

Conductivité thermique dans les cuprates dopés en électrons

par

Marie-Eve Boulanger

Thèse présentée au département de physique
en vue de l'obtention du grade de docteur ès sciences (Ph.D.)

FACULTÉ des SCIENCES
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 26 mai 2022

Le 26 mai 2022

le jury a accepté la thèse de Madame Marie-Eve Boulanger dans sa version finale.

Membres du jury

Professeur Louis Taillefer
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur André-Marie Tremblay
Membre interne
Département de physique

Professeur Bertrand Reulet
Président rapporteur
Département de physique

Professeur Christian Hess
Membre externe
Bergische Universität Wuppertal

À mon amoureux et notre futur à trois

Sommaire

Dans cette thèse, la mesure de l'effet Hall thermique a été utilisée pour étudier différents matériaux quantiques, plus particulièrement les cuprates. Cette nouvelle sonde prometteuse est sensible aux excitations électroniques, magnétiques et possiblement topologiques de la matière [1].

Étonnamment, il s'est avéré que les phonons peuvent générer un effet Hall thermique non nul dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous, et ce jusqu'à la phase isolante [2]. Les phonons, particules sans charge, se sont avérés être les porteurs de chaleur responsables de ce signal transverse [3]. La question première à laquelle cette thèse veut répondre est : quel est le mécanisme responsable de l'effet Hall thermique des phonons dans les cuprates, ou les isolants en général.

Cette thèse par articles présente les résultats de trois projets distincts. Le premier est l'effet Hall thermique dans les cuprates isolants de Mott. Cette étude a confirmé l'origine phononique de l'effet Hall thermique dans les cuprates, tout en éliminant divers mécanismes pouvant générer un effet Hall thermique dans les isolants, comme les domaines structuraux et magnétiques ou la diffusion sur des impuretés de terres rares. La deuxième étude porte sur l'effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons, de la phase isolante à la phase métallique. Un signal d'effet Hall thermique attribué aux phonons est toujours présent, et ce à tous les dopages. Les fluctuations antiferromagnétiques bidimensionnelles étant présentes à tous les dopages mesurés, cela semble être un élément à examiner dans la recherche du mécanisme responsable de l'effet Hall thermique des phonons. Finalement, le dernier projet présenté dans cette thèse porte sur l'étude d'un isolant antiferromagnétique cubique, Cu_3TeO_6 . L'effet Hall thermique de cet isolant est d'amplitude relative similaire aux cuprates dopés en trous, et ne montre aucune anomalie lors de la transition magnétique à T_N . Ainsi, l'ordre magnétique à longue portée n'est pas nécessaire à la conductivité thermique

de Hall des phonons et la physique particulière des cuprates non plus.

Remerciements

Cette thèse marque la fin de mes études graduées comprenant trois années et demie de doctorat et deux de maîtrise. C'est tout un accomplissement personnel, marqué de hauts et de bas, qui aurait été impossible sans le soutien, les encouragements et la présence de nombreuses personnes. Ces quelques pages me permettent de souligner ces êtres extraordinaires que j'ai eu la chance de côtoyer durant mes études à l'Université de Sherbrooke.

Ces dernières années ont été d'une grande richesse en connaissance scientifique, et c'est entre autres grâce à mon superviseur Louis Taillefer. Merci de m'avoir accueillie dans ton groupe de recherche et d'avoir fait de moi une meilleure scientifique. Merci aussi de m'avoir toujours fait sentir à ma place, dans ce monde à prédominance masculine. Grâce à ton soutien et ton écoute, j'ai appris qu'il existait mille et une façons différentes de faire de la science de haut niveau, et que mon approche était tout aussi valable que n'importe laquelle. Je suis extrêmement chanceuse d'avoir été aussi bien accompagnée dans mon parcours scientifique, ainsi que dans mes nombreux projets connexes.

Je souhaite remercier aussi bien sur tous les membres du groupe Taillefer avec qui j'ai eu l'occasion de collaborer, discuter et rire. J'aimerais remercier spécialement l'ancien postdoctorant du groupe Gaël Grissonnanche, qui m'a accompagné au début de ma thèse et qui a pris le temps de m'enseigner la très délicate mesure de l'effet Hall thermique. Merci pour ta patience, et ton soutien constant même à distance. Un merci personnalisé aussi au doctorant Étienne Lefrançois pour son soutien à tous les niveaux durant ma thèse, que ce soit pour blaguer, décompresser ou simplement discuter. Mon doctorat aurait complètement été différent (et monotone) sans toi. Merci à l'ancien postdoctorant Francis Laliberté pour ton écoute et tes encouragements. Merci aussi Amirreza Ataei pour ta passion scientifique inaltérable ainsi qu'à Jordan Baglo pour tes connaissances scientifiques et techniques sans fin. Merci à Simon, Lu, Quentin, Adrien, Anaëlle, Maude ainsi qu'à tous ceux et celles qui

sont passés par le groupe Taillefer.

Du côté du département de physique de l'Université de Sherbrooke, un merci particulier à toute l'équipe de Cryoteam. Je n'ose imaginer le nombre de litres d'hélium consommé pour la réalisation de cette thèse. Votre travail est indispensable. Merci aussi à Dominique pour ton aide et ton écoute à tout moment. Merci à tous les professeurs et la professeure du département que j'ai eu la chance de côtoyer et d'échanger ces dernières années. Le côté humain est un élément clé du succès du département.

Il est aussi très important pour moi de souligner le support immense de la doctorante Chloé Gauvin-Ndiaye. Quelle scientifique incroyable ! Merci pour toutes nos discussions scientifiques, tous ces nombreux appels lors de la pandémie pour recharger nos batteries, toutes les pratiques de présentations orales et la préparation de résumés de conférence ainsi qu'un merci particulier pour ta lecture soignée de ma thèse et de mes articles. J'ai adoré collaborer avec toi et c'est quelque chose qui va me manquer. Merci aussi de faire partie de ma vie en tant qu'amie. Je te souhaite tout le succès que tu mérites pour la fin de ta thèse, et bien plus encore après.

Je tiens aussi à souligner l'incroyable soutien de la communauté des femmes en physique de l'Université de Sherbrooke. Sophie Rochette, Maude Lizaire, Chloé Gauvin-Ndiaye, Sara Turcotte, Lu Chen et toutes les femmes du comité Diversité, vous m'avez aidé à devenir une meilleure personne et une meilleure scientifique. Vous êtes toutes des forces de la nature et vous me poussez constamment à être le meilleur de moi-même. J'ai adoré faire partie de ce comité et d'organiser de nombreux projets de sensibilisation.

Mon expérience à Sherbrooke n'aurait pas été la même sans le soutien de mes amis et amies de Québec, Montréal et Sherbrooke. Ces dernières années ont été difficiles, mais les retrouvailles n'en seront que meilleures. Un merci particulier à Roxanne, Étienne, Joannie, Hugo, Jérémie, Andréa, Daehli, Kevin, Émily ainsi qu'à Alexandra et Marie-Michèle.

Merci à mes parents, mes deux soeurs merveilleuses ainsi qu'à mes grands-parents pour leur soutien et leurs amours inconditionnels. Un merci spécial à mon papa Jacques qui a pris le temps de sortir son dictionnaire pour relire cette thèse. Tu m'as toujours soutenu à travers mes décisions professionnelles et personnelles. Merci à ma maman Caroline d'avoir toujours été un exemple et un modèle pour moi. Je peux toujours compter sur toi, et ce à n'importe quel moment de ma vie. Ma famille m'a toujours soutenue dans tout ce que j'entreprends

et me pousse constamment à devenir la meilleure version de moi-même. Je suis très choyée d'être aussi bien entourée. Merci aussi à ma belle-famille pour son soutien et ses nombreux encouragements.

Finalement, merci à Maxime pour ton amour et ton support tout au long de ce parcours académique. Je suis extrêmement chanceuse et choyée de t'avoir dans ma vie. Merci de toujours me montrer le meilleur côté des choses et d'être présent dans tous mes projets. Ma thèse en physique n'aurait pas été la même sans toi, et c'est pourquoi je te dédie cet ouvrage. J'ai très hâte au prochain chapitre de notre vie qui inclut un nouveau petit trésor. Je t'aime.

Contributions à la recherche

Dans le cadre ma thèse dans le groupe du professeur Louis Taillefer, j'ai eu la chance de collaborer sur de nombreux projets avec divers chercheurs et chercheuses, et sur des matériaux variés. Dans cette courte section, je présente la liste de mes différentes contributions à la recherche en matériaux quantiques à titre de doctorante.

Contributions principales

La liste de publications ci-après met en évidence les projets où j'ai apporté une contribution majeure à titre d'investigatrice principale. Pour cette liste de publications, je fus responsable de la prise de données expérimentales, l'analyse ainsi que la rédaction des articles. C'est, entre autres, à travers ces projets que j'ai développé mon autonomie en laboratoire et forgé mon esprit critique scientifique. Ces trois articles sont au coeur de cette thèse.

Titre : Thermal Hall conductivity in the cuprate Mott insulators Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$

Auteurs et autrices : Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Sven Badoux, Andréanne Allaire, Étienne Lefrançois, Anaëlle Legros, Adrien Gourgout, Maxime Dion, C.H. Wang, X. H. Chen, R. Liang, W. N. Hardy, D. A Bonn, Louis Taillefer

Référence : [Nature Communications](#) **11**, 5325 (2020)

Cet article, détaillé au chapitre 4, présente l'étude de l'effet Hall thermique dans les cuprates isolants de Mott. Il s'agit d'une partie importante de ma thèse, qui met la table pour l'étude de la conductivité thermique transverse dans les cuprates dopés en électrons.

En plus de cela, c'est à travers cette étude que Gaël Grissonnanche, ancien postdoctorant du groupe Taillefer, m'a transmis son savoir sur la méthode de l'effet Hall thermique. Dans cette étroite collaboration, j'ai pu développer mon expertise en physique expérimentale, tout en m'initiant au monde des cuprates.

Titre : Thermal Hall conductivity of electron-doped cuprates

Auteurs et autrices : Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Étienne Lefrançois, Adrien Gourgout, Kejun Xu, Zhi-Xun Shen, Richard L. Greene, Louis Taillefer

Référence : [Physical Review B 105, 115101 \(2022\)](#)

Cette contribution est au coeur de ma thèse et est détaillée au chapitre 5. J'ai mené toutes les étapes de ce projet et il s'agit d'un élément majeur de ma contribution aux savoirs scientifiques. À travers cette étude, j'ai pu montrer mon indépendance en tant que chercheuse en physique expérimentale. Il s'agit d'un article assez costaud, puisqu'il résume en quelques pages le travail de ces trois dernières années. Le but de ce projet était d'étudier, pour la première fois, l'effet Hall thermique pour différents dopages dans les cuprates dopés en électrons. Cette grande étude a montré la présence d'un signal de l'effet Hall thermique de ce côté du diagramme de phase, tout en évaluant divers scénarios théoriques pouvant expliquer ce signal. L'amplitude relative de ce signal est plus grande que ce qui a été mesuré précédemment dans les cuprates dopés en trous. Cela indice que le magnétisme, grandement présent dans les cuprates dopés en électrons, influence la conductivité thermique transverse dans les cuprates.

