'agir du mécanisme conférant une chiralité aux phonons dans la phase pseudogap des cuprates.**

#### 3.2.4 Autres

Nous avons ici éliminé plusieurs possibilités pour expliquer l'origine de notre signal, mais il reste encore la catégorie "autres". Dans cette catégorie il y a bien évidemment tout ce qui n'a pas été mentionné, voire pensé. Une chose qui peut être dite sur ce mécanisme est que selon nous, il doit être intrinsèque. On veut dire ici qu'il s'agit d'une propriété reliée à la structure électronique dans le cristal parfait sans impuretés, contrairement à des mécanismes extrinsèques dont l'origine porte sur la présence d'impuretés ou de défauts dans le système. Cette conclusion vient de la similarité des impuretés entre les dopages à  $p = 0.21$  et  $p = 0.24$  tel que discuté précédemment.

Il est également à noter que si les électrons, magnons et autres excitations exotiques ont été éliminés des porteurs de charges, ils pourraient tout de même être indirectement reliés à la chiralité des phonons avec, par exemple, des interactions antiferromagnétiques à courtes portées.

Au final, le mécanisme qui est à l'oeuvre devrait pouvoir répondre à plusieurs points. Tout d'abord pouvoir reproduire un signal négatif dans l'effet Hall thermique, et ce, de l'isolant de Mott jusqu'à  $p^*$ . Ce mécanisme doit également expliquer pourquoi le signal disparaît à des dopages plus élevés ( $p > p^*$ ) dans le Nd-LSCO et le Eu-LSCO et pourquoi le degré de chiralité reste le même dans toute la phase pseudogap tout en étant reproductible pour plusieurs cycles thermiques. Finalement, ce mécanisme doit pouvoir s'appliquer autant dans l'axe  $a$  que l'axe  $c$ .

## Conclusion

Dans le but de déterminer les porteurs de chaleur responsables de l'effet Hall thermique négatif observé dans la phase pseudogap des cuprates, nous avons mesuré l'effet Hall thermique dans des échantillons où le courant de chaleur est perpendiculaire aux plans, soit parallèle à l'axe  $c$ . Puisque seuls les phonons sont aussi mobiles hors plan que dans le plan et que nos mesures montrent un effet Hall thermique à peu près isotrope selon les deux directions, nous en concluons que les phonons sont les porteurs de chaleur dans la phase pseudogap des cuprates responsable de l'effet Hall thermique.

Pour être responsable de ce signal, il faut toutefois qu'un mécanisme conférant une chiralité, la capacité d'interagir avec le champ magnétique, aux phonons soit à l'oeuvre. Nous avons donc revu les scénarios impliquant des impuretés magnétiques, ou des domaines structuraux, ou des impuretés d'oxygène. Puisque changer les ions magnétiques dans un échantillon ne change pas l'amplitude du signal et que ces impuretés sont autant présentes en dehors du pseudogap, nous en concluons que ce ne peut être en effet des impuretés magnétiques. Puisque le signal négatif de l'effet Hall thermique est observé dans un échantillon dans le pseudogap, mais pas dans un échantillon à un dopage plus élevé en dehors du pseudogap, mais toujours dans la même phase structurale et qu'en plus le signal ne varie pas d'un cycle thermique à l'autre, nous en concluons que les domaines structuraux ne sont pas à l'oeuvre ici. Puisque les impuretés d'oxygène sont autant présentes dans la phase pseudogap qu'en dehors de celle-ci, ce mécanisme ne parvient pas à expliquer nos observations expérimentales et n'est donc pas responsable du signal mesuré.

Au final, le mécanisme conférant une chiralité aux phonons dans la phase pseudogap demeure inconnu, mais nos mesures expérimentales ont permis d'exclure les trois mentionnées plus haut. Un plus grand nombre de mesures à des dopages plus élevés et sur un plus grand nombre de cuprates différents conjointement avec des discussions avec des partenaires théoriciens parviendront sûrement à expliquer ce phénomène dans le futur.

## Annexe A

# Compendium des mesures expérimentales

Comme il a été mentionné au chapitre 3, beaucoup de mesures ont été prises durant cette maîtrise et afficher tout les graphiques qui en découlent et les comparaisons qui en suivent prendraient trop d'espace et pourrait confondre le lecteur des conclusions. Seront donc réunies ici les figures les plus importantes tirées des mesures.

Commençons par faire une liste (ou plusieurs) de toutes les mesures qui ont été prises durant cette maîtrise, ainsi que les mesures connexes ou utilisées. On rappelle au lecteur que pour effectuer une mesure de  $\kappa_{zy}$ , il faut corriger le signal en se servant de  $\kappa_{xy}$  et donc utiliser une mesure d'un échantillon d'axe  $a$ . Les tables A.1, A.2 et A.3 offrent un résumé de ces mesures.

La majeure partie de ces mesures sont électriques en nature et concernent des échantillons de Nd-LSCO ou de LSCO, mais il y a également quelques échantillons de Eu-LSCO,  $\text{Cu}_3\text{TeO}_6$  et un échantillon de BEDT qui fut la première et unique mesure effectuée dans un frigo à dilution et avec un composé organique durant cette maîtrise.

On note également que plusieurs échantillons étaient prévus pour des mesures thermiques, mais en raison de contraintes de temps et n'étant pas le seul étudiant dans le groupe, ces mesures ont dû être repoussées jusqu'à une date indéterminée. Toutes ces mesures ont été effectuées en collaboration avec au moins un autre membre du groupe. La convention pour la dénomination des échantillons à partir de 2018 est d'utiliser les deux derniers chiffres de l'année en cours et ceux du mois suivi d'une lettre pour indiquer quel échantillon fut coupé en premier. Deux échantillons créés durant janvier 2021 vont donc se nommer 2101A et 2101B.

| Matériau | Dopage | Nom    | Axe     | $\rho_{nn}$ | $\rho_{ny}$ | $\kappa_{nn}$ | $\kappa_{ny}$ | Supplémentaire |
|----------|--------|--------|---------|-------------|-------------|---------------|---------------|----------------|
| Nd-LSCO  | 0.07   | 2001A  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.12   | 2002B  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | VSM            |
| Nd-LSCO  | 0.12   | 2002C  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | VSM            |
| Nd-LSCO  | 0.17   | 1910D  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.19   | 1907A  | axe $a$ | ✓           | x           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.19   | 1907B  | axe $a$ | ✓           | x           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.21   | -      | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.21   | -      | axe $c$ | *           | *           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.22   | -      | axe $a$ | *           | *           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.22   | 1808A  | axe $c$ | ✓           | ≈           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.23   | n666   | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.23   | 1808A  | axe $c$ | ✓           | x           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.24   | -      | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.24   | (0p25) | axe $c$ | ✓           | ≈           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.24   | 1910A  | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | Mauvais        |
| Nd-LSCO  | 0.24   | 1910B  | axe $c$ | ✓           | ✓           | x             | x             | Mauvais        |
| Nd-LSCO  | 0.24   | Twin   | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | Dilatométrie   |
| Nd-LSCO  | 0.26   | 2002A1 | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | VSM            |
| Nd-LSCO  | 0.26   | 2002C  | axe $c$ | ✓           | x           | ✓             | ✓             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.28   | 2001A  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.28   | 2001B  | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -              |
| Nd-LSCO  | 0.28   | Mother | axe $a$ | x           | x           | x             | x             | VSM            |

**TABLE A.1** Table des mesures de transport effectuées (vert) ou utilisées (noir) durant la maîtrise. C'est-à-dire résistivité, effet Hall, conductivité thermique longitudinale et transverse. Les 'x', '≈', '✓' et '\*' représentent respectivement les mesures qui sont absentes, sont partiellement terminées, complètes et celles qui ont été complétées sur un échantillon qui n'est plus disponible.

| Matériau | Dopage | Nom      | Axe     | $\rho_{nn}$ | $\rho_{ny}$ | $\kappa_{nn}$ | $\kappa_{ny}$ | Supplémentaire    |
|----------|--------|----------|---------|-------------|-------------|---------------|---------------|-------------------|
| Eu-LSCO  | 0.08   | -        | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | Caractérisation   |
| Eu-LSCO  | 0.125  | 1902A    | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | Seebeck           |
| Eu-LSCO  | 0.21   | -        | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| Eu-LSCO  | 0.21   | -        | axe $a$ | *           | *           | x             | x             | Seebeck           |
| Eu-LSCO  | 0.21   | 1912A    | axe $c$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | Seebeck           |
| Eu-LSCO  | 0.24   | -        | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| Eu-LSCO  | 0.24   | 1810A    | axe $c$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | Seebeck           |
| LSCO     | 0.06   | -        | axe $a$ | ✓           | *           | ✓             | ✓             | Caractérisation   |
| LSCO     | 0.16   | 2002B    | axe $c$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -                 |
| LSCO     | 0.16   | 2003A    | axe $a$ | ✓           | ✓           | x             | x             | -                 |
| LSCO     | 0.19   | 2003A    | axe $a$ | ✓           | ✓           | ≈             | ≈             | -                 |
| LSCO     | 0.19   | 2002B    | axe $c$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.21   | Z0917    | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.21   | 1910A    | axe $c$ | ✓           | ≈           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.24   | 2003A    | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.24   | 2003A    | axe $c$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.24   | 2102AOno | axe $c$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | thermique axe $a$ |
| LSCO     | 0.24   | 2102BOno | axe $a$ | ✓           | ✓           | ✓             | ✓             | -                 |
| LSCO     | 0.27   | B        | axe $a$ | ≈           | ≈           | x             | x             | Brisé             |
| LCO      | 0      | -        | axe $a$ | x           | x           | ✓             | ✓             | -                 |
| LCO      | 0      | 1909A    | axe $c$ | x           | x           | ✓             | ✓             | -                 |

**TABLE A.2** Table des mesures de transport effectuées (vert) ou utilisées (noir) durant la maîtrise. C'est-à-dire résistivité, effet Hall, conductivité thermique longitudinale et effet Hall thermique. Les 'x', '≈', '✓' et '\*' représentent respectivement les mesures qui sont absentes, sont partiellement terminées, complètes et celles qui ont été complétées sur un échantillon qui n'est plus disponible.

| Matériau                         | Dopage | Nom   | Axe     | $\rho_{nn}$ | $\rho_{ny}$ | $\kappa_{nn}$ | $\kappa_{ny}$ | Supplémentaire  |
|----------------------------------|--------|-------|---------|-------------|-------------|---------------|---------------|-----------------|
| Cu <sub>3</sub> TeO <sub>6</sub> | 0      | 2101A | cubique | x           | x           | ✓             | ✓             | Caractérisation |
| Cu <sub>3</sub> TeO <sub>6</sub> | 0      | 2101B | cubique | x           | x           | ✓             | ✓             | Caractérisation |
| BEDT                             | 0      | 2101B | plan    | x           | x           | ✓             | ✓             | -               |

**TABLE A.3** Table des mesures de transport effectuées (vert) ou utilisées (noir) durant la maîtrise. C'est-à-dire résistivité, effet Hall, conductivité thermique longitudinale et effet Hall thermique. Les '✓' représentent les mesures qui ont été complétées.

Bien que la plupart des mesures ont pour objectif de déterminer les propriétés des échantillons, certains échantillons ont servi à faire des tests sur les mesures elles-mêmes dans une expérience toujours en cours pour déterminer la variabilité de la mesure de  $\kappa_{xy}$  lorsque l'on déplace la position et configuration des contacts. Ces échantillons sont ceux ayant la mention "Caractérisation" dans la colonne supplémentaire. C'est pour cette raison que deux échantillons de Cu<sub>3</sub>TeO<sub>6</sub> ont été mesurés. Le BEDT a été mesuré durant la période de formation de cette maîtrise, soit à l'été 2019.