Titre : Large Phonon Thermal Hall Conductivity in a Simple Antiferromagnetic Insulator

Auteurs et autrices : Lu Chen, Marie-Eve Boulanger, Zhi-Chen Wang, Fazel Tafti, Louis Taillefer

Référence : [arXiv: 2110.13277 \(2021\)](#)

Cette publication est détaillée au chapitre 6. Bien qu'il s'agisse d'une contribution dont je suis très fière, je suis encore plus heureuse d'avoir eu l'occasion, à travers ce projet, d'initier ma collègue et amie Lu Chen à la technique de mesure de l'effet Hall thermique. J'ai conjointement participé à la préparation des échantillons, à l'expérience, à l'analyse des mesures ainsi qu'à la rédaction de l'article. Ce projet complémentaire à ma thèse avait

pour but de mesurer l'effet Hall thermique dans un isolant antiferromagnétique cubique, en apparence un système moins complexe que les cuprates. Ce composé présente lui aussi un signal de l'effet Hall thermique. Cette mesure a permis de confirmer que l'ordre magnétique n'est pas nécessaire à l'apparition d'un effet Hall thermique dans un isolant magnétique.

Contributions secondaires

Cette liste de publications fait référence à d'autres projets où j'ai eu la chance de m'impliquer à titre de collaboratrice pendant ma thèse de doctorat. Ces projets secondaires m'ont permis d'en apprendre davantage sur des sujets connexes à mon projet de thèse, ainsi que d'apprendre une nouvelle technique, soit les mesures d'effet Seebeck sous pression, ou de collaborer sur d'autres projets de conductivité thermique.

Titre : Electrons with Planckian scattering obey standard orbital motion in a magnetic field

Auteurs et autrices : A. Ataei, A. Gourgout, G. Grissonnanche, L. Chen, J. Baglo, M.-E. Boulanger, F. Laliberté, S. Badoux, N. Doiron-Leyraud, V. Oliviero, S. Benhabib, D. Vignolles, J.-S. Zhou, S. Ono, H. Takagi, C. Proust, L. Taillefer

Référence : [arXiv:2203.05035 \(2022\)](#)

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

Auteurs et autrices : 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, Louis Taillefer

Référence : [Physical Review Research **3**, 023066 \(2021\)](#)

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

Auteurs et autrices : 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, Louis Taillefer

Référence : [Physical Review Research **3**, 023066 \(2021\)](#)

Titre : Transport signatures of the pseudogap critical point in the cuprate superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6-\delta}$

Auteurs et autrices : M. Lizaire, A. Legros, A. Gourgout, S. Benhabib, S. Badoux, F. Laliberté, M.-E. Boulanger, A. Ataei, G. Grissonnanche, D. LeBoeuf, S. Licciardello, S. Wiedmann, S. Ono, H. Raffy, S. Kawasaki, G.-Q. Zheng, N. Doiron-Leyraud, C. Proust, L. Taillefer

Référence : [Physical Review B **104**, 014515 \(2021\)](#)

Titre : Chiral phonons in the pseudogap phase of cuprates

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

Référence : [Nature Physics **16**, 1108 \(2020\)](#)

Table des matières

Sommaire	ii
Remerciements	iv
Contributions à la recherche	viii
Introduction	1
1 Conductivité thermique longitudinale et conductivité thermique de Hall	3
1.1 Principes de base de la conductivité thermique	4
1.1.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}	4
1.1.2 Effet Hall thermique, κ_{xy}	6
1.2 Loi de Wiedemann-Franz	7
1.3 Conductivité thermique dans un métal	9
1.3.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}	9
1.3.2 Effet Hall thermique, κ_{xy}	10
1.4 Conductivité thermique dans un isolant	12
1.4.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}	12
1.4.2 Processus de diffusion des phonons	13
1.4.3 Effet Hall thermique, κ_{xy}	17
1.5 Conclusion	19
2 Effet Hall thermique dans les matériaux quantiques	20
2.1 Mise en contexte et revue de la littérature	21
2.1.1 Effet Hall thermique des magnons, spinons et particules exotiques . .	21
2.1.2 Effet Hall thermique dans les cuprates	27
2.1.3 Effet Hall thermique des phonons	44

2.1.4	Théories de l'effet Hall thermique des phonons	48
2.2	Motivation de la thèse	51
3	Méthodes expérimentales	53
3.1	Conductivité thermique : approche expérimentale	53
3.2	Préparation des échantillons	54
3.3	Montage expérimental	56
3.3.1	Source de chaleur	57
3.3.2	Thermométrie	58
3.3.3	Précautions expérimentales	61
3.3.4	Sondes à haute température	62
3.4	Déroulement de la mesure	63
3.4.1	Validité de la méthode expérimentale	64
3.5	Mesure sous différentes configurations	67
3.6	Conclusion	68
4	Effet Hall thermique dans des cuprates isolants de Mott	69
4.1	Mise en contexte	69
4.2	Article	70
5	Effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons	83
5.1	Mise en contexte	83
5.2	Article	87
6	Effet Hall thermique dans Cu_3TeO_6 : un isolant antiferromagnétique	98
6.1	Mise en contexte	98
6.2	Article	99
	Conclusion	105
	Bibliographie	106

Liste des tableaux

4.1	Différentes caractéristiques étudiées dans l'étude comparative de l'effet Hall thermique dans trois isolants de Mott.	70
-----	---	----

Table des figures

1.1	Vérification de la loi de Wiedemann-Franz dans un métal conventionnel . . .	8
1.2	Conductivité thermique de l'aluminium	11
1.3	Conductivité thermique de Hall dans des métaux	12
1.4	Conductivité thermique du LiF	14
1.5	Mécanismes de collision des phonons	15
1.6	Effet Hall thermique dans $Tb_3Ga_5O_{12}$	17
1.7	Effet Hall thermique théorique dans $Tb_3Ga_5O_{12}$	18
2.1	Structure des matériaux où le théorème «no-go» s'applique	21
2.2	Effet Hall thermique dans $Lu_2V_2O_7$	22
2.3	Effet Hall thermique dans $Tb_2Ti_2O_7$	24
2.4	Effet Hall thermique théorique dans un candidat liquide de spin de type Kitaev	25
2.5	Effet Hall thermique expérimental dans $\alpha-RuCl_3$	26
2.6	Structure cristalline des cuprates isolants de Mott	28
2.7	Diagramme de phase des cuprates LSCO/NCCO	29
2.8	Structure électronique des plans cuivre-oxygène	30
2.9	Diagramme de phase des cuprates dopés en trous	32
2.10	Exemple de symétries de gaps supraconducteurs sur une surface de Fermi 2D circulaire	33
2.11	Déplacement de Knight dans la phase pseudogap des cuprates	34
2.12	Mesures d'ARPES dans la phase pseudogap	35
2.13	Évolution de la résistivité en fonction du dopage dans les cuprates	36
2.14	Déviations de la résistivité linéaire dans la phase pseudogap	37
2.15	Mesure du libre parcours moyen dans YBCO	40
2.16	Mesures d'effet Hall thermique en fonction du champ magnétique dans YBCO	41
2.17	Mesures d'effet Hall thermique dans les cuprates dopés en trous	42

2.18	Mesures de transport électrique dans Nd-LSCO	42
2.19	Mesures d'effet Hall thermique dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous pour différents dopages	43
2.20	Effet Hall thermique dans le multiferroïque $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$	44
2.21	Effet Hall thermique dans SrTiO_3 et KTaO_3	45
2.22	Évolution de la conductivité thermique de Hall selon l'axe c dans les cuprates	46
2.23	Effet Hall thermique isotrope dans La_2CuO_4	46
2.24	Conductivité thermique dans La_2CuO_4	47
3.1	Schéma du montage expérimental	54
3.2	Exemple d'un échantillon mesuré	56
3.3	Schéma des thermocouples	60
3.4	Schéma de montage sur la sonde	62
3.5	Validité de la méthode	65
3.6	Effet du bain thermique	66
3.7	Conductivité thermique selon l'axe z	68
5.1	Étude de diffraction de neutrons dans $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$	84
5.2	Mesures d'ARPES dans $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$	85

Introduction

Dans le dernier siècle, la recherche sur les matériaux de pointe a permis d'importantes innovations. On pense, par exemple, aux transistors qui sont à la base de nos outils informatiques et qui n'auraient pas pu voir le jour sans recherche sur les matériaux semi-conducteurs, dont le silicium. Parallèlement, l'imagerie par résonance magnétique ne serait pas possible sans matériaux supraconducteurs, tout comme certains réseaux de distribution électriques ou encore les accélérateurs de particules. Le tout repose sur la compréhension des propriétés des matériaux et sur notre capacité à les exploiter.

Plus récemment, un effort mondial de recherche est fait pour le développement des ordinateurs quantiques. Ces derniers ont le potentiel de fournir une puissance de calcul de loin supérieure au plus puissant superordinateur du monde. Par contre, pour construire de tels ordinateurs, nous avons besoin d'exploiter les propriétés quantiques des matériaux. Et pour bien les utiliser, il faut en premier lieu les comprendre. Ainsi, la recherche fondamentale dans les matériaux quantiques est essentielle au développement des technologies de demain.

Dans cette thèse, je m'intéresse aux propriétés quantiques de certains matériaux. Plus particulièrement, je me suis attardée à la famille des cuprates. Cette famille de matériaux présente une phase supraconductrice lorsque le dopage et la température le permettent. Bien que connus depuis maintenant plus de trente ans, les cuprates ne cessent de nous surprendre [4]. En effet, une nouvelle approche expérimentale, la mesure de l'effet Hall thermique, a révélé une signature inattendue dans les cuprates dopés en trous : un effet Hall thermique négatif à basse température qui croît plus le matériau devient isolant [2]. Cette découverte a soulevé plusieurs questions. Est-ce que ce phénomène révèle la présence d'une phase exotique ? Quelle est la particule quantique responsable de ce signal ? Est-ce que d'autres familles de matériaux présentent aussi cette caractéristique ?

En fait, il s'est avéré, peu de temps, après que ce sont les phonons, particules neutres omniprésentes dans les matériaux, qui étaient responsables de ce signal dans les cuprates dopés en trous. Comment, cependant, ces particules sans charges peuvent-elles être influencées par un champ magnétique ?

Afin de répondre à toutes ces questions, j'ai appris et utilisé cette nouvelle technique, l'effet Hall thermique, pour continuer à sonder les propriétés intrinsèques des cuprates. Je me suis particulièrement intéressée à deux isolants de Mott : Nd_2CuO_4 et $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Par la suite, j'ai étudié l'effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons, famille voisine des cuprates dopés en trous, de la phase isolante à la phase métallique. Le signal d'effet Hall thermique négatif des phonons étant toujours présent dans ces composés. J'ai élargi le champ d'investigation et étudié un matériau isolant antiferromagnétique cubique plus simple que les cuprates, Cu_3TeO_6 , toujours dans le but de comprendre le mécanisme derrière la conductivité transverse sous champ magnétique des phonons.

Cette thèse rédigée par articles comporte six chapitres. Le premier chapitre décrit les concepts de base de la conductivité thermique longitudinale et transverse. Ce chapitre permet de comprendre comment les résultats sont analysés ainsi que de bien comprendre les différents mécanismes qui transportent la chaleur dans les matériaux.