Lorsque l'on prend des mesures, on se sert des données pour tracer plusieurs graphiques et obtenir le plus d'information possible. Les mesures de résistivité  $\rho_{xx}$  se limitent habituellement à la résistivité en fonction de la température, mais on peut également tracer la résistivité moins la résistivité résiduelle à 0 K,  $\rho_{xx} - \rho_0$ . Il y a également la magnétorésistance où la température est fixe et le champ magnétique modifié. Lors de mesure de résistivité transverse, on ne trace habituellement que le coefficient de Hall  $R_H$ , mais on peut également tracer  $\rho_{xy}$ . Pour ce qui est des mesures thermiques, en plus de  $\kappa_{xx}$  et  $\kappa_{xy}$ , nous traçons  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\kappa_{xy}/\kappa_{xx}$ ,  $\Delta T_x$ ,  $\Delta T_x/T$ ,  $T_{av} - T_0/\Delta T_x$ , ainsi que la température des thermomètres  $T^+$  et  $T^-$  vs  $T$ . Parfois, on trace également les enregistrements des mesures brutes "log" pour identifier des problèmes de prise de mesure. La plupart de ces graphiques ne servent que pour des fins de diagnostic et s'assurer que la mesure est bonne, ci-dessous ne sera donc présenté que  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ , ainsi que leur contrepartie dans l'axe  $c$ .

Toutes les mesures thermiques présentées ci-bas contiennent des guides pour les yeux, soient des lignes pleines au travers des données. Les mesures électriques par contre ne contiennent que les points de mesure pris en continu.

### Nd-LSCO.0.21.axe.a

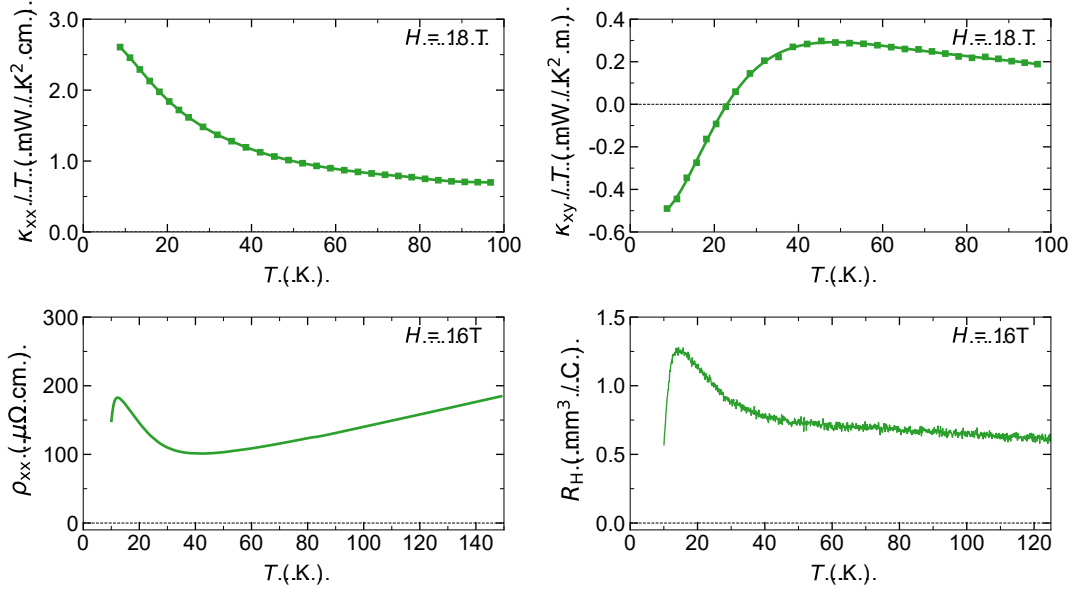


FIGURE A.1  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### Nd-LSCO.0.21.axe.c

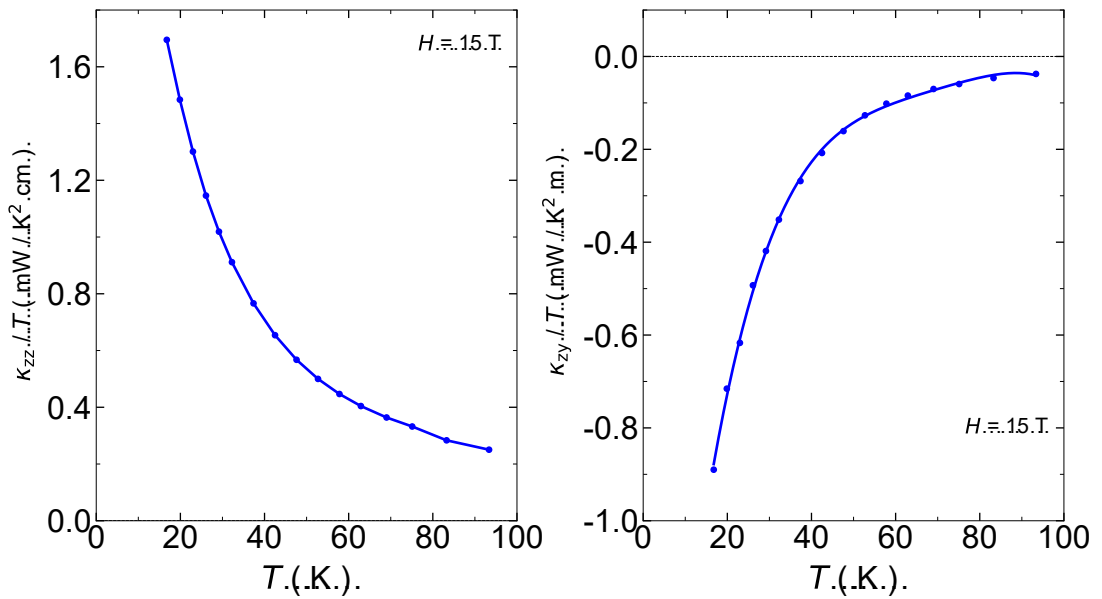


FIGURE A.2  $\kappa_{zz}/T$  et  $\kappa_{zy}/T$ .

### Nd-LSCO.0.22.axe.a

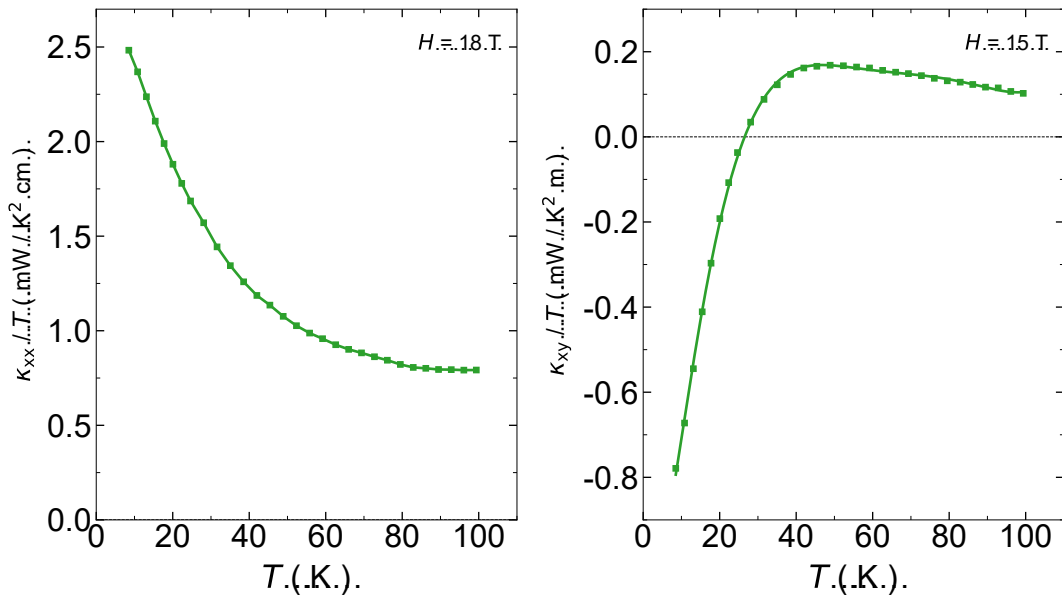


FIGURE A.3  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$

### Nd-LSCO.0.22.1808A.axe.c.

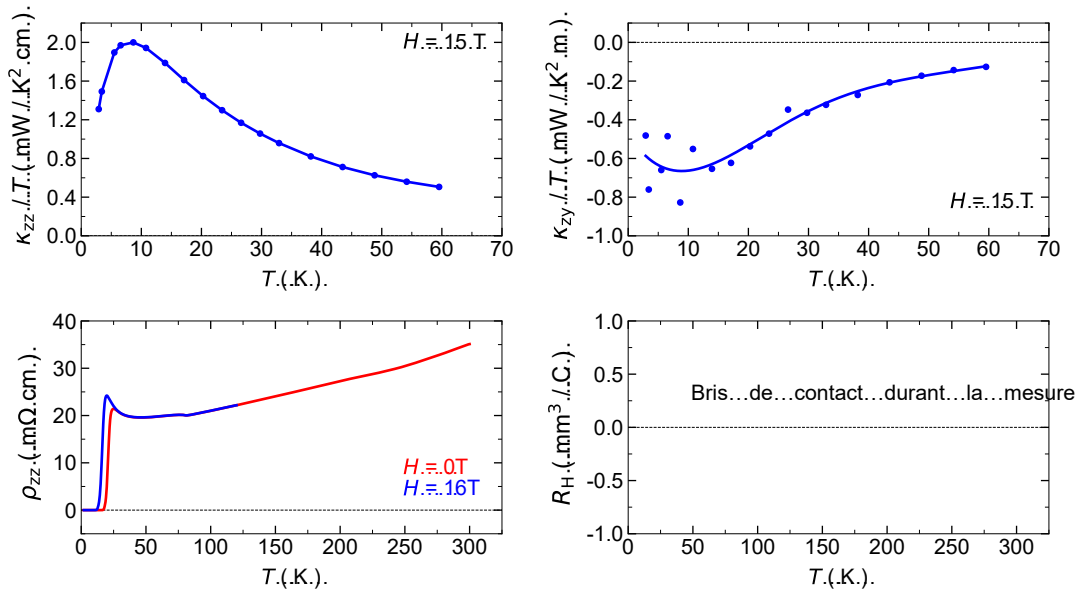


FIGURE A.4  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$  et  $\rho_{zz}$ .



### Nd-LSCO.0.23.n666.axe.a

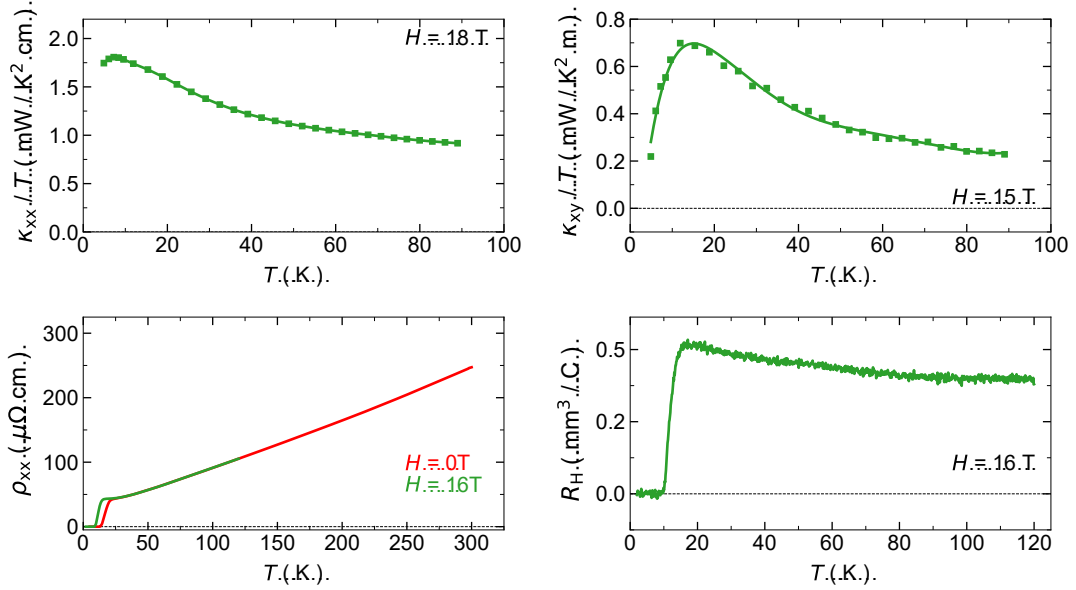


FIGURE A.5  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### Nd-LSCO.0.23.1808A.axe.c

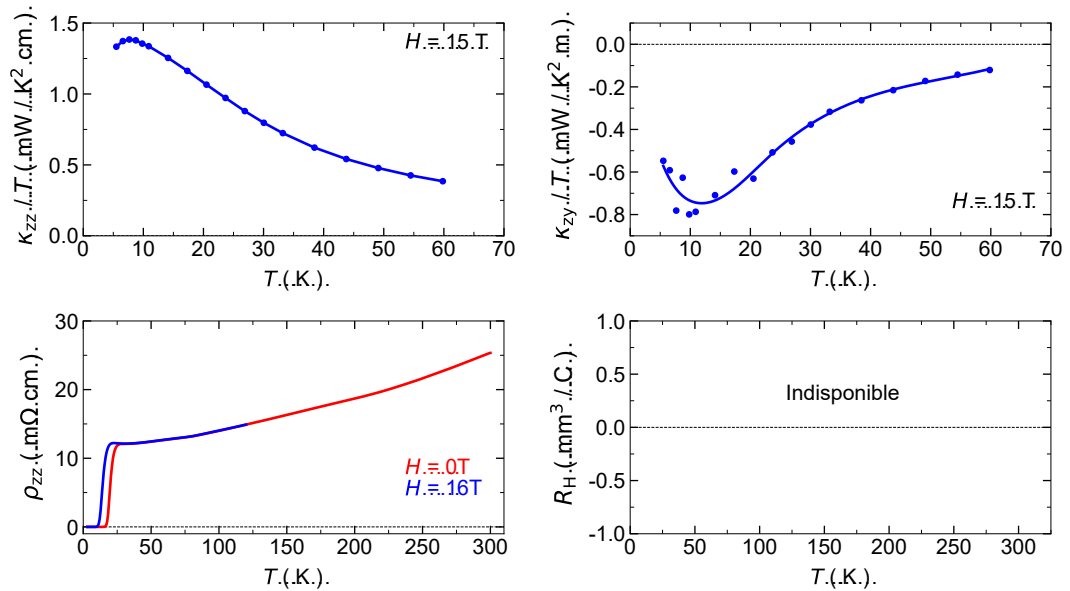


FIGURE A.6  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$  et  $\rho_{zz}$ .

### Nd-LSCO 0.24 axe a

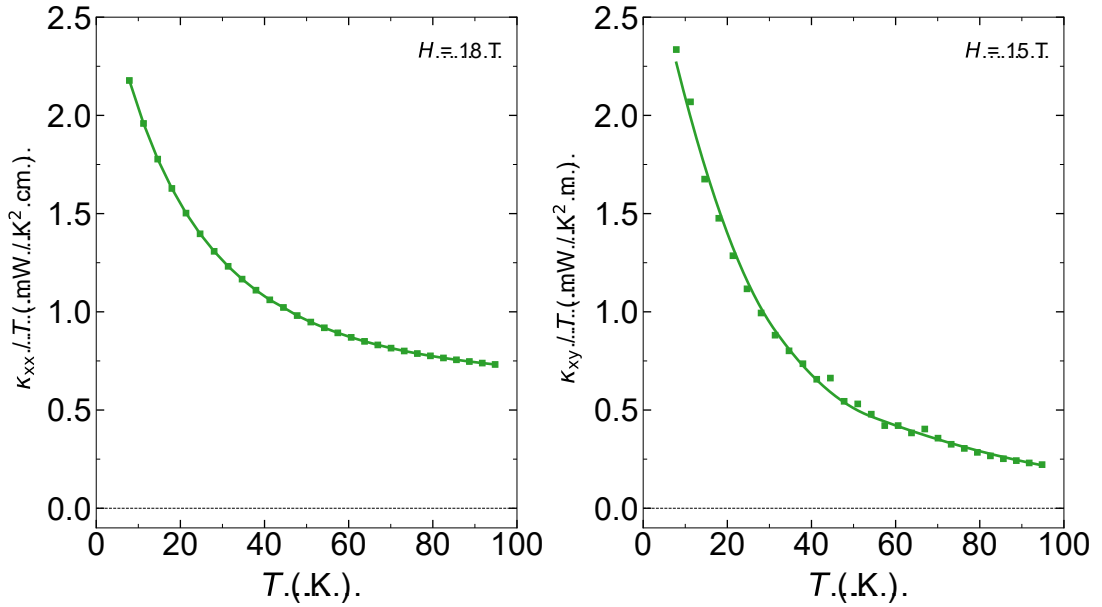


FIGURE A.7  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### Nd-LSCO 0.24 (0p25) axe c

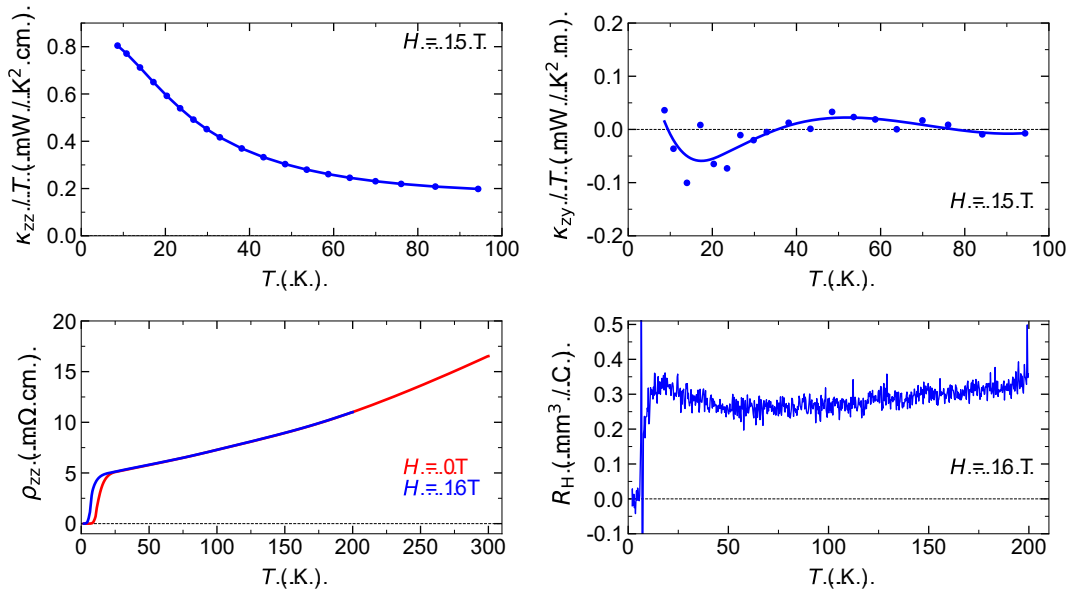


FIGURE A.8  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .

### Nd-LSCO.0.26.2002A.axe.a

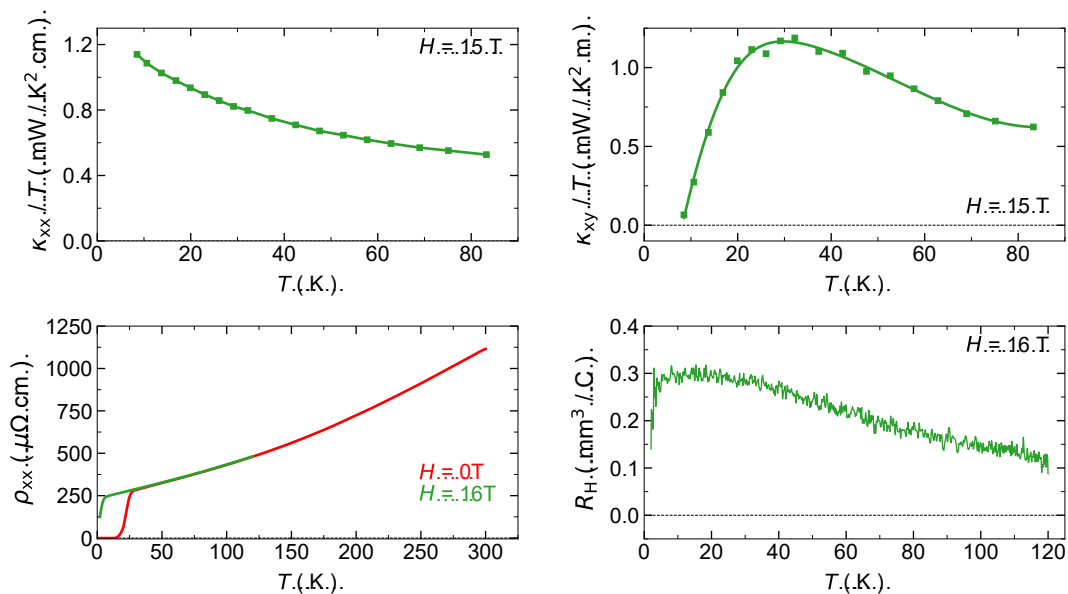


FIGURE A.9  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### Nd-LSCO.0.26.2002C.axe.c

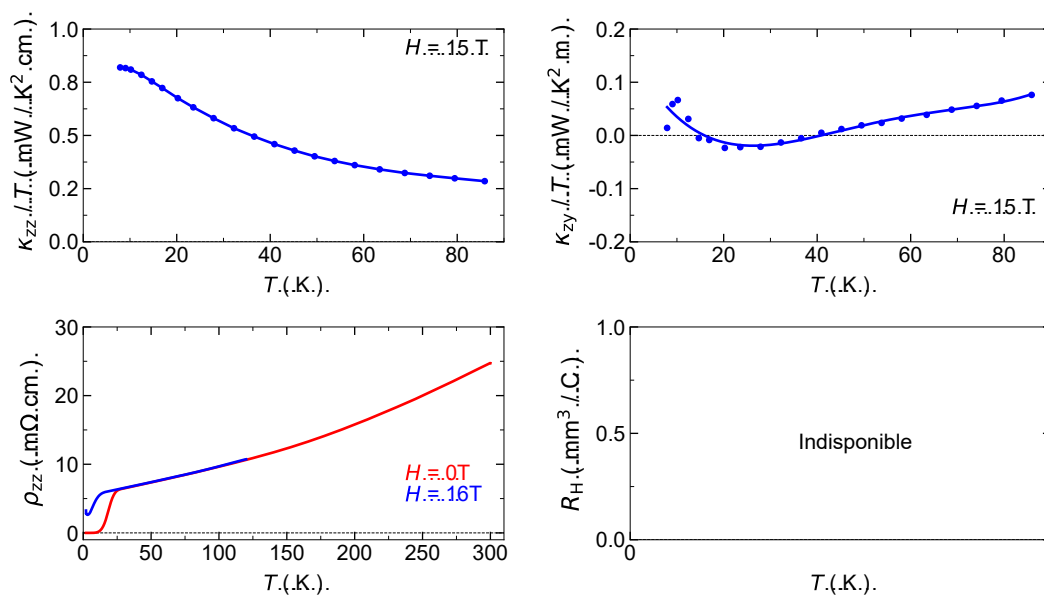


FIGURE A.10  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$  et  $\rho_{zz}$ .