Le deuxième chapitre présente la mise en contexte du projet de recherche. Une revue de littérature complète sur l'effet Hall thermique dans les matériaux y est présentée. En effet, cette sonde n'est pas seulement sensible aux excitations électroniques et magnétiques. Des prédictions théoriques suggèrent qu'elle serait également sensible à des excitations plus exotiques dont les fermions de Majorana. Une attention particulière est portée sur un nouveau domaine des matériaux quantiques, soit l'effet Hall thermique des phonons.

La méthode expérimentale ainsi que la procédure de l'effet Hall thermique sont décrites en détail au troisième chapitre.

Les chapitres suivants présentent les publications qui témoignent de mon travail ces trois dernières années et demie. Le lien entre ces articles est la mesure de l'effet Hall thermique ainsi que la quête vers une compréhension des mécanismes responsables de l'effet Hall thermique des phonons dans les isolants.

Chapitre 1

Conductivité thermique longitudinale et conductivité thermique de Hall

La conductivité thermique est la capacité d'un matériau à transporter la chaleur d'une région chaude vers une région plus froide. Dans les solides, les deux principales sources de conductivité thermique sont les phonons et les électrons. Bien entendu, n'importe quel type d'excitation mobile qui transporte l'entropie contribue à la conductivité thermique totale, ce qui en fait une mesure de transport sensible à tous types de porteurs de chaleur présents dans les matériaux. Cela en fait une sonde clé pour examiner les divers types d'excitations présentes dans les solides ainsi que leur comportement en température et en présence d'un champ magnétique externe.

Les conductivités thermiques longitudinale et transverse sont au cœur de cette thèse en physique expérimentale. Ce chapitre présente les différentes notions nécessaires pour la compréhension de la conductivité thermique dans un matériau. Dans la première section, nous décrivons en détail le principe de la mesure dont les concepts théoriques derrière les conductivités thermiques longitudinale et transverse. Ensuite, les différentes signatures expérimentales typiques des métaux et des isolants non magnétiques y seront présentées. Ces notions sont nécessaires pour la compréhension de cette thèse.

1.1 Principes de base de la conductivité thermique

La conductivité thermique κ caractérise la propagation de la chaleur à travers un matériau. Plus la conductivité thermique d'un matériau est élevée, mieux la chaleur se propage, générant un faible gradient thermique. Inversement, plus la conductivité thermique d'un matériau est faible, et plus facile il sera d'induire un large gradient thermique. Mathématiquement, la conductivité thermique relie la densité de courant thermique \vec{j}_q et le gradient de température selon la loi de Fourier [5]

$$\vec{j}_q = -\kappa \vec{\nabla} T. \quad (1.1)$$

Le signe négatif indique que le courant thermique se propage du côté chaud de l'échantillon vers le côté froid. Notons que cette dernière équation est analogue à la loi d'Ohm

$$\vec{j}_e = -\sigma \vec{\nabla} V, \quad (1.2)$$

reliant la densité de courant électrique \vec{j}_e et le gradient de potentiel $\vec{\nabla} V$ par la conductivité électrique σ .

La conductivité thermique κ est un tenseur de rang deux qui capture la conduction de chaleur longitudinale, *i.e.* lorsque le gradient thermique est parallèle au courant, mais aussi la conduction de chaleur transverse en présence d'un champ magnétique, *i.e.* lorsque le gradient thermique est perpendiculaire au courant de chaleur. C'est à partir de la relation (1.1), en apparence bien simple, que cette thèse repose.

1.1.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}

La conductivité thermique longitudinale, notée κ_{xx} , correspond au coefficient thermique longitudinal du tenseur κ lorsqu'un gradient de température est mesuré dans la direction du courant appliqué selon x et qu'aucun courant électrique ne circule. La loi (1.1) s'exprime,

dans le cas bidimensionnel,

$$\begin{pmatrix} j_{q,x} \\ 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \kappa_{xx} & \kappa_{xy} \\ \kappa_{yx} & \kappa_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial T}{\partial x} \\ \frac{\partial T}{\partial y} \end{pmatrix}. \quad (1.3)$$

En l'absence d'un champ magnétique, $\kappa_{xy}(H = 0) = 0$ et nous obtenons :

$$j_{q,x} = -\kappa_{xx} \frac{\partial T}{\partial x}. \quad (1.4)$$

Notons que même en présence d'un champ magnétique externe, pour le calcul du courant de chaleur longitudinal, nous pouvons négliger les composantes transverses du tenseur $\boldsymbol{\kappa}$ puisque celles-ci sont en général très inférieures à la composante longitudinale : $\kappa_{xy}, \kappa_{yx} \ll \kappa_{xx}$. La densité de courant longitudinale $j_{q,x}$ est la quantité de puissance thermique J_q (en Watt) parcourant une coupe transversale d'un échantillon rectangulaire de surface wt , où w est la largeur de l'échantillon et t son épaisseur. En supposant un gradient thermique uniforme, nous avons, à partir de l'équation (1.4), que

$$J_q = j_{q,x} wt = -\kappa_{xx} \frac{\partial T}{\partial x} wt \approx \kappa_{xx} \Delta T_x \frac{wt}{L}. \quad (1.5)$$

Nous approximons la composante longitudinale du gradient thermique selon

$$\frac{\partial T}{\partial x} \approx \frac{-\Delta T_x}{L} = \frac{T^+ - T^-}{L}, \quad (1.6)$$

avec ΔT la différence de température du point froid vers le point chaud d'un échantillon de longueur L . Ainsi, la conductivité thermique longitudinale s'exprime comme

$$\kappa_{xx} = \frac{J_q}{\Delta T_x} \frac{1}{\alpha}, \quad (1.7)$$

où $\alpha = \frac{wt}{L}$ est le facteur géométrique de l'échantillon. Expérimentalement, la conductivité thermique se mesure lorsqu'on applique une puissance thermique J_q qui génère une différence de température ΔT dans un échantillon de facteur géométrique α . Notons que κ_{xx} demeure constant, et ce, peu importe le courant de chaleur appliqué dans la limite où les gradients de température sont petits.

Comme mentionné précédemment, la conductivité thermique est une sonde sensible à

tout type de porteurs d'entropie dans un solide. Il est cependant possible, en étudiant la dépendance en température ou en champ magnétique de κ_{xx} , d'identifier les différentes contributions à la conductivité thermique totale dans le but de déterminer la nature des porteurs de chaleur. Dans les cas les plus simples, ce sont les électrons et les phonons qui sont responsables du transport thermique. Dans certains matériaux quantiques, d'autres excitations, telles les magnons ou les spinons, contribuent au transport de chaleur total. Ainsi,

$$\kappa_{xx} = \kappa_{xx}^{\text{électrons}} + \kappa_{xx}^{\text{phonons}} + \kappa_{xx}^{\text{magnons}} + \dots \quad (1.8)$$

Il est important de noter que ces différentes contributions de la conductivité thermique totale peuvent interagir entre elles et s'affecter mutuellement. Par exemple, la diffusion électron-phonon affecte à la fois les conductivités thermiques électronique et phononique.

Afin de tirer profit du potentiel expérimental de la conductivité thermique longitudinale, il est important de bien comprendre certains concepts fondamentaux du transport de charges électroniques ainsi que du transport phononique. Ces concepts seront décrits plus en détail dans les prochaines sous-sections.

1.1.2 Effet Hall thermique, κ_{xy}

La conductivité thermique transverse (ou l'effet Hall thermique) notée κ_{xy} , correspond aux composantes transverses du coefficient thermique $\boldsymbol{\kappa}$ lorsqu'un courant de chaleur est appliqué parallèlement à l'axe des x et qu'un champ magnétique H est appliqué parallèlement à l'axe des z . Expérimentalement, il est alors possible de mesurer un gradient thermique transverse ΔT_y . À partir de la relation (1.3), nous obtenons l'équation

$$0 = -\kappa_{xy} \frac{\partial T}{\partial x} + \kappa_{yy} \frac{\partial T}{\partial y}, \quad (1.9)$$

où nous avons utilisé la relation de réciprocity d'Onsager, soit $\kappa_{xy}(H) = -\kappa_{yx}(H)$. Tel que fait pour la conductivité thermique longitudinale, en supposant un gradient thermique uniforme,

nous pouvons effectuer les approximations suivantes

$$\frac{\partial T}{\partial x} \approx \frac{-\Delta T_x}{L}, \quad (1.10)$$

$$\frac{\partial T}{\partial y} \approx \frac{-\Delta T_y}{w}. \quad (1.11)$$

Ainsi, la conductivité thermique transverse s'exprime comme

$$\kappa_{xy} = -\kappa_{yy} \frac{\Delta T_y}{\Delta T_x} \cdot \frac{L}{w}. \quad (1.12)$$

Tout comme la conductivité thermique longitudinale, l'effet Hall thermique est une sonde sensible aux excitations mobiles électroniques et magnétiques dans les solides. Effectivement, il faut appliquer un champ magnétique externe pour pouvoir mesurer cette quantité physique, et donc, toute excitation pouvant être déviée par un champ magnétique est susceptible de donner un signal. Étonnamment, dans la dernière décennie, il a été montré que des matériaux isolants, donc sans charges mobiles, pouvaient générer un effet Hall thermique non nul. Cela est abordé plus en détail dans le chapitre 2.

1.2 Loi de Wiedemann-Franz

La loi de Wiedemann-Franz relie le transport de charge au transport de chaleur. Cette loi indique que pour des métaux, le rapport de la conductivité thermique κ sur la conductivité électrique σ est directement proportionnel à la température. La valeur de proportionnalité est indépendante du métal considéré. Cette loi s'écrit

$$\frac{\kappa}{T} = L_0 \sigma, \quad (1.13)$$

où $L_0 = (\pi^2/3) (k_B/e)^2 = 2.44 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$ est le nombre de Lorenz. Essentiellement, cette loi indique que les porteurs de charge et de chaleur sont les mêmes lorsqu'ils sont affectés par les mêmes mécanismes de diffusion. Cette loi n'est valable que lorsque l'énergie de chaque électron est conservée dans chaque collision, ce qui est le cas de collisions élastiques. La condition à respecter est que la variation d'énergie de chaque électron soit petite devant $k_B T$. Dans le cas des basses températures ($T \rightarrow 0$) (voir régime I de la figure 1.1), la loi

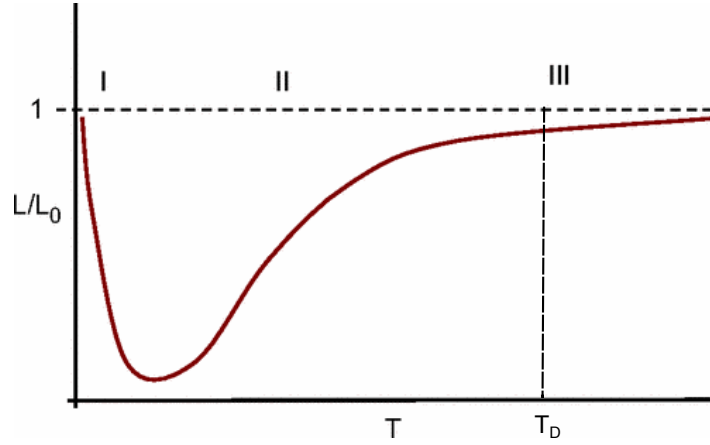


FIGURE 1.1 Ratio du nombre de Lorenz $L = \kappa_{xx}/T\sigma$ normalisé par L_0 en fonction de la température dans un métal conventionnel. La loi de Wiedemann-Franz est satisfaite dans les régions I et III, mais pas dans la région intermédiaire II. Toujours dans le cas d'un métal conventionnel, le passage du régime II à III se produit à la température de Debye (T_D). La figure est adaptée de [6].

est respectée puisque la source dominante des collisions est la diffusion élastique par les impuretés. Lorsque c'est le cas, il est possible de réécrire, pour un modèle électronique à une bande, l'équation (1.13) comme

$$\frac{\kappa_0}{T} = \frac{L_0}{\rho_0}, \quad (1.14)$$

avec ρ_0 la valeur de la résistivité électronique extrapolée à $T \rightarrow 0$. À très haute température, la loi est aussi satisfaite puisque la diffusion par des vibrations thermiques des ions reste petite devant $k_B T$ [5] (voir régime III de la figure 1.1). Ce sont pour les températures intermédiaires ($T > 0$ et $T < T_D$) où la source dominante des collisions est inélastique que la loi de Wiedemann-Franz n'est plus valide (voir régime II de la figure 1.1). Nous pouvons écrire

$$\frac{\kappa}{T} \leq L_0 \sigma \quad (1.15)$$

pour tenir compte des différents régimes.