### Eu-LSCO.0.21.axe.a

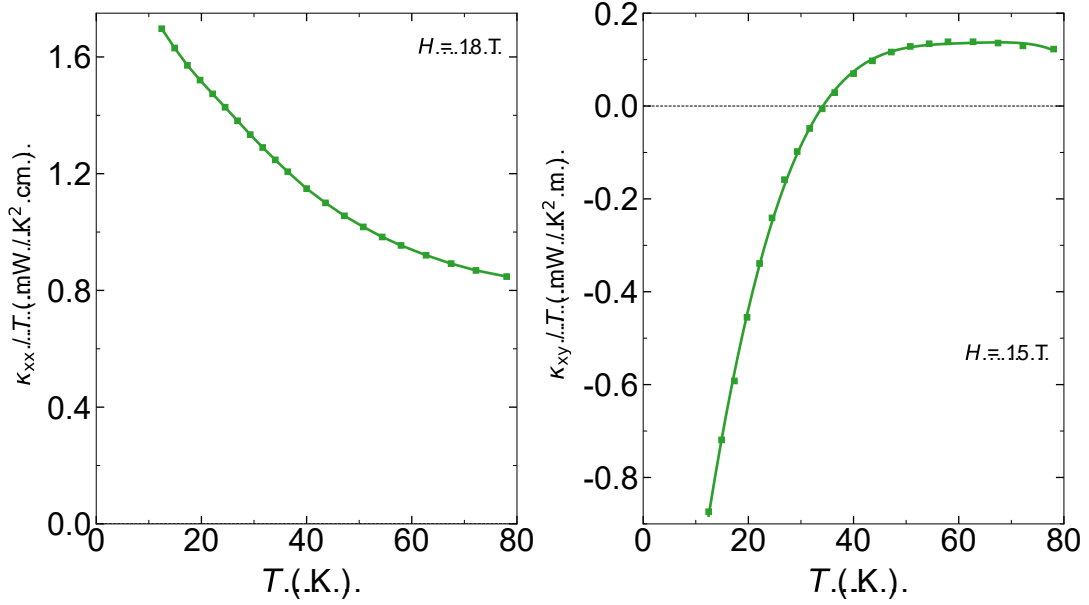


FIGURE A.11  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### Eu-LSCO.0.21.1912A.axe.c

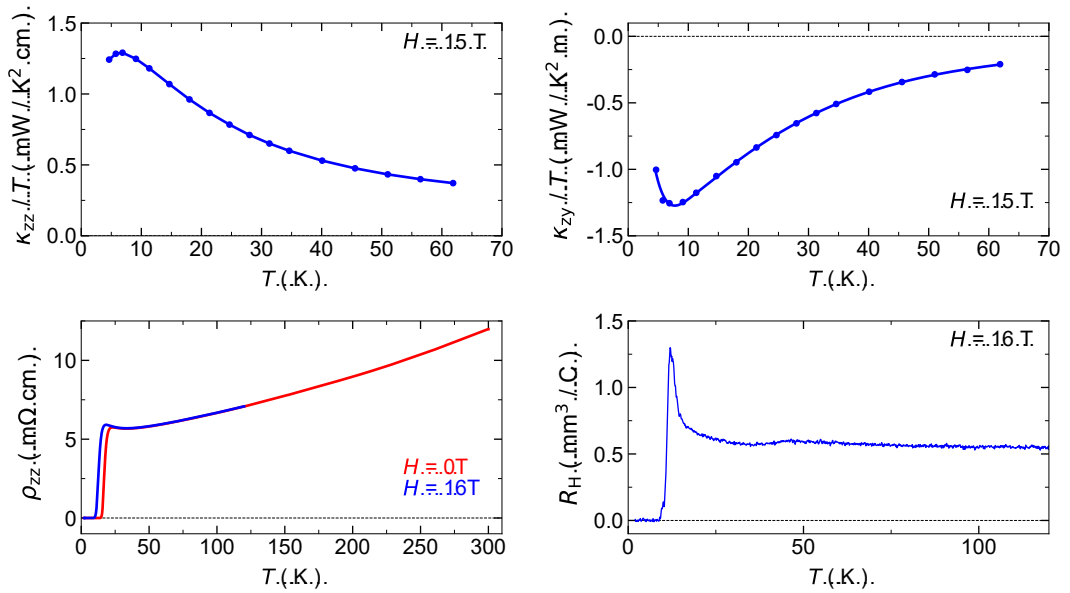


FIGURE A.12  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .

### Eu-LSCO.0.24.axe.a

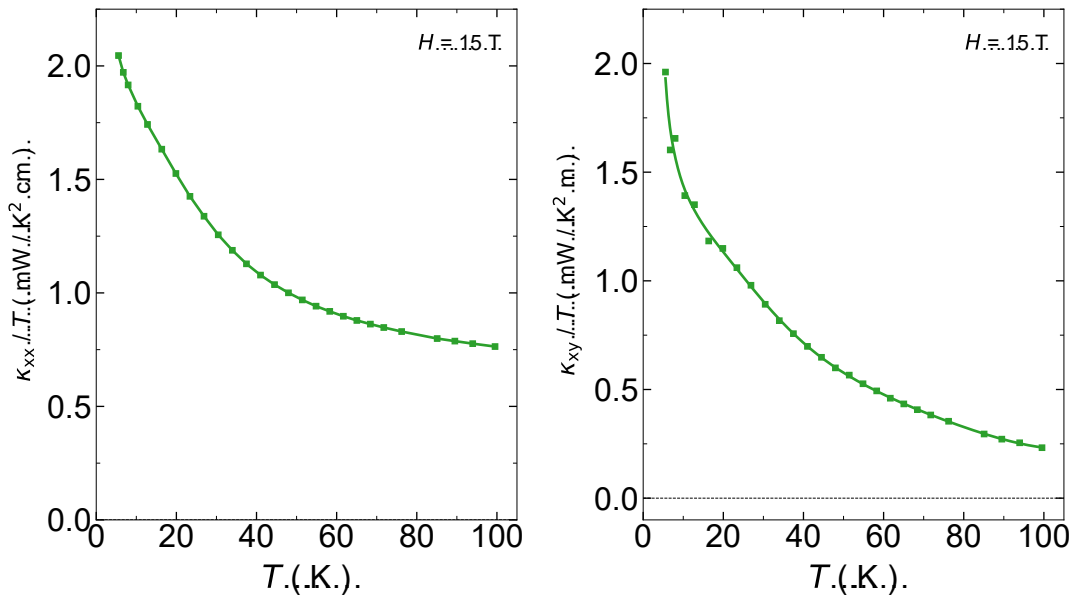


FIGURE A.13  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### Eu-LSCO.0.24.1810A.axe.c

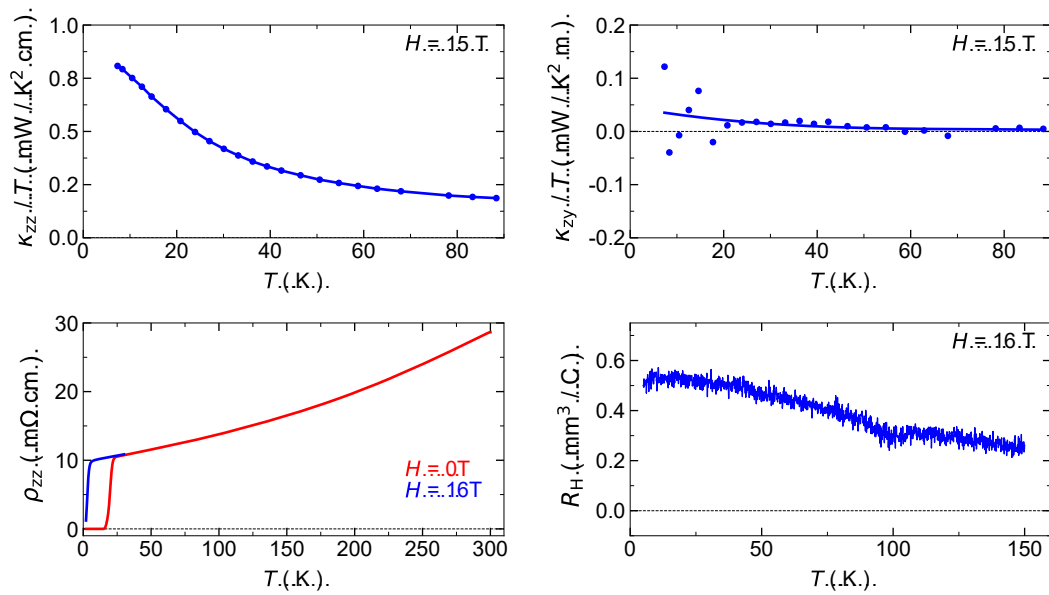


FIGURE A.14  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .

### Eu-LSCO.0.08.axe.a

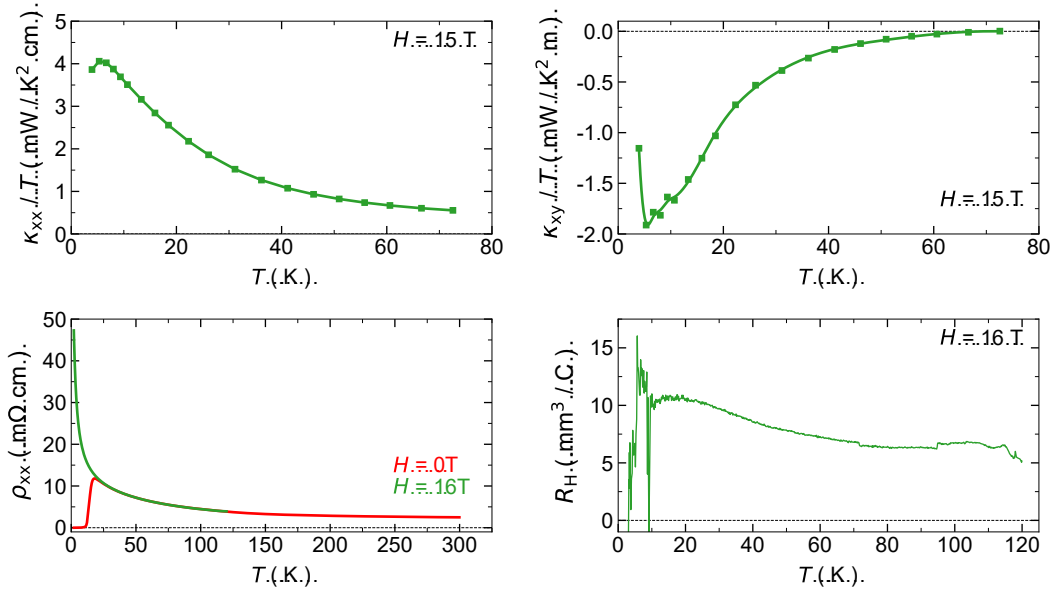


FIGURE A.15 Cet échantillon fut mesuré plusieurs fois, une seule valeur de  $K_{xy}$  est présentée.

### LSCO.0.06.axe.a

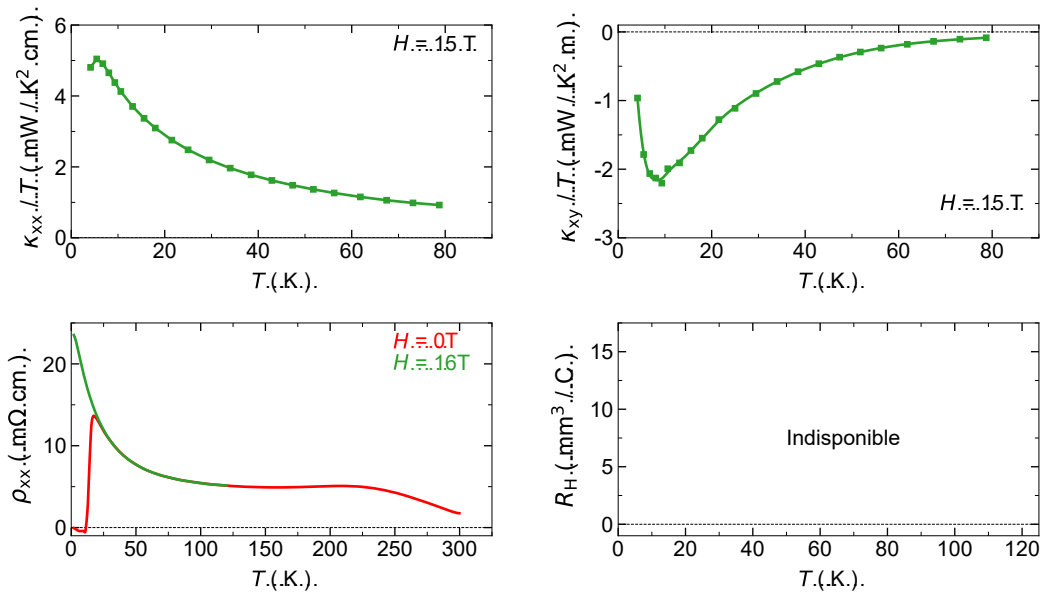


FIGURE A.16 Cet échantillon fut mesuré plusieurs fois, une seule valeur de  $K_{xy}$  est présentée.