Dans le canal transverse, la loi de Wiedemann-Franz s'écrit

$$\frac{\kappa_{xy}}{T} = L_0 \sigma_{xy}, \quad (1.16)$$

avec σ_{xy} la conductivité électrique transverse.

Les conductivités électriques σ_{xx} et σ_{xy} peuvent être obtenues à partir de la résistivité ρ_{xx} du matériau ainsi que son effet Hall électrique $\rho_{xy} = R_H H$ via les équations

$$\sigma_{xx} = \frac{\rho_{xx}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2}, \quad (1.17)$$

$$\sigma_{xy} = \frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2}. \quad (1.18)$$

Notons encore une fois que cela est seulement valide pour un modèle électronique à une bande.

1.3 Conductivité thermique dans un métal

1.3.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}

La chaleur dans un métal est principalement transportée par les électrons de conduction. Contrairement au modèle de Drude, qui traite classiquement les électrons dans un métal tel un gaz d'électrons libres, le modèle de Sommerfeld utilise la statistique de Fermi-Dirac pour obtenir la conductivité thermique électronique dans les métaux [5, 7, 8]. Effectivement, seulement les électrons dans l'intervalle $k_B T$, avec k_B la constante de Boltzmann, près du niveau de Fermi peuvent contribuer au transport de chaleur. Dans ce modèle, la conductivité thermique électronique est le produit de la chaleur spécifique électronique C_e , de la vitesse de Fermi v_F ainsi que du libre parcours moyen des électrons ℓ_e

$$\kappa_{xx}^e = \frac{1}{3} C_e v_F \ell_e. \quad (1.19)$$

La dépendance en température de la conductivité thermique électronique dépend donc de la chaleur spécifique et du libre parcours moyen. La chaleur spécifique, quantité d'énergie à fournir pour élever la température du solide d'un degré Kelvin, s'obtient à partir de l'énergie

interne U du gaz d'électrons libres de volume constant : $C_e = \left. \frac{\partial U}{\partial T} \right|_V$. De cette façon, en utilisant la distribution de Fermi-Dirac, nous avons

$$C_e = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 T g(E_F) \quad (1.20)$$

où $g(E_F)$ est la densité d'état à l'énergie de Fermi. Ainsi, la chaleur spécifique électronique est linéaire en fonction de la température. En combinant (1.19) et (1.20), nous obtenons

$$\kappa_{xx}^e = \frac{\pi^2}{9} k_B^2 T g(E_F) v_F \ell_e. \quad (1.21)$$

À basse température, lorsque $T \rightarrow 0$, le libre parcours moyen électronique ℓ_e est indépendant de la température. La conductivité thermique électronique est linéaire en température ($\kappa_{xx}^e \propto T$) et dépend de la densité d'état. Ce sont les impuretés qui viennent le plus influencer la pente de la conductivité thermique, qui par le même coup, viendront limiter le maximum de conduction. À plus haute température, les diffusions électrons-électrons et électrons-phonons ou phonons-phonons dominant et modifient la dépendance en température du libre parcours moyen et, par conséquent, celle de la conductivité thermique longitudinale dans les métaux. La figure 1.2 illustre ces propos dans le cas de l'aluminium.

Bien que nous ayons obtenu cette relation pour un liquide de Fermi, puisque nous avons utilisé la statistique de Fermi-Dirac pour obtenir (1.21), cette équation est valide pour tous types de porteurs d'origine fermionique.

Il est possible d'isoler la contribution électronique à la conductivité thermique longitudinale en traçant les mesures comme κ_{xx}/T en fonction de T à basse température ($T \rightarrow 0$). De cette façon, le terme linéaire d'origine fermionique devient la valeur résiduelle (appelée κ_0/T) de la conductivité thermique. Conséquemment, la conductivité thermique longitudinale devient une excellente sonde des excitations fermioniques dans les solides.

1.3.2 Effet Hall thermique, κ_{xy}

Les électrons de conduction dans un métal peuvent donner lieu à un effet Hall thermique sous champ magnétique. Cet effet dans les métaux porte aussi le nom d'effet Righi-Leduc. Effectivement, sous un champ magnétique, les électrons qui transportent l'énergie et la charge

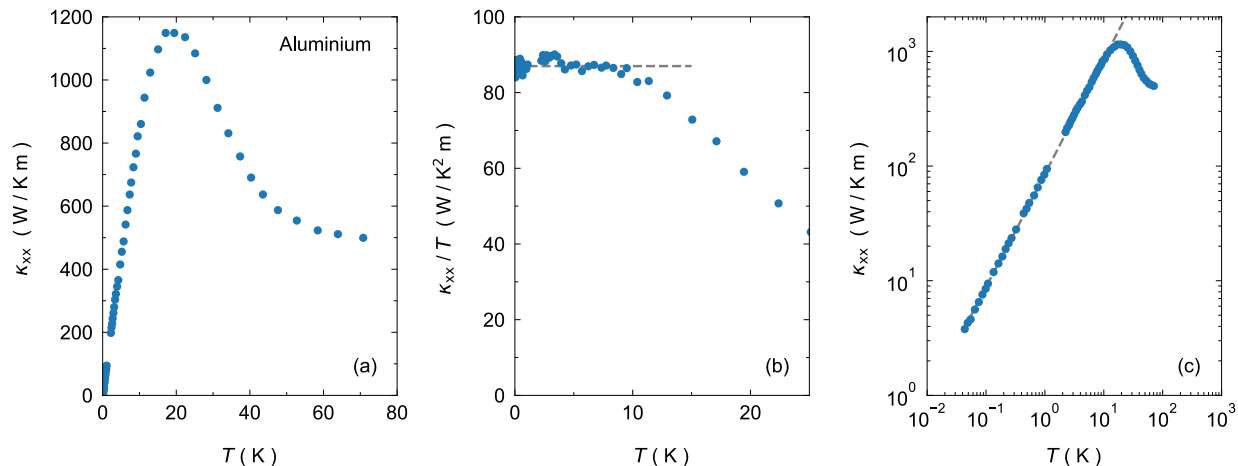


FIGURE 1.2 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx} , de l'aluminium. (a) Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de la température T . On observe trois régimes : 1–conductivité thermique linéaire à basse température ($T < 10$ K), 2–sommet de la conductivité thermique limité par la diffusion des phonons autour de 20 K et 3–processus de diffusion divers (phonons-phonons, phonons-électrons, électrons-électrons) ($T > 25$ K). (b) Conductivité thermique tracée comme κ_{xx}/T vs T pour séparer la contribution électronique des autres contributions à basse température. (c) Conductivité thermique sur une échelle log-log pour montrer la linéarité de la dépendance en température à basse T . Figure adaptée de [9].

sont déviés par la force de Lorentz. Cela résulte en une différence de température transverse. Comme expliqué à la section 1.2, à basse température, la loi de Wiedemann-Franz dans le canal transverse permet de confirmer l'origine électronique de l'effet Hall thermique dans les métaux. Cela a entre autres été montré dans l'indium (In) [10], le nickel (Ni) [11], les cuprates Nd-LSCO $p = 0.24$ [2] (voir Figure 1.3) et $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ [12] et le fermion lourd CeCoIn_5 [13] (voir figure 1.3).

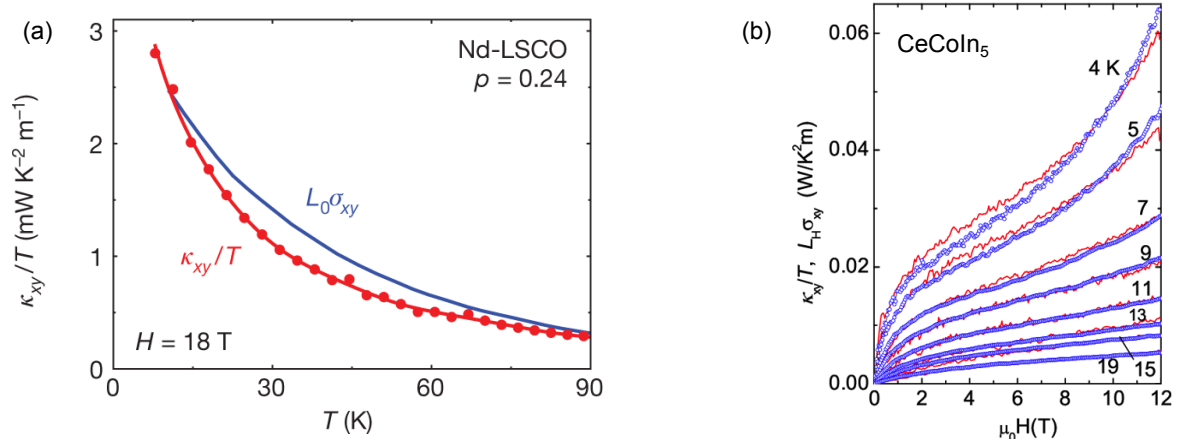


FIGURE 1.3 Effet Hall thermique dans des métaux. (a) La conductivité thermique transverse κ_{xy}/T tracée en fonction de la température (points rouges) pour Nd-LSCO $p = 0.24$ suit la courbe expérimentale $L_0\sigma_{xy}$ (bleu). Les données proviennent de [2]. (b) Plusieurs courbes de κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique H pour différentes températures dans le fermion lourd CeCoIn₅ sont tracées en bleu. Celles-ci sont comparées à $L_0\sigma_{xy}$ (en rouge). Les données proviennent de [13]. Dans ces deux composés métalliques, la loi de Wiedemann-Franz confirme l'origine électronique de l'effet Hall thermique.

1.4 Conductivité thermique dans un isolant

1.4.1 Conductivité thermique longitudinale, κ_{xx}

Dans un isolant électrique non magnétique, seuls les phonons vont contribuer à la conductivité thermique. La conductivité thermique phononique est donnée par

$$\kappa_{xx}^{ph} = \frac{1}{3} C_{ph} v_{ph} \ell_{ph}, \quad (1.22)$$

où v_{ph} est la vitesse du son dans le matériau, C_{ph} est la chaleur spécifique des phonons et ℓ_{ph} leur libre parcours moyen. Le modèle de Debye prédit que la chaleur spécifique des phonons à basse température est [7, 14]

$$C_{ph} = \frac{2\pi^2}{5} k_B \left(\frac{k_B T}{\hbar v_{ph}} \right)^3. \quad (1.23)$$

Ainsi, la conductivité thermique des phonons devient

$$\kappa_{xx}^{ph} = \frac{2\pi^2}{15} \frac{\ell_{ph} k_B^4}{\hbar^3 v_{ph}^2} T^3. \quad (1.24)$$

La dépendance en température de κ_{xx}^{ph} provient de la chaleur spécifique si le libre parcours moyen est indépendant de la température. C'est souvent le cas à basse température $T \rightarrow 0$ où le libre parcours moyen des phonons est limité par les dimensions de l'échantillon. Par contre, le libre parcours moyen des phonons peut être influencé par différents processus de diffusion. C'est ce qui est discuté à la prochaine sous-section.

1.4.2 Processus de diffusion des phonons

Les phonons peuvent être diffusés dans un solide selon différents mécanismes. Chaque mécanisme de diffusion peut être caractérisé par un taux de collision $1/\tau$, où τ est le temps de relaxation entre deux collisions. Il relie aussi le libre parcours moyen par $\ell_{ph} = v_{ph}\tau$. La dépendance en température de $1/\tau$ dépend donc des différents mécanismes de diffusion présents. Tous les taux de diffusions peuvent être pris en compte en utilisant la règle de Matthiessen

$$\frac{1}{\tau_{total}} = \frac{1}{\tau_{Umklapp}} + \frac{1}{\tau_{impuretés}} + \frac{1}{\tau_{limites}} + \frac{1}{\tau_{é-ph}} + \dots \quad (1.25)$$

Limite phononique balistique

À très basse température, dans la limite $T \rightarrow 0$, les seuls processus de diffusion possibles sont avec les parois de l'échantillon. Dans cette limite, seuls les modes de phonons acoustiques sont présents. Ainsi, plus la température diminue, plus la longueur d'onde des phonons augmente jusqu'à ce que les défauts cristallins locaux deviennent inefficaces pour diffuser ces derniers. Le libre parcours moyen des phonons augmente jusqu'à être diffusé par les limites des dimensions de l'échantillon, c'est-à-dire $l_{ph} = 2\sqrt{wt/\pi}$ [15]. Ce type de diffusion est indépendant de la température. Ainsi, à basse température, dans une limite de diffusion balistique, la conductivité thermique des phonons varie en T^3 comme la chaleur spécifique ($\kappa_{xx} \propto T^3$).

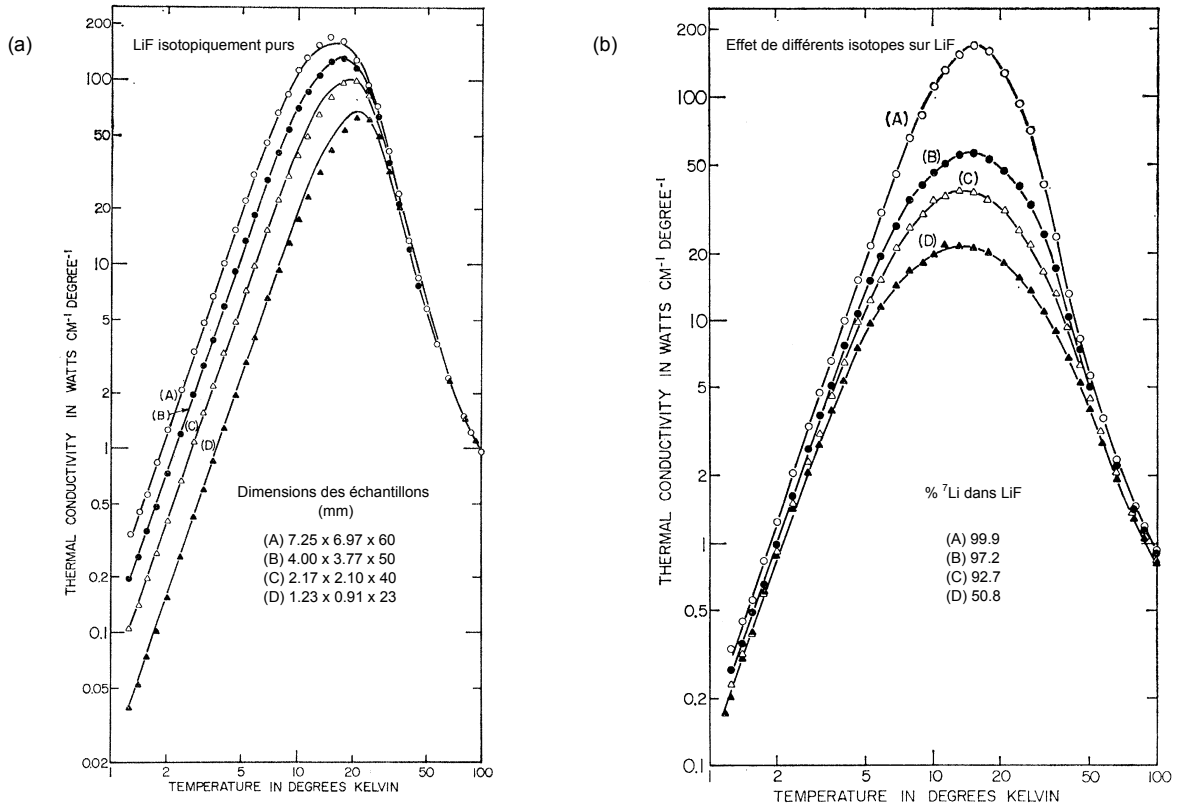


FIGURE 1.4 Conductivité thermique longitudinale κ_{xx} de LiF. (a) Conductivité thermique de différents cristaux de LiF isotopiquement purs. Sous $T < 10$ K, la dépendance en température est en T^3 et est limitée par les dimensions des échantillons. Plus l'aire de la section efficace est grande, plus la conductivité est importante. (b) Effet de différents isotopes sur la conductivité thermique du LiF. Plus l'échantillon est pur (courbe A), plus le pic des phonons est grand. Les figures proviennent de [16].

La figure 1.4 (a) illustre bien ce cas de figure dans le composé isolant LiF [16]. Tel que montré, la dépendance en température de la conductivité thermique pour $T < 10$ K varie en T^3 . Lorsque l'aire de la section efficace de l'échantillon est réduite, la pente de la conductivité thermique diminue elle aussi. Cela a aussi été vérifié dans différents autres matériaux, dont SmB_6 , Nd_2CuO_4 et Al_2O_3 [17, 15, 18].

Notons que dans certains cas, la surface peut réfléchir les phonons comme sur un miroir, rendant ainsi le libre parcours moyen plus grand que la limite balistique. Cela peut être le cas dans des matériaux particulièrement lisses, naturellement ou suite à un polissage. C'est ce que l'on nomme la réflexion spéculaire [15]. Dans ce cas, le libre parcours moyen dépend de la température et la dépendance en température de la conductivité thermique devient

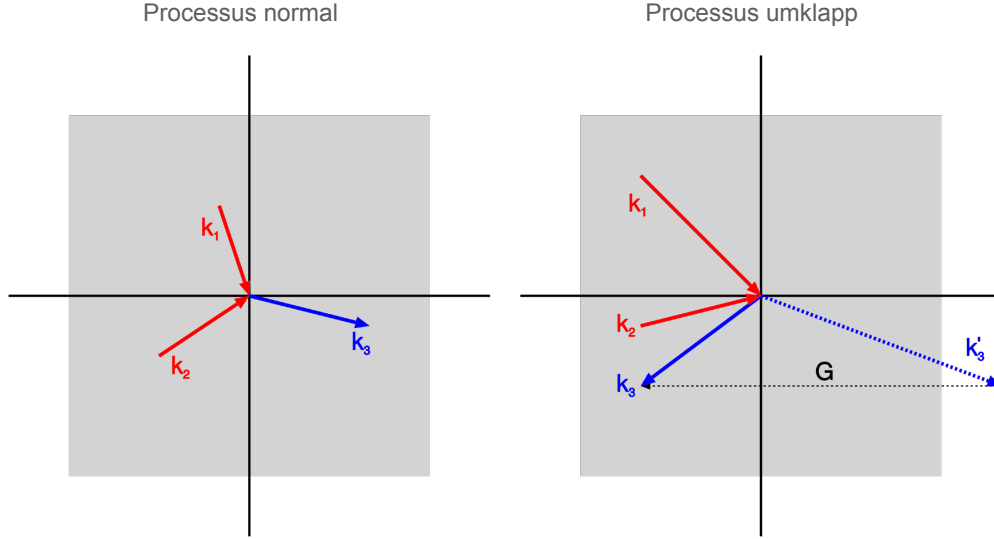


FIGURE 1.5 Mécanisme de collision des phonons de type normal ($\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$) et avec umklapp ($\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{G}$), dans un réseau carré à deux dimensions. La zone foncée carrée représente la première zone de Brillouin dans l'espace réciproque. Notons qu'en changeant de maille primitive, il est possible de transformer un processus umklapp en processus normal, et vice versa. La figure est adaptée de [19].

$$\kappa_{xx} \propto T^\alpha \text{ où } 2 \leq \alpha \leq 3.$$

Diffusions phonons-phonons

Lorsque la température augmente et que nous ne sommes plus dans la limite $T \rightarrow 0$, les processus de diffusion phonons-phonons dominent. Dans un premier temps vient le processus normal qui implique seulement des phonons de basses énergies. La conductivité thermique dévie de T^3 puisque le libre parcours moyen ne dépend plus seulement des dimensions de l'échantillon. Lorsque la température augmente encore, la conductivité thermique atteint un sommet appelé pic des phonons avant de diminuer puisque les diffusions umklapp deviennent plus fréquentes.

Considérons l'interaction de deux phonons de vecteurs d'onde positifs \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 et d'énergie $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$. Lors d'une collision, ces deux phonons peuvent, par conservation du moment cristallin, fusionner en un seul phonon de vecteur d'onde \mathbf{k}_3 , lui aussi positif. L'énergie est conservée ($\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3$) dans ce processus de collision à trois phonons, tout comme les vecteurs d'ondes ($\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{G}$) où \mathbf{G} est un vecteur du réseau réciproque. Si $\mathbf{G} = 0$, alors \mathbf{k}_3 est dans la première zone de Brillouin : il s'agit d'un processus de diffusion normal

(ou mécanisme N). Ainsi, les phonons gardent la même quantité de mouvement lors d'une collision et se propagent tout au long du cristal, sans perturbation. La figure 1.5 (a) montre le mécanisme de diffusion des phonons normal.

Si $\mathbf{G} \neq 0$, alors \mathbf{k}_3 sort de la première zone de Brillouin : il s'agit d'un processus umklapp («retournement» en allemand). À haute température, l'énergie des phonons \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 est suffisante pour obtenir un processus umklapp si elle est de l'ordre de $\frac{1}{2}k_B T$, car chacun des phonons \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 doit avoir un vecteur d'onde de l'ordre $\frac{1}{2}\mathbf{G}$ pour que la collision soit possible [7]. D'après la loi de Boltzmann, le nombre de phonons de haute énergie varie comme $e^{-\theta/2T}$ avec $\theta = \hbar\omega_D/k_B$ la température de Debye et ω_D la fréquence de Debye [5]. Ainsi, le libre parcours moyen est proportionnel à l'exponentielle $\ell_{ph} \propto e^{1/T}$. Cela explique la diminution rapide de la conductivité thermique à plus haute température puisque le nombre de phonons pouvant participer au processus umklapp augmente de façon exponentielle. La chaleur spécifique reste en T^3 , mais l'exponentielle est le terme dominant de sorte que $\kappa_{xx} \propto e^{1/T}$.