### LSCO.0.19.2003A.axe.a

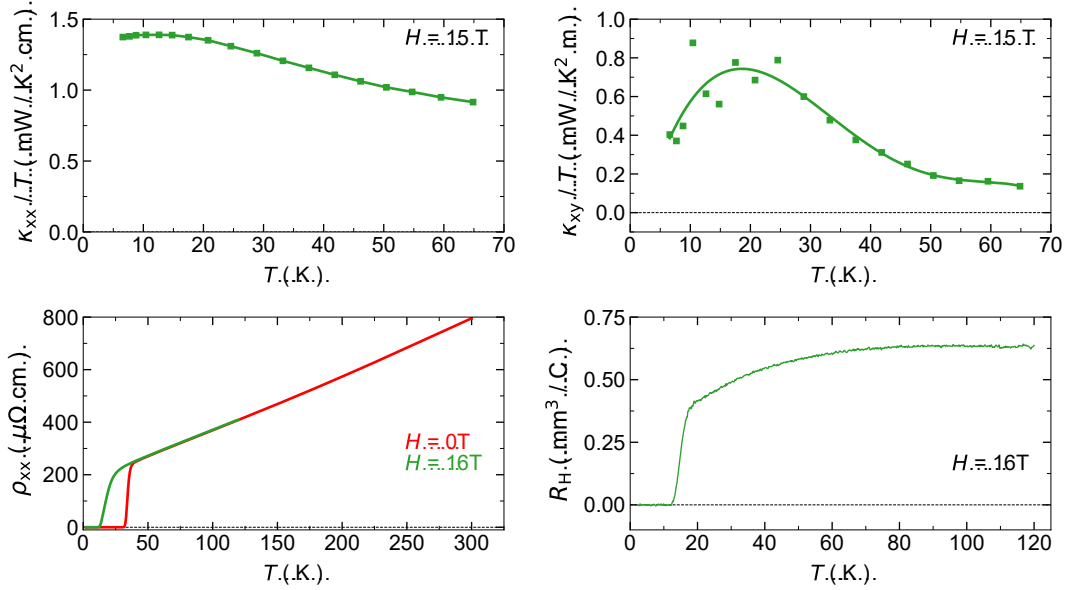


FIGURE A.17  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0.19.2002B.axe.c

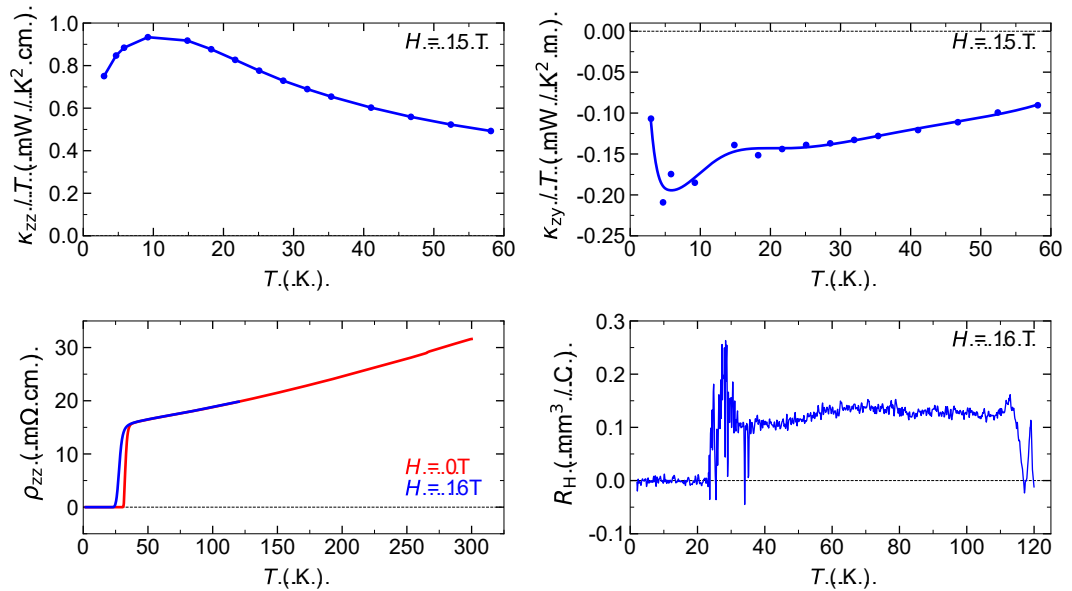


FIGURE A.18  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0.21.Z0917.axe.a

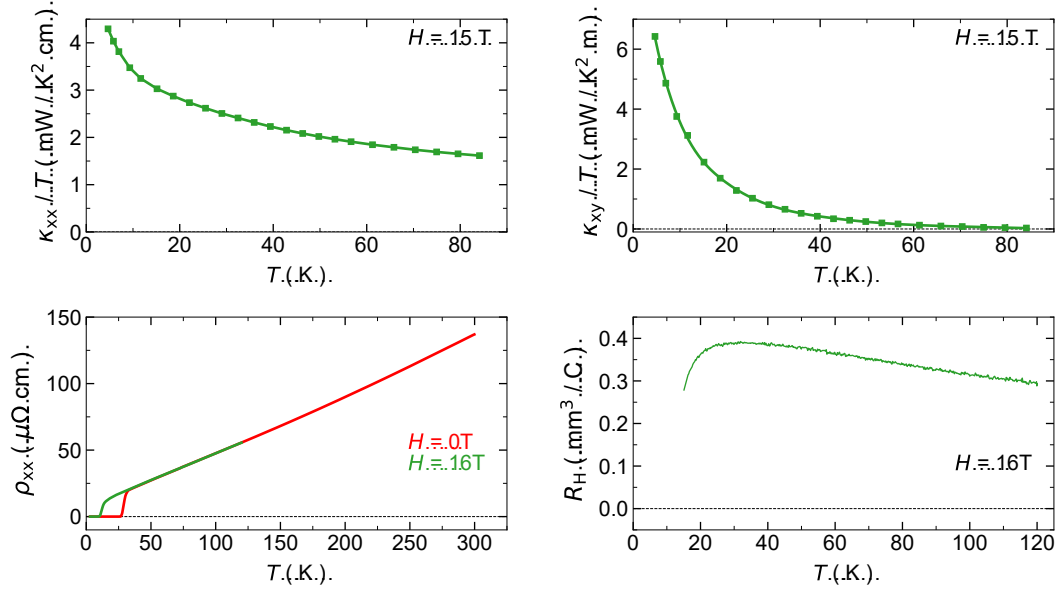


FIGURE A.19  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0.21.1910A.axe.c

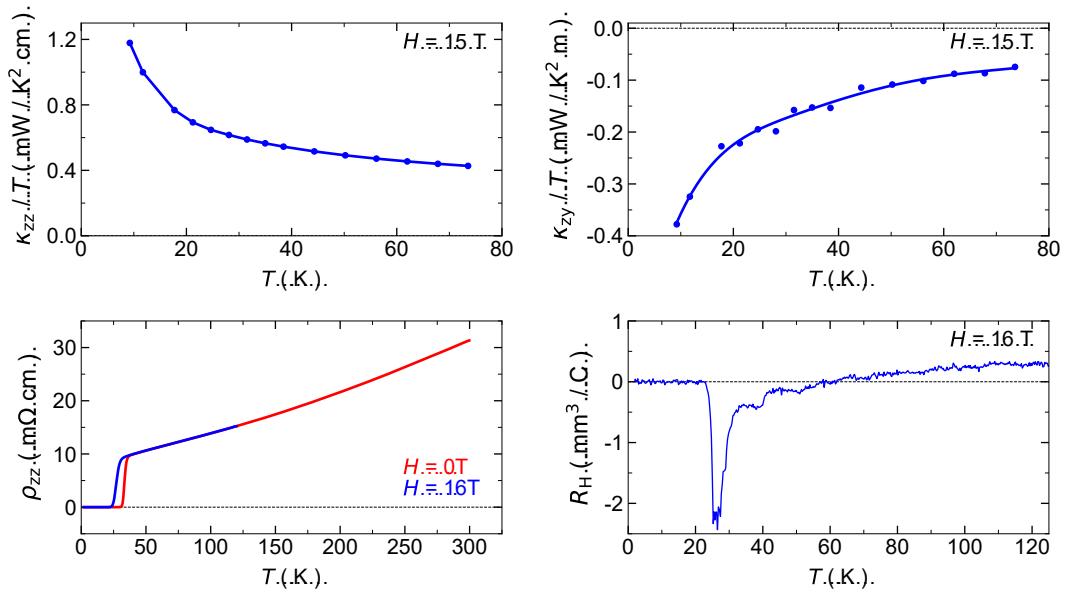


FIGURE A.20  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .



### LSCO.0.24.2003A.axe.a

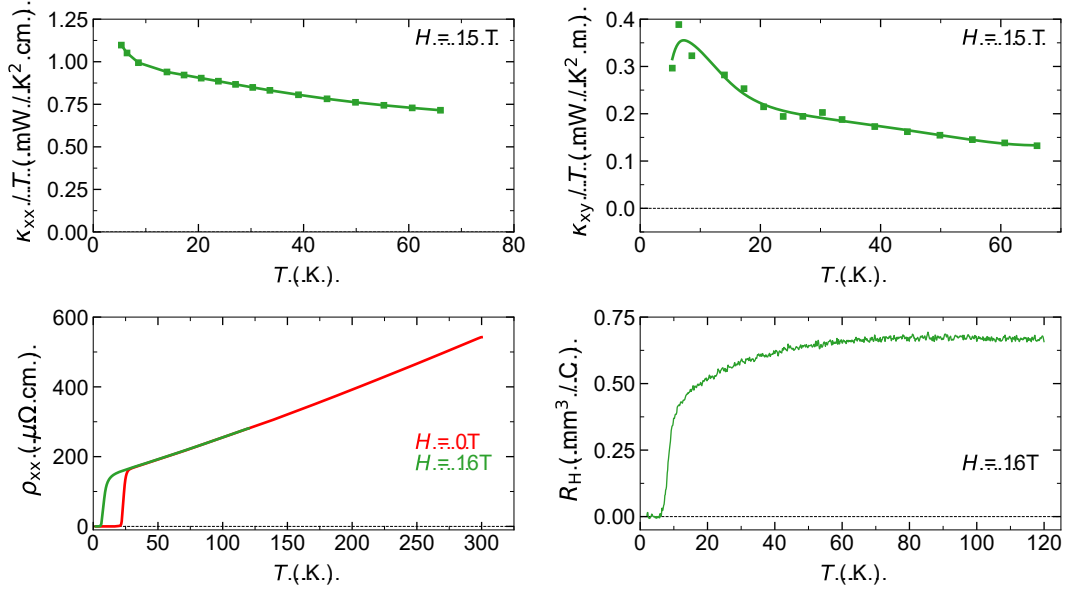


FIGURE A.21  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0.24.2003A.axe.c

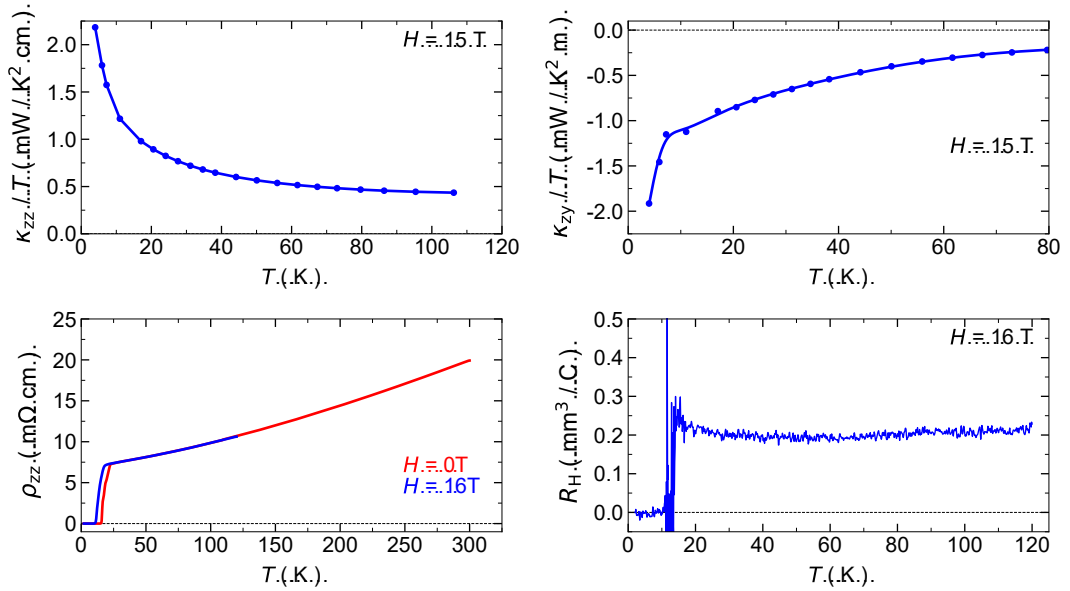


FIGURE A.22  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ ,  $\rho_{zz}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0..24.2102B.Ono.axe.a

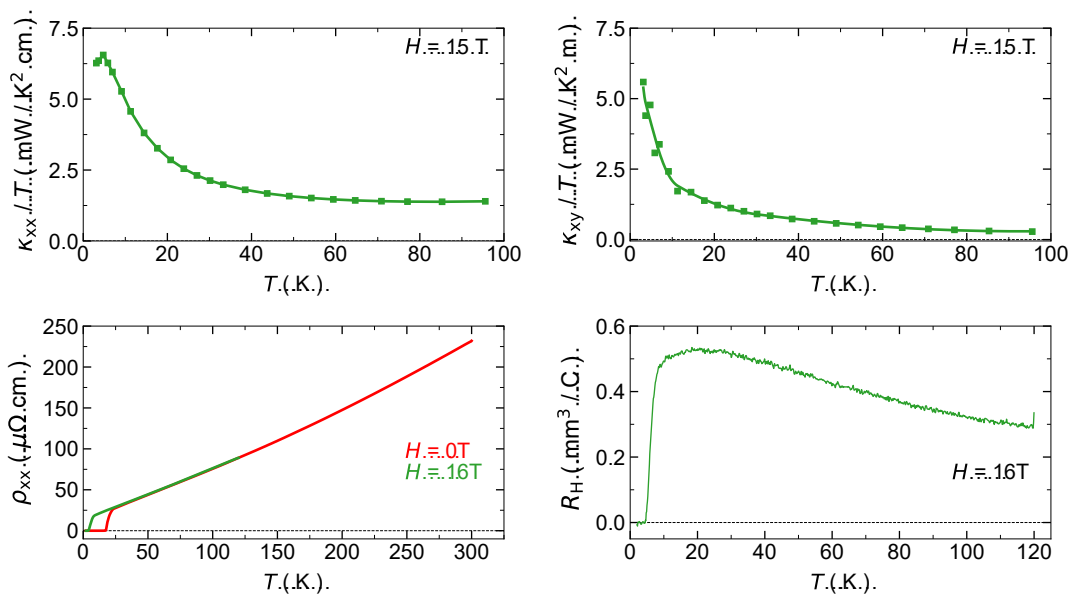


FIGURE A.23  $\kappa_{xx}/T$ ,  $\kappa_{xy}/T$ ,  $\rho_{xx}$  et  $R_H$ .

### LSCO.0..24.2102A.Ono.axe.c.mesuré.dans.l'axe.a

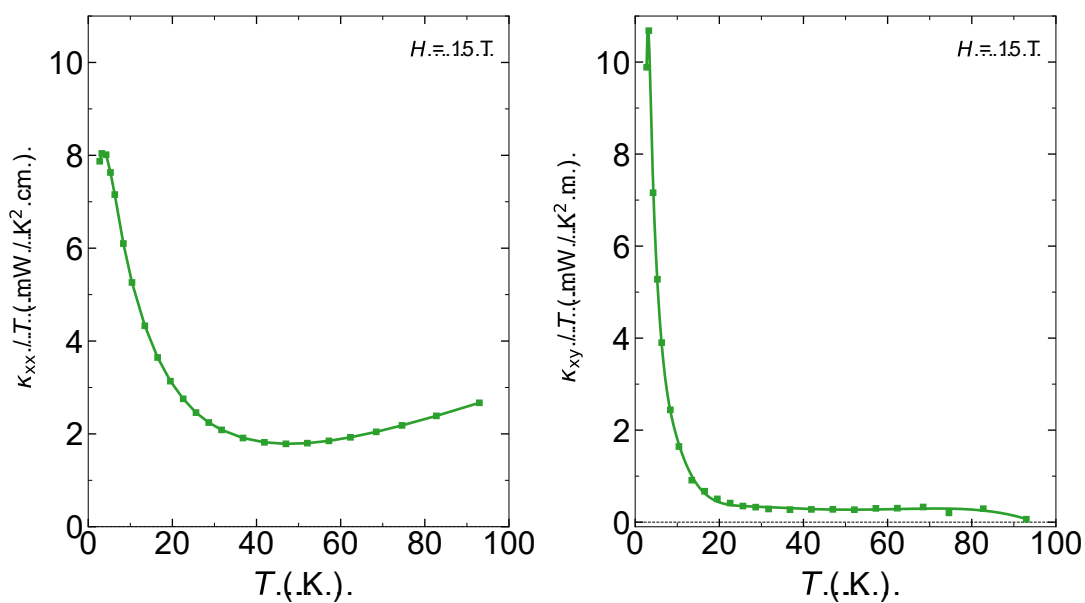


FIGURE A.24  $\kappa_{zz}/T$ ,  $\kappa_{zy}/T$ . Cet échantillon est assez gros pour être mesuré avec le courant de chaleur selon un des deux axes et fut mesuré selon l'axe *a*.

### LCO. axe.a

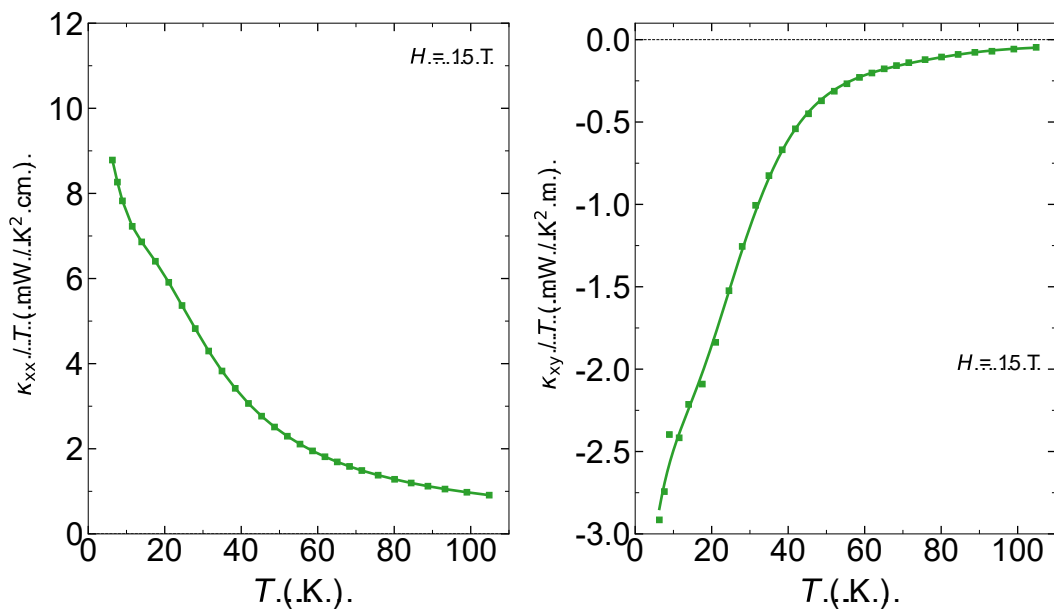


FIGURE A.25  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### LCO.1904. axe.c.

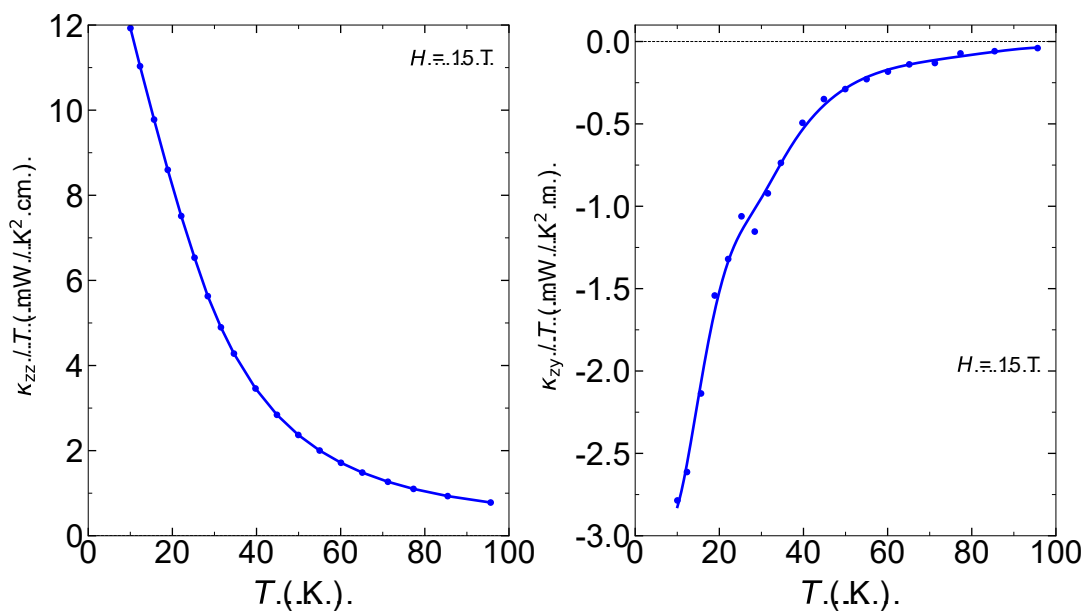


FIGURE A.26  $\kappa_{zz}/T$  et  $\kappa_{zy}/T$ .