À plus haute température (pour $T > \theta$), le libre parcours moyen des phonons est proportionnel à $\frac{1}{T}$, puisque la fréquence de collision d'un phonon donné doit être proportionnelle au nombre de phonons qu'il peut rencontrer, d'où $\ell_{ph} \propto \frac{1}{T}$. Notons aussi qu'à ces températures, la chaleur spécifique des phonons est indépendante de la température, car toutes les branches de phonons ont été peuplées thermiquement. Ainsi, $\kappa_{xx} \propto 1/T$.

Défauts cristallins

Les défauts cristallins peuvent également limiter le libre parcours moyen des phonons dans les solides. Effectivement, les défauts (comme des impuretés ioniques ou des dislocations) perturbent la périodicité du réseau parcouru par l'onde élastique, ajoutant donc des processus de diffusion supplémentaires pour les phonons. À basse température, où le libre parcours moyen est limité par les dimensions de l'échantillon, ce processus est négligeable. Cependant, à plus haute température, les défauts cristallins diminuent le libre parcours moyen des phonons, limitant ainsi leur la conductivité thermique. Une conséquence notable est la diminution du pic des phonons lorsque le nombre d'impuretés augmente dans un cristal. Cela est montré à la figure 1.4 (b) dans le cas du composé isolant LiF [16]. Il est donc possible de comparer la pureté de différents échantillons en comparant l'amplitude du pic des phonons.

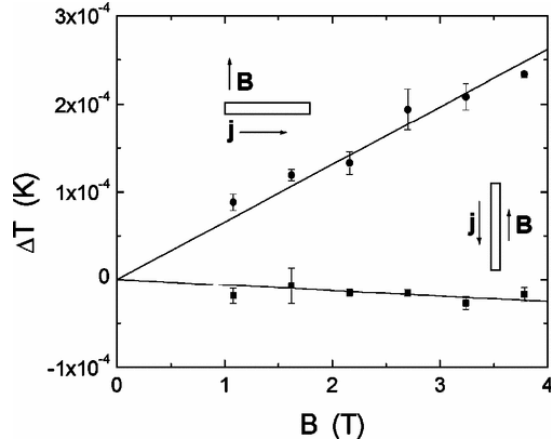


FIGURE 1.6 Effet Hall thermique phononique dans le grenat $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Le gradient thermique transverse ΔT_y est tracé en fonction du champ magnétique B pour un champ perpendiculaire (cercles) et parallèle (carrés) au courant de chaleur. Le courant thermique a généré un gradient ΔT_y de 1mK/cm lorsque le champ est perpendiculaire au courant de chaleur. Par contre, comme attendu, lorsque le champ est parallèle au courant de chaleur, le signal ΔT_y est nul. La figure provient de [20].

1.4.3 Effet Hall thermique, κ_{xy}

Contrairement aux électrons, les phonons ne peuvent interagir avec le champ magnétique sous l'influence de la force de Lorentz, car ils n'ont pas de charge. Donc, dans le cas des isolants, il n'est pas attendu de mesurer un effet Hall thermique. Cependant, et c'est le cœur du chapitre 2, certains isolants présentent un effet Hall thermique.

La première étude d'effet Hall thermique des phonons est attribuée à Strohm et collaborateurs en 2005 dans le grenat paramagnétique $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (TGG) [20]. En étudiant l'effet magnétotransverse, mesure similaire à la conductivité thermique, les auteurs ont découvert un signal ΔT_y positif de l'ordre de $200 \mu\text{K}$ à 5.45 K sous un champ magnétique de 4 T [20, 21]. (Notons ici que le signal mesuré est extrêmement petit !)

Les cristaux TGG sont cubiques et les ions de terres rares Tb^{3+} possèdent un très grand moment magnétique. Ces moments créent une excellente source de diffusion pour les phonons, tel que rapporté par de précédentes mesures de la conductivité thermique longitudinale [22].

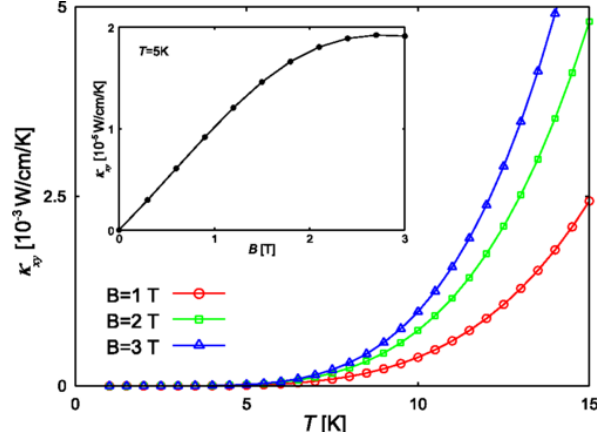


FIGURE 1.7 Calcul de l'effet Hall thermique phononique prédit par Mori et collaborateurs [29] dans le grenat $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, tracé comme κ_{xy} en fonction de la température. La sous-figure montre l'évolution en champ de κ_{xy} à $T = 5$ K.

Cette première observation expérimentale de l'effet Hall thermique des phonons a motivé de nombreuses études théoriques. De nombreux mécanismes ont été proposés pour expliquer l'origine de cet effet Hall thermique dont le couplage spin-phonon [23, 24, 25], la courbure de Berry [26, 27], ou encore les liaisons ioniques [28].

Aujourd'hui, il est accepté que l'origine de l'effet Hall thermique dans le grenat TGG est causée par la diffusion asymétrique (*skew scattering* en anglais) des phonons sur le champ cristallin généré par les grands moments des ions superstoechiométriques Tb^{3+} [29]. Ce scénario intrinsèque de conductivité thermique transverse des phonons proposé par Mori et collaborateurs permet d'obtenir un effet Hall thermique de la même amplitude que l'expérience à $T = 5$ K. De plus, ils prédisent l'augmentation de l'effet Hall thermique en fonction de la température, soit un ordre de grandeur plus grand pour $T = 10 - 15$ K (voir figure 1.7).

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit les coefficients thermiques de conductivité longitudinale, κ_{xx} , et transverse, κ_{xy} . Nous avons aussi exploré les comportements attendus qui nous seront utiles à l'interprétation des résultats expérimentaux présentés dans cette thèse. Quoique surprenant, il est possible d'observer un effet Hall thermique produit par des phonons. Cependant, ce signal attendu est très faible, et nécessite des conditions très particulières.

Le prochain chapitre présente une revue de la littérature des plus récents développements de l'effet Hall thermique. Nous parcourons aussi plus en détail les signatures de l'effet Hall thermique dans divers isolants, ainsi que les théories diverses expliquant ces effets. La motivation de la thèse se pose sur ces concepts nouveaux.

Chapitre 2

Effet Hall thermique dans les matériaux quantiques

L'effet Hall thermique est un outil puissant pour sonder les excitations mobiles dans les matériaux quantiques. Cette sonde se révèle très efficace pour détecter les excitations d'origines fermioniques ou magnétiques, mais serait aussi sensible à la nature topologique de phases magnétiques dans les matériaux quantiques [1, 30].

L'effet Hall thermique se mesure lorsqu'un courant de chaleur est appliqué d'un côté d'un échantillon ancré thermiquement (selon l'axe des x) et qu'un champ magnétique appliqué perpendiculairement à ce dernier (selon l'axe des z) génère un gradient thermique transverse (selon l'axe des y).

Intuitivement parlant, et comme montré au chapitre 1 dans le cas des métaux, tout type de particule chargée pourrait générer un effet Hall thermique dans les solides via la force de Lorentz. Cependant, l'effet analogue produit par des particules non chargées, tels les phonons, les magnons ou les spinons, qui ne se couplent pas au champ magnétique par des mécanismes connus constitue un sujet de recherche émergent en matière condensée. Dans ce chapitre, nous explorons les récentes découvertes de la conductivité thermique transverse dans divers matériaux quantiques, dont les cuprates supraconducteurs. Le but est de mettre la table pour bien situer la problématique de cette thèse.

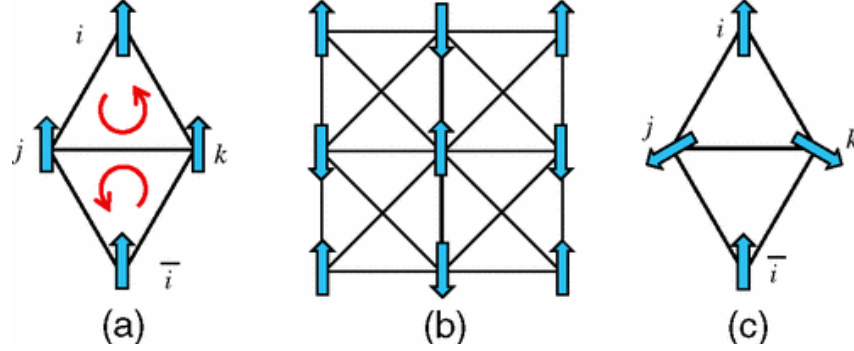


FIGURE 2.1 Différentes structures où le théorème «no-go» s’applique et qu’il n’est pas attendu d’observer un effet Hall thermique des magnons. (a) Réseau triangulaire montrant un ordre ferromagnétique. Les flèches bleues indiquent les spins. Les flèches rouges indiquent le sens de la rotation (antihoraire) du Hamiltonien $\mathcal{H}_{\text{ring}}$ (voir équation (2.1)). (b) Réseau carré antiferromagnétique colinéaire où les interactions selon les diagonales sont plus courtes que selon les axes horizontal et vertical. (c) Réseau triangulaire avec une orientation des spins à 120° . La figure provient de [1].