### Cu<sub>3</sub>TeO<sub>6</sub>.2101A

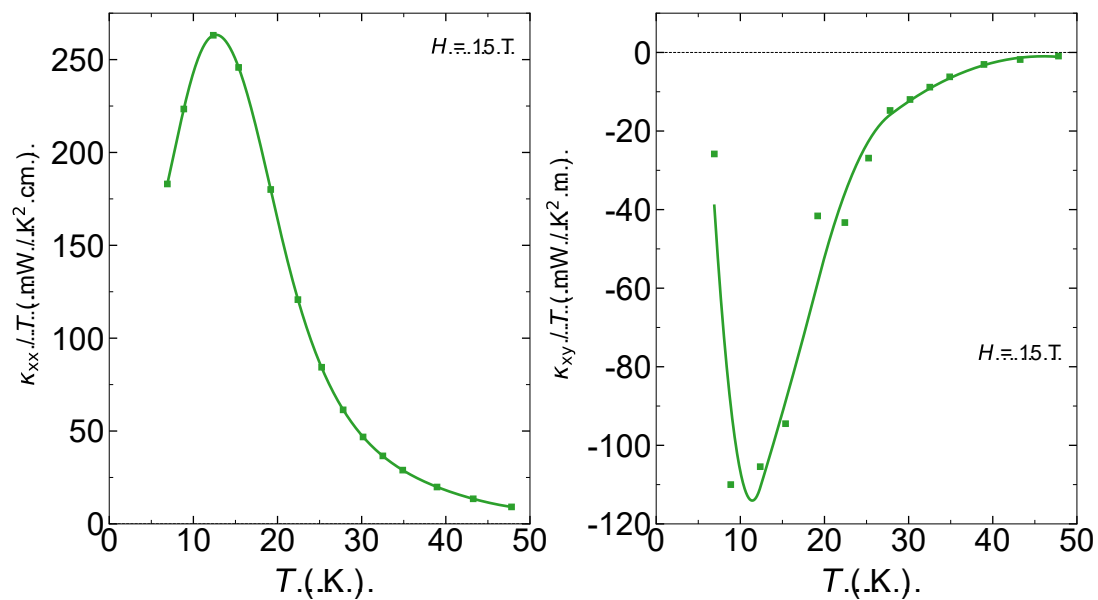


FIGURE A.27  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

### Cu<sub>3</sub>TeO<sub>6</sub>.2101B

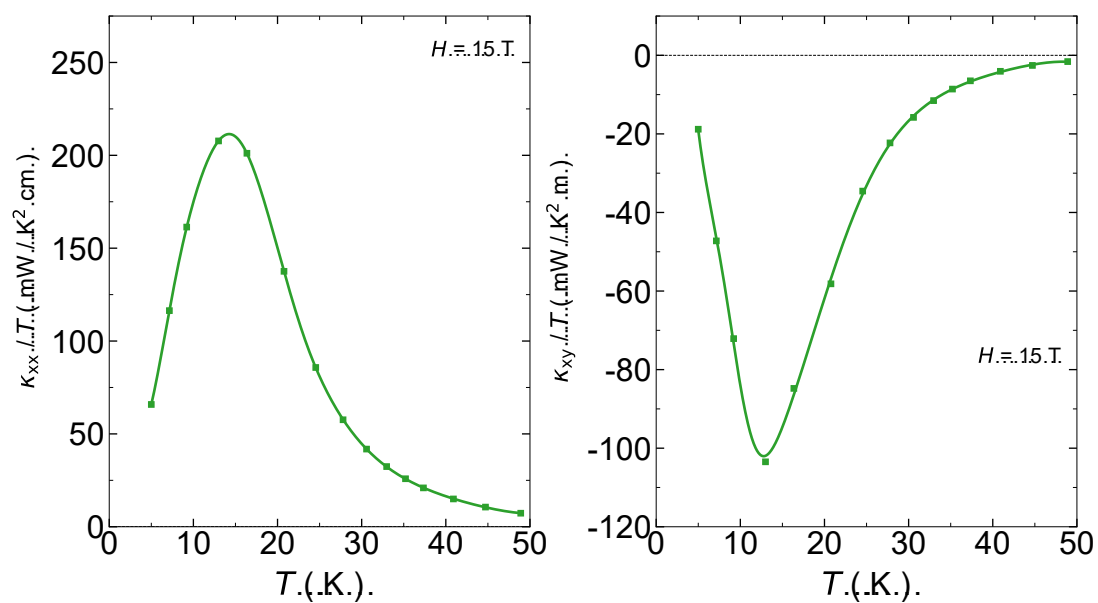


FIGURE A.28  $\kappa_{xx}/T$  et  $\kappa_{xy}/T$ .

## Annexe B

# Incertitudes et barres d'erreur

Il est important dans un discours scientifique de se rendre compte des limites de nos expériences. Un résultat n'est toujours valide que selon une certaine précision et avec une certitude. En effet, nos instruments ont une limite sur leur capacité à acquérir des données qui est innée à l'appareil en plus bien entendu des problèmes reliés à la nature aléatoire et bruyante de la réalité.

Dans la plupart des mesures présentées dans ce mémoire, il n'y a pas de barres d'erreur dans la plupart des cas, et ce, car la majorité du temps elles ne sont simplement pas calculées. Dans cette annexe sera présenté comment on peut estimer ces incertitudes.

Dans le graphique du chapitre 3 à la figure 3.8 les barres d'erreurs sont incluses dans le graphique, car la mesure  $\kappa_{zy} / \kappa_{zz}$  est la plus susceptible d'être affectée par le bruit et les conditions expérimentales. La table B.1 regroupe les différents facteurs géométriques des échantillons ayant servi à produire cette figure ainsi que les incertitudes reliées. Les incertitudes reliées à la préparation des échantillons et la connaissance des facteurs géométriques induisent une erreur multiplicative dans le calcul des conductivités, mais ne change pas la mesure de gradient thermique qui a été mesurée par les cernox ou les thermocouples qui eux ont leur propre incertitude distincte reliée au bruit électronique et à la stabilité des conditions expérimentales. L'incertitude des facteurs géométriques a donc pour effet de changer l'amplitude de toute la courbe, mais pas son allure ou son signe. L'incertitude reliée à la mesure du gradient thermique peut avoir pour effet de changer l'amplitude d'un seul point et donc de modifier à la fois l'allure de la courbe et son signe lorsque le signal observé est faible ou l'incertitude élevée. Il pourrait également y avoir un problème systématique dans la manière d'acquérir des températures qui induit une erreur sur tous les points de la même manière et donc l'amplitude de la courbe. L'incertitude du gradient peut donc

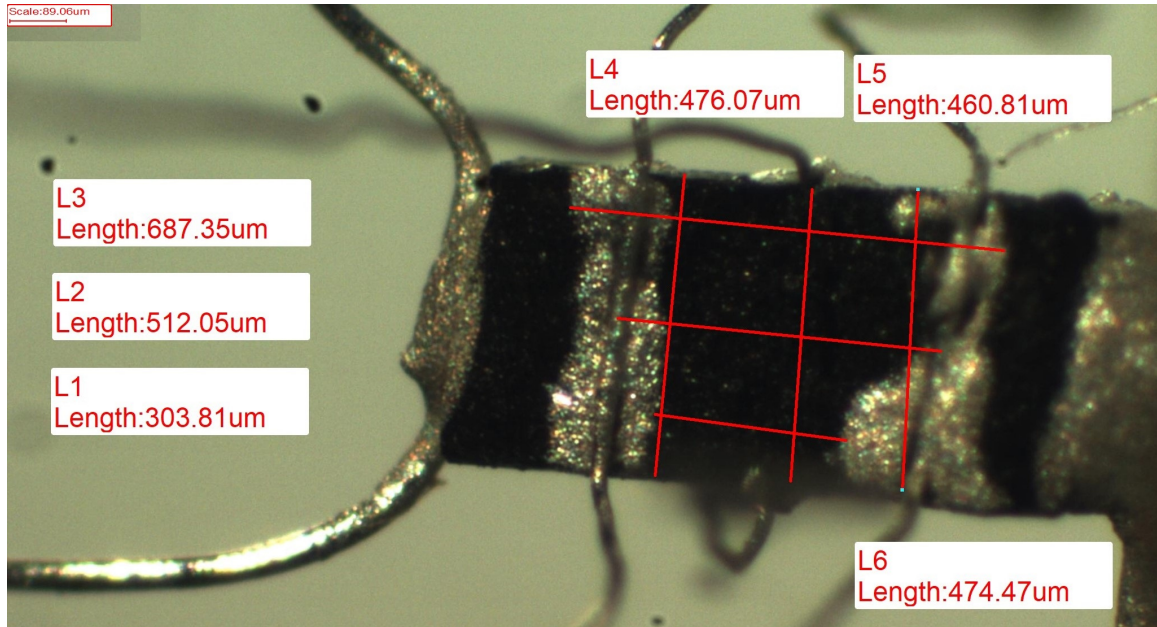
justifier des points individuels qui sont éloignés d'un guide pour l'oeil et l'incertitude des facteurs géométriques sur l'amplitude de ce guide.

Si l'on se sert des équations obtenues à la section 2.1.3 sur la conductivité thermique, on peut écrire le ratio de la conductivité thermique transverse sur la conductivité thermique longitudinal comme :

$$\frac{\kappa_{zy}}{\kappa_{zz}} = \frac{\frac{\dot{Q}_a}{\Delta T_x} \frac{l_a}{w_a t_a} \Delta T_y l_c}{\frac{\dot{Q}_c}{\Delta T_{zz}} \frac{l_c}{w_c t_c} \Delta T_z w_c} \quad (\text{B.1})$$

$$\frac{\kappa_{zy}}{\kappa_{zz}} = \frac{\dot{Q}_a}{\Delta T_x} \frac{l_a}{w_a t_a} \frac{\Delta T_y}{\dot{Q}_c} t_c \quad (\text{B.2})$$

Nous nous retrouvons donc avec l'incertitude sur la mesure  $\kappa_{xx}$ ,  $\left(\frac{\dot{Q}_a}{\Delta T_x} \frac{l_a}{w_a t_a}\right)$  en plus de l'incertitude sur les mesures d'effet Hall thermique dans la direction  $c$ ,  $\left(\frac{\Delta T_y}{\dot{Q}_c} t_c\right)$ .



**FIGURE B.1** Photo du calcul des facteurs géométrique de l'échantillon de Eu-LSCO 0.21 1912A axe  $c$  (figure A.12). Les longueurs L1, L2 et L3 démontrent la grande incertitude sur le paramètre  $l$  dans les mesures de  $\kappa$ .

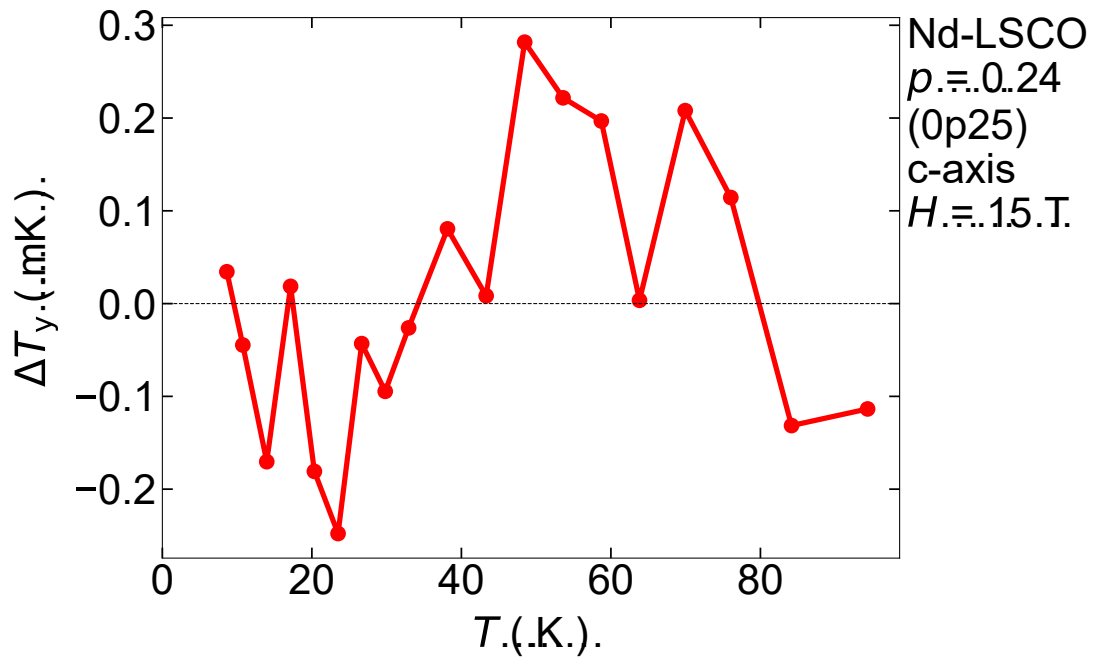
L'incertitude de chaque mesure de facteur géométrique est obtenue en regardant la différence entre les distances extrémales obtenues à partir d'images des échantillons telles qu'à la figure B.1. L'incertitude totale sur  $\kappa_{ny}/\kappa_{nm}$  est ensuite calculée à partir de ces incertitudes et de la disposition des facteurs géométriques dans le calcul de cette valeur. Par exemple :

| Matériau | Dopage | Axe | $l$  | $\pm$ | $t$ | $\pm$ | $w$  | $\pm$ | % Err $\kappa_{ny}+$ | % Err $\kappa_{ny}-$ |
|----------|--------|-----|------|-------|-----|-------|------|-------|----------------------|----------------------|
| LCO      | 0      | a   | 825  | 200   | 180 | 5     | 795  | 5     | 24.7                 | -25.0                |
| LCO      | 0      | c   | 700  | 100   | 105 | 10    | 400  | 50    | 29.0                 | -50.9                |
| LSCO     | 0.06   | a   | 650  | 200   | 170 | 5     | 680  | 20    | 32.7                 | -34.7                |
| Eu-LSCO  | 0.08   | a   | 800  | 300   | 235 | 5     | 695  | 5     | 37.9                 | -38.5                |
| Eu-LSCO  | 0.21   | a   | 650  | 100   | 115 | 5     | 530  | 10    | 17.0                 | -17.6                |
| Eu-LSCO  | 0.21   | c   | 500  | 200   | 195 | 5     | 470  | 5     | 20.7                 | -29                  |
| Nd-LSCO  | 0.21   | a   | 1250 | 250   | 175 | 5     | 650  | 5     | 20.6                 | -20.9                |
| Nd-LSCO  | 0.21   | c   | 1500 | 250   | 650 | 5     | 1020 | 10    | 20.3                 | -30.6                |
| Nd-LSCO  | 0.22   | a   | 1350 | 250   | 130 | 20    | 505  | 5     | 19.3                 | -19.7                |
| Nd-LSCO  | 0.22   | c   | 1300 | 250   | 120 | 5     | 240  | 5     | 32.1                 | -49.2                |
| Nd-LSCO  | 0.23   | a   | 1800 | 250   | 190 | 5     | 540  | 10    | 15.5                 | -16.0                |
| Nd-LSCO  | 0.23   | c   | 1500 | 300   | 312 | 5     | 860  | 5     | 17.4                 | -23.4                |
| Nd-LSCO  | 0.24   | a   | 2500 | 300   | 510 | 5     | 510  | 10    | 13.7                 | -14.2                |
| Nd-LSCO  | 0.24   | c   | 2150 | 250   | 480 | 10    | 460  | 10    | 15.1                 | -19.5                |
| Eu-LSCO  | 0.24   | a   | 550  | 150   | 170 | 5     | 455  | 20    | 30.3                 | -33.1                |
| Eu-LSCO  | 0.24   | c   | 1550 | 200   | 335 | 5     | 600  | 5     | 28.2                 | -50.0                |
| Nd-LSCO  | 0.26   | a   | 2200 | 250   | 255 | 5     | 400  | 20    | 15.6                 | -17.2                |
| Nd-LSCO  | 0.26   | c   | 525  | 200   | 285 | 5     | 395  | 5     | 17.8                 | -22.9                |

**TABLE B.1** Table des facteurs géométriques des échantillons ayant servi à tracer les points pour la figure 3.8. Toutes les mesures de dimensions sont en micromètres et % Err $\kappa_{ny} + / -$  représente le pourcentage d'incertitude sur la mesure  $\kappa_{ny}$  lorsque les facteurs géométriques sont considérés aux extrêmes des incertitudes.

$$\frac{500 \pm 50}{500 \pm 50} \rightarrow \frac{550}{450} \& \frac{450}{550} \rightarrow 1.00^{+0.22}_{-0.18}. \quad (\text{B.3})$$

Pour les mesures à  $p > p^*$ , le signal est tellement faible qu'appliquer seulement les incertitudes reliées aux facteurs géométriques ne semble pas réellement montrer l'incertitude de la mesure. Une incertitude supplémentaire de 0.3 mK a donc été rajoutée suivant les mesures réelles obtenues lors de la mesure de l'échantillon Nd-LSCO 0.24 (0p25) axe c présenté à la figure B.2.



**FIGURE B.2** Valeurs de gradient thermique transverse obtenues lors de la mesure de l'échantillon Nd-LSCO 0.24 (0p25) axe  $c$  (figure A.8). Le signal maximal de 0.3 mK variant autour de zéro nous porte à croire qu'il y aurait un bruit de 0.3 mK durant les mesures de  $\Delta T_y$ .



# Bibliographie

- [1] Grissonnanche, G., et al. (2020) Chiral phonons in the pseudogap phase of cuprates. *Nature Physics*, **16**, 1108–1111.
- [2] Gourgout, A., et al. (2021) Effect of pressure on the pseudogap and charge density wave phases of the cuprate Nd-LSCO probed by thermopower measurements. *Physical Review Research*, **3**, 023066.
- [3] Kamerlingh Onnes, H. (1911) The superconductivity of mercury. *Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden*, **122**, 122–124.
- [4] Bardeen, J., Cooper, L. N., and Schrieffer, J. R. (1957) Theory of superconductivity. *Physical review*, **108**, 1175.
- [5] CCAS (2011), Superconductivity : Properties, history, and Challenges. <http://www.ccas-web.org/superconductivity/>.
- [6] Bednorz, J. G. and Müller, K. A. (1986) Possible high  $T_c$  superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, **64**, 189–193.
- [7] Matthias, B. (1957) Chapter V superconductivity in the periodic system. *Progress in low temperature physics*, vol. 2, pp. 138–150, Elsevier.
- [8] Longo, J. and Raccah, P. (1973) The structure of  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  and  $\text{LaSrVO}_4$ . *Journal of Solid State Chemistry*, **6**, 526–531.
- [9] Cava, R., Van Dover, R., Batlogg, B., and Rietman, E. (1987) Bulk superconductivity at 36 K in  $\text{La}_{1.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CuO}_4$ . *Physical Review Letter*, **58**, 408.
- [10] Barišić, N., Chan, M. K., Li, Y., Yu, G., Zhao, X., Dressel, M., Smontara, A., and Greven, M. (2013) Universal sheet resistance and revised phase diagram of the cuprate high-temperature superconductors. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **110**, 12235–12240.
- [11] Proust, C. and Taillefer, L. (2019) The remarkable underlying ground states of cuprate superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, **10**, 409–429.
- [12] Matt, C. E., et al. (2015) Electron scattering, charge order, and pseudogap physics in  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  : an angle-resolved photoemission spectroscopy study. *Physical Review B*, **92**, 134524.
- [13] Sordi, G., Sémon, P., Haule, K., and Tremblay, A.-M. (2012) Pseudogap temperature as a widom line in doped Mott insulators. *Scientific Reports*, **2**, 1–5.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [14] Krishana, K., Ong, N., Zhang, Y., Xu, Z., Gagnon, R., and Taillefer, L. (1999) Quasiparticle thermal Hall angle and magnetoconductance in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ . *Physical Review Letters*, **82**, 5108.
- [15] Zhang, Y., Ong, N. P., Xu, Z., Krishana, K., Gagnon, R., and Taillefer, L. (2000) Determining the Wiedemann-Franz ratio from the thermal Hall conductivity : Application to Cu and  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ . *Physical Review Letter*, **84**, 2219.
- [16] Grissonnanche, G., et al. (2016) Wiedemann-Franz law in the underdoped cuprate superconductor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . *Physical Review B*, **93**, 064513.
- [17] Grissonnanche, G., et al. (2019) Giant thermal Hall conductivity in the pseudogap phase of cuprate superconductors. *Nature*, **571**, 376–380.
- [18] Strohm, C., Rikken, G., and Wyder, P. (2005) Phenomenological evidence for the phonon Hall effect. *Physical Review Letter*, **95**, 155901.
- [19] Mori, M., Spencer-Smith, A., Sushkov, O. P., and Maekawa, S. (2014) Origin of the phonon Hall effect in rare-earth garnets. *Physical Review Letter*, **113**, 265901.
- [20] Li, X., Fauqué, B., Zhu, Z., and Behnia, K. (2020) Phonon thermal Hall effect in strontium titanate. *Physical Review Letter*, **124**, 105901.
- [21] Flebus, B. and MacDonald, A. (2021) Charged defects and phonon Hall effects in ionic crystals. *arXiv preprint arXiv :2106.13889*.
- [22] Samajdar, R., Scheurer, M. S., Chatterjee, S., Guo, H., Xu, C., and Sachdev, S. (2019) Enhanced thermal Hall effect in the square-lattice Néel state. *Nature Physics*, **15**, 1290–1294.
- [23] Guo, H. and Sachdev, S. (2021) Extrinsic phonon thermal Hall transport from Hall viscosity. *Physical Review B*, **103**, 205115.
- [24] Zhang, Y., Teng, Y., Samajdar, R., Sachdev, S., and Scheurer, M. S. (2021) Phonon Hall viscosity from phonon-phonon interactions. *arXiv preprint arXiv :2103.05650*.
- [25] Ye, M., Savary, L., and Balents, L. (2021) Phonon Hall viscosity in magnetic insulators. *arXiv preprint arXiv :2103.04223*.
- [26] Yang, Y.-f., Zhang, G.-M., and Zhang, F.-C. (2020) Universal behavior of the thermal Hall conductivity. *Physical Review Letter*, **124**, 186602.
- [27] Sun, X.-Q., Chen, J.-Y., and Kivelson, S. A. (2021) Large extrinsic phonon thermal Hall effect from resonant scattering. *arXiv preprint arXiv :2109.12117*.
- [28] Varma, C. M. (2020) Thermal Hall effect in the pseudogap phase of cuprates. *Physical Review B*, **102**, 075113.
- [29] Ashcroft, N. W., Mermin, N. D., et al. (1976), Solid state physics.
- [30] Jain, A., et al. (2013) The Materials Project : A materials genome approach to accelerating materials innovation. *APL Materials*, **1**, 011002.
- [31] Grissonnanche, G. (2016) Une fable de phases en interaction dans les cuprates supraconducteurs contée par le transport thermique. *Thèse de doctorat Université de Sherbrooke*.
- [32] Lefrançois, É. (2019) Étude du transport thermique dans le candidat de liquide de spins kitaev  $\alpha$  -  $\text{RuCl}_3$ . *Mémoire de thèse Université de Sherbrooke*.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [33] Dragomir, M., Ma, Q., Clancy, J. P., Ataei, A., Dube, P. A., Sharma, S., Huq, A., Dabkowska, H. A., Taillefer, L., and Gaulin, B. D. (2020) Materials preparation, single-crystal growth, and the phase diagram of the cuprate high-temperature superconductor  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . *Physical Review Materials*, **4**, 114801.
- [34] Hess, C., Büchner, B., Ammerahl, U., Colonescu, L., Heidrich-Meisner, F., Brenig, W., and Revcolevschi, A. (2003) Magnon heat transport in doped  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . *Physical Review Letter*, **90**, 197002.
- [35] Boulanger, M.-E., et al. (2020) Thermal Hall conductivity in the cuprate Mott insulators  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  and  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ . *Nature communications*, **11**, 1–9.
- [36] Tranquada, J. M. (2013) Spins, stripes, and superconductivity in hole-doped cuprates. *AIP Conference Proceedings*, vol. 1550, pp. 114–187, American Institute of Physics.
- [37] Gupta, N. K., et al. (2020) Vanishing nematic order beyond the pseudogap phase in overdoped cuprate superconductors. *arXiv preprint arXiv :2012.08450*.