2.1 Mise en contexte et revue de la littérature

2.1.1 Effet Hall thermique des magnons, spinons et particules exotiques

Le phénomène d’effet Hall thermique dans des matériaux quantiques isolants tels les aimants quantiques a été exploré théoriquement par le groupe du professeur Lee en 2010 [1]. Dans de tels systèmes, la chaleur est transportée par des excitations neutres comme les magnons ou les spinons. Afin de produire un effet Hall thermique non nul, la symétrie d’inversion du temps doit être brisée. Dans les aimants isolants, les électrons sont localisés et donc la force de Lorentz ne peut générer un effet Hall thermique. Lors de l’application d’un champ magnétique, la chiralité de spin des électrons de forme $\vec{S}_i \cdot (\vec{S}_j \times \vec{S}_k)$ joue un rôle clé. Ce couplage provient du terme

$$\mathcal{H}_{\text{ring}} = -\frac{24t^3}{U^2} \sin(\Phi) \vec{S}_i \cdot (\vec{S}_j \times \vec{S}_k), \quad (2.1)$$

dans l’expansion t/U du modèle de Hubbard à demi remplissage avec l’interaction coulombienne U et le terme de couplage $t = te^{iA_{ij}}$ [1]. Cet Hamiltonien de couplage contient le flux

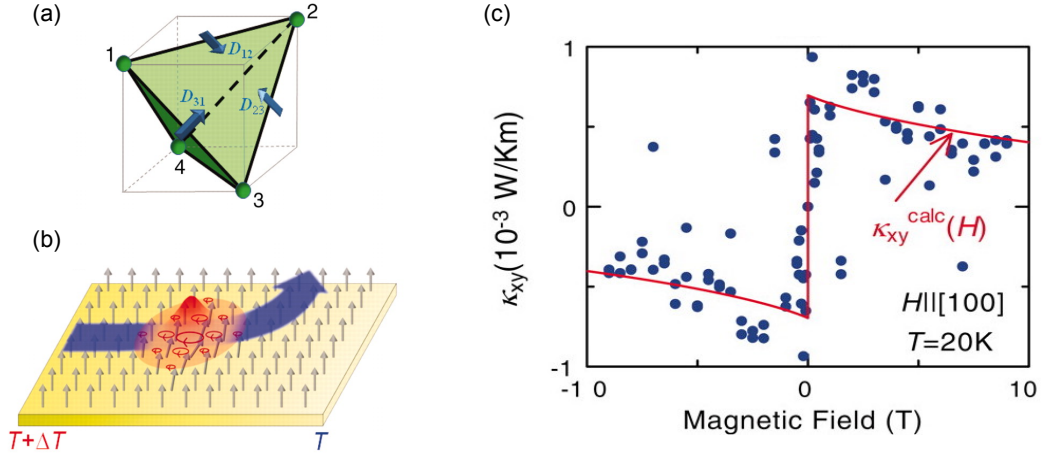


FIGURE 2.2 Effet Hall thermique des magnons dans le pyrochlore $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$. (a) Schéma de la sous-structure d’ions de Vanadium ainsi que des vecteurs DM orientés vers l’intérieur de cette structure. (b) Schéma de l’effet Hall thermique des magnons. Ces derniers se propagent de la région chaude vers la région froide et sont déviés par le potentiel vecteur effectif qui sert de champ orbital généré par les interactions DM dans le solide (voir texte). (c) Mesure d’effet Hall thermique en fonction du champ magnétique (points bleus). En rouge, la conductivité thermique de Hall calculée selon un modèle théorique des magnons est tracée (équation (2.3) avec $JS = 8D_s/a^2$). La figure provient de [31].

magnétique entre trois spins, Φ , sur les sites i, j , et k formant le plus petit triangle dans la structure. Le sens du flux magnétique est inverse à celui des aiguilles d’une montre. Ce terme est supposé aussi très petit, puisqu’il est proportionnel à t^3/U^2 . Dans l’étude du groupe du professeur Lee, les auteurs sont arrivés à la conclusion qu’il pouvait exister un effet Hall thermique dans les systèmes magnétiques selon certaines considérations.

Premièrement, le théorème «no-go» empêche l’apparition d’un κ_{xy} dans certains systèmes magnétiques ordonnés (tel que montré à la figure 2.1), puisque par symétrie, le Hamiltonien (2.1) est nul. Deuxièmement, si la symétrie du système le permet, les magnons peuvent donner un effet Hall thermique intrinsèque, puisque le couplage entre le système de spins et le Hamiltonien de couplage sera non nul. Ce couplage génère un champ effectif pouvant dévier les magnons et générer un effet Hall thermique. C’est le cas, par exemple, des matériaux magnétiquement désordonnés.

Suite à cet article, les magnons ont été tenus responsables de l’effet Hall thermique dans le ferroaimant isolant $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ [31]. Effectivement, la structure unique de ce pyrochlore

permet des interactions Dzyaloshinskii-Moria (DM) de la forme

$$\mathcal{H}_{\text{DM}} = \sum_{\langle ij \rangle} \vec{D}_{ij} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_j) \quad (2.2)$$

où \vec{D}_{ij} est le vecteur DM entre les sites i et j , et \vec{S}_i l'opérateur de spin de l'ion V^{4+} au site i . Cette interaction favorise donc une torsion relative entre des spins autrement parallèles ou antiparallèles. C'est grâce à ces interactions que les magnons génèrent un effet Hall thermique. De ce fait, l'ajout de ce terme au Hamiltonien du système crée un potentiel vecteur effectif ϕ_{ij} qui sert de champ orbital pour dévier les magnons. La conductivité thermique des magnons suit alors la formule théorique [31, 1]

$$\kappa_{\alpha\beta}(H, T) = \Phi_{\alpha\beta} \frac{k_B^2 T}{\pi^{3/2} \hbar a} \left(2 + \frac{g\mu_{\text{BH}}}{2JS} \right)^2 \times \sqrt{\frac{k_B T}{2JS}} Li_{5/2} \left[\exp \left(-\frac{g\mu_{\text{BH}} H}{k_B T} \right) \right], \quad (2.3)$$

avec a le paramètre de maille, $\Phi_{\alpha\beta} = -\epsilon_{\alpha\beta\gamma} n_\gamma |\vec{D}_{ij}| / (8\sqrt{2}J)$ dont $\epsilon_{\alpha\beta\gamma}$ est le tenseur asymétrique et $Li_n(z) = \sum_{k=1}^{\infty} \frac{z^k}{k^n}$ est une fonction polylogarithmique. Tel que montré à la figure 2.2, le modèle théorique proposé est en accord avec les données expérimentales.

Suite à cette étude, d'autres articles théoriques ont complété le modèle proposé par les auteurs, en ajoutant des termes correctifs au Hamiltonien pour tenir compte des effets de bords et de la courbure de Berry des magnons [32, 33, 34]. Le point important à retenir est la présence d'interaction DM pour perturber le système magnétique de base et générer l'effet Hall thermique des magnons. L'effet Hall thermique des magnons a aussi été observé dans les ferroaimants $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ [35], $\text{Ho}_2\text{V}_2\text{O}_7$ [35] et plus récemment dans l'antiferroaimant $\text{Na}_2\text{Co}_2\text{TeO}_6$ [36].

Finalement, toujours selon cette théorie, les spinons, particules fermioniques sans charge, pourraient donner un effet Hall thermique intrinsèque non nul dans les liquides de spins. La condition est que la structure soit de type Kagomé ou pyrochlores. Cela serait possible, selon les auteurs, dans le candidat liquide de spin κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ [1], où une surface de Fermi 2D provenant des spinons serait présente [37]. Ainsi, les spinons, suite à un couplage du Lagrangien du système et du champ magnétique, pourraient être influencés par la force de Lorentz et donner un signal κ_{xy} . Cette théorie ouvre donc la porte à une nouvelle avenue expérimentale de la physique, soit la signature expérimentale de particules sans charges, comme les spinons, dans certains matériaux quantiques.

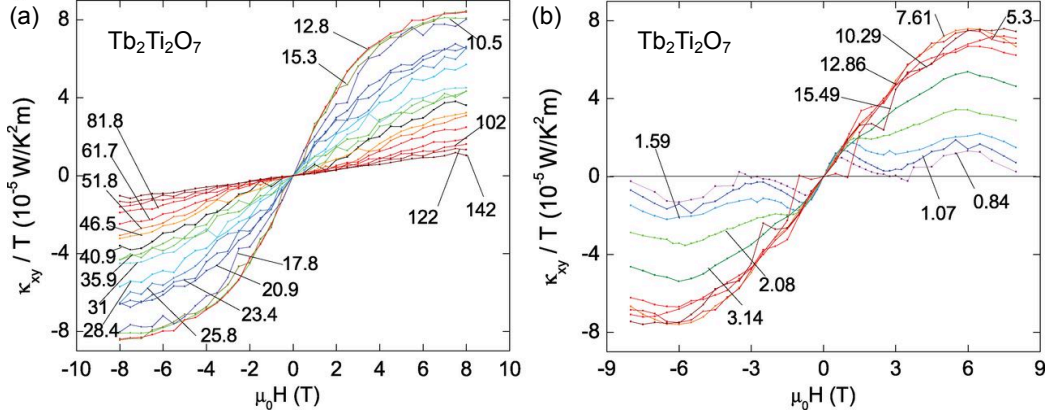


FIGURE 2.3 Mesure de l'effet Hall thermique κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique H et de la température dans $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. (a) Pour $100 < T < 142$ K, κ_{xy}/T est linéaire en champ. Ensuite, on observe une déviation jusqu'à 15 K. (b) Sous 3 K, un pic dans la conductivité thermique transverse est observé près de 1 T et le profil de la dépendance en champ change complètement. Les auteurs attribuent ce signal aux spinons. La figure provient de [30].

En 2015, Hirschberger et collaborateurs ont publié l'observation surprenante d'un effet Hall thermique dans $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, un composé isolant de terres rares de structure pyrochlore [30]. Ce matériau est dit magnétiquement frustré et est considéré comme un *quantum spin ice* (QSI), puisqu'aucun ordre magnétique à longue portée n'est détecté jusqu'à 50 mK. Il s'agit d'un nouveau type de liquide de spin où le système ne parvient jamais à trouver un équilibre magnétique, laissant ainsi la place à des excitations itinérantes sans charge, possiblement des spinons. Comme prédit par Lee [1], si ces excitations sont présentes, elles devraient pouvoir être mesurées en conductivité thermique transverse. Les résultats des mesures sont montrés à la figure 2.3 pour un cristal de $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ avec un courant de chaleur dans l'orientation [111]. On observe un signal κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique $\mu_0 H$ sur une très grande plage de températures, allant de 0.84 K à 122 K. κ_{xy}/T est linéaire en champ pour $100 < T < 122$ K, suggérant différents profils magnétiques du système. Bien que le signal κ_{xy}/T observé soit faible (de l'ordre de 10^{-5} W/K²), les auteurs ont écarté les phonons ou les magnons pour expliquer l'effet Hall thermique. Puisque la conductivité thermique κ_{xx} est linéaire sous 1 K, comportement attendu pour un métal, les auteurs concluent que κ_{xy} est d'origine fermionique, c'est-à-dire des spinons. De plus, selon les auteurs, la dépendance en champ magnétique n'étant pas linéaire de façon constante en température, les phonons ne seraient donc pas responsables de ce signal. Ainsi, leur résultat suggère que l'effet Hall thermique provient d'excitations fermioniques neutres déviées par une force semblable

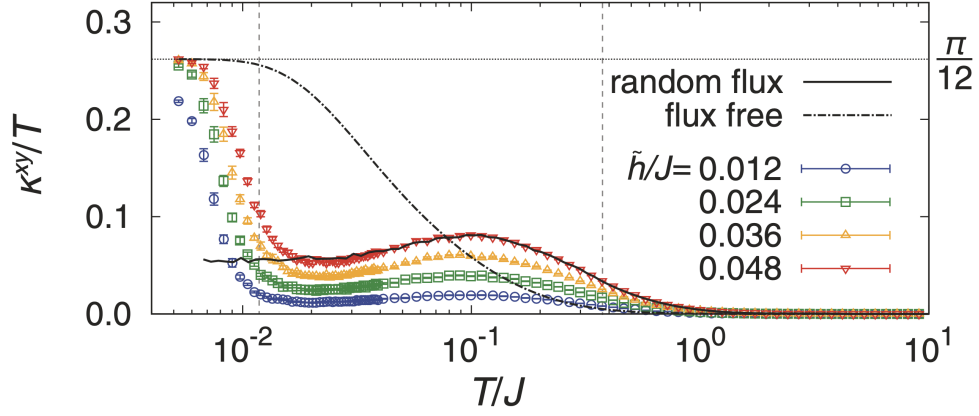


FIGURE 2.4 Calculs théoriques de l’effet Hall thermique des fermions de Majorana dans un modèle de Kitaev. Les données sont tracées en κ_{xy}/T (avec $\hbar = k_B = 1$) en fonction de la température normalisée T/J . Différents champs magnétiques \tilde{h}/J sont affichés. La valeur atteinte à $T \rightarrow 0$ est égal à $\pi/12$, comme le prédit l’équation (2.4). La figure provient de [43].

à la force de Lorentz.

Notons toutefois que les auteurs n’ont pas discuté dans l’article du rôle des ions de Tb^{3+} (voir section 1.4.3). Selon Mori et collaborateurs, la diffusion asymétrique des phonons sur les ions superstoéchiométriques générerait un effet Hall thermique non négligeable [29]. Plus récemment, une étude d’effet Hall thermique sur $(Tb_{0.3}Y_{0.7})_2Ti_2O_7$, composé où les ions Tb^{3+} sont substitués par Y^{3+} , montre un effet Hall thermique de grandeur comparable à $Tb_2Ti_2O_7$ [38]. Leur conclusion est que les phonons sont responsables du signal, puisque le mécanisme d’excitation magnétique est grandement modifié. Cela suggère une révision de l’interprétation de Hirschberger et collaborateurs de l’origine de l’effet Hall thermique dans $Tb_2Ti_2O_7$.

Suite à cette découverte, la théorie sur l’effet Hall de spin par le groupe de Lee s’est raffinée [39] et d’autres mesures dans d’autres isolants magnétiques frustrés ont rapporté la présence d’excitations de spins par des mesures de κ_{xy} [40, 41, 42].

En 2017, une étude de Nasu et collaborateurs [43] prédit que dans les candidats liquides de spin de type Kitaev [44], un effet Hall thermique non nul serait généré par des fermions de Majorana. Ainsi, la mesure d’un effet Hall thermique quantifié serait une preuve directe de l’existence de ces quasi-particules quantiques qui sont à la fois leurs antiparticules, jamais mesurées à ce jour, tout en confirmant que le système est un liquide de spin. La notion d’effet Hall thermique quantifié est importante dans ce modèle. En effet, dans ce modèle

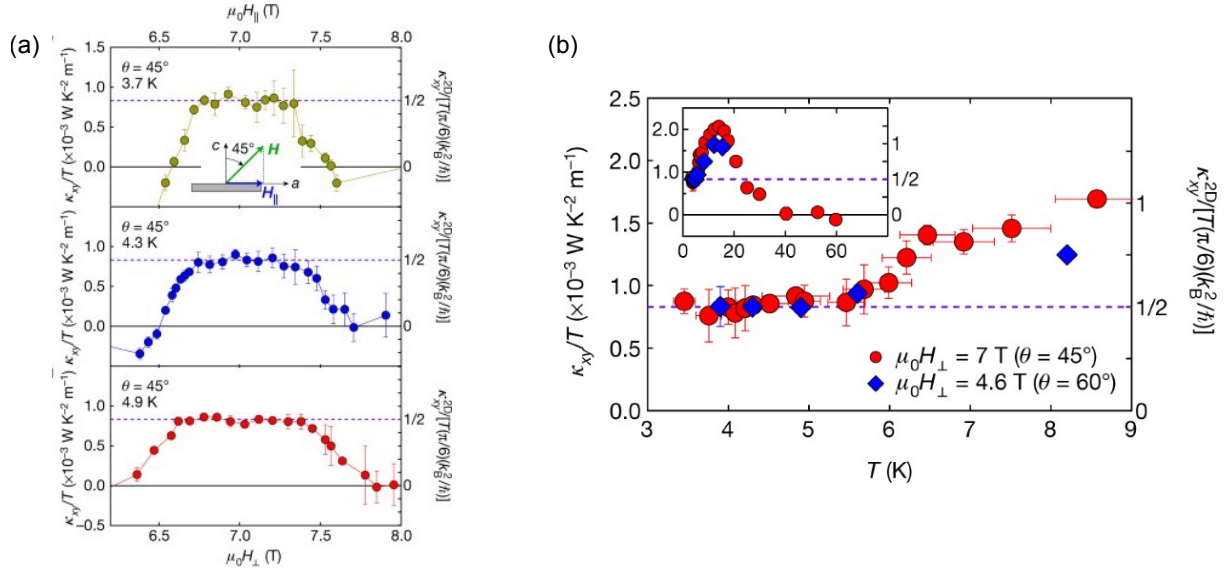


FIGURE 2.5 (a) κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique $H_{||}$ et H_{\perp} dans α -RuCl₃. La ligne pointillée correspond à la valeur théorique prédite de la quantification de l'effet Hall thermique pour le modèle de Kitaev. (b) κ_{xy}/T en fonction de la température dans α -RuCl₃. Pour un champ $H_{\perp} = 7$ T et 4.6 T, un plateau apparaît sous 5 K. La figure provient de [45].

magnétiquement frustré, lorsqu'un champ magnétique est appliqué, un gap se crée dans la densité d'état de volume. Ce gap est non-trivial, générant ainsi des états de bords où les fermions de Majorana peuvent se déplacer. Ces derniers conduisent la chaleur comme [45]

$$\frac{\kappa_{xy}^{2D}}{T} = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi k_B^2}{6\hbar} \right), \quad (2.4)$$

où κ_{xy}^{2D} est la conductivité thermique transverse par plan bidimensionnel, et k_B la constante de Boltzmann. Ainsi, l'effet Hall thermique est quantifié en unité de conductance $\pi k_B^2/6\hbar$. Le facteur 1/2 vient du fait que les fermions de Majorana ont moitié moins de degré de liberté qu'un électron, puisqu'ils n'ont pas de charge électrique. Dans l'étude de Nasu [43], les simulations de type Monte Carlo quantique ont montré qu'à très basse température, la quantification de l'effet Hall thermique est possible (voir figure 2.4).

En 2018, Kasahara et collaborateurs ont publié une étude qui suggère la quantification de l'effet Hall thermique dans le composé α -RuCl₃ [45, 46]. L'étude montre que pour une gamme de champ magnétique restreinte (environ 1 T autour de 7 T) ainsi que pour des températures entre 3 et 6 K, un plateau apparaît dans κ_{xy}/T . Dans ce composé, une composante du champ

magnétique doit être appliquée dans le plan (H_{\parallel}) pour supprimer l'ordre antiferromagnétique présent. Les données sont présentées à la figure 2.5. Cette découverte suggère donc la présence de fermions de Majorana dans α -RuCl₃. Le même groupe a reproduit ses résultats dans différents échantillons [47] et suggère que la quantification de l'effet Hall thermique n'est possible que dans des échantillons de très bonne qualité [48, 49].

Plus récemment, en 2022, le groupe de Takagi prétend avoir reproduit ces résultats, en montrant un plateau autour de 5 K de κ_{xy}/T , mais pour des champs plus élevés ($H = 10.3$ T à 13.2 T) [50]. Cependant, l'étude de la conductivité thermique transverse dans α -RuCl₃ est très controversée. En effet, de nouvelles études expérimentales suggèrent une interprétation complètement différente, soit des paramagnons [51], des magnons topologiques [52] ou des phonons [53]. Ces nouvelles études ne montrent pas la quantification de l'effet Hall.

2.1.2 Effet Hall thermique dans les cuprates

Les cuprates supraconducteurs, découverts en 1986 par Bednorz et Müller [4], ont révolutionné le domaine des matériaux quantiques. Ces céramiques de cuivre et d'oxygène peuvent être dopées en trous ou en électrons afin de révéler différentes phases de la matière, dont une phase supraconductrice à haute température critique (T_c). Cette découverte a suscité beaucoup d'enthousiasme dans la communauté, tant d'un point de vue d'application technologique de la supraconductivité à température ambiante que du point de vue théorique. Contrairement aux supraconducteurs dits conventionnels, c'est-à-dire dont le mécanisme d'appariement est décrit par la théorie Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS) [54] faisant intervenir l'interaction électron-phonon responsable des paires de Cooper, le mécanisme derrière la supraconductivité à haute T_c dans les cuprates demeure inconnu à ce jour. Aujourd'hui encore, après plus de trente ans de recherche sur les cuprates, la multitude de phénomènes physiques qui apparaissent dans le diagramme de phase des cuprates ne cesse de nous surprendre. Et de nouvelles expériences, dont l'effet Hall thermique, nous permettent d'en apprendre encore d'avantage!

Structure cristalline de base

Le dénominateur commun des cuprates à haute T_c est une structure composée de plans bidimensionnels de cuivre et d'oxygène (CuO₂) séparés de couches isolantes. Ces couches

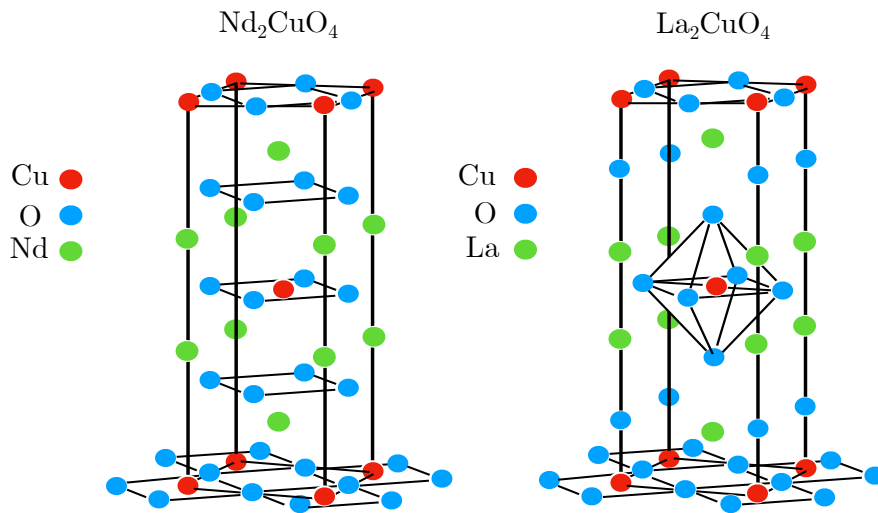


FIGURE 2.6 Structure cristalline de deux cuprates isolants de Mott. $\text{Nd}_2\text{Cu}_2\text{O}_4$ est le composé parent des cuprates dopés en électrons $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. La_2CuO_4 est le composé parent des cuprates dopés en trou $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ et $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Ces deux composés ont des structures tétraogonales. La différence majeure dans la structure est la présence d'oxygènes apicaux pour les cuprates dopés en trous.

isolantes, habituellement composées de terres rares, font office de réservoirs de charges en donnant ou acceptant des électrons des couches de CuO_2 . Ce sont ces plans de CuO_2 qui confèrent la structure électronique bidimensionnelle de ces composés, puisque ces plans sont peu couplés entre eux à cause des couches isolantes.

Les différentes familles des cuprates s'obtiennent en changeant la composition de ces réservoirs de charge. De plus, en effectuant des substitutions chimiques au sein d'une même famille, il est possible de changer le nombre d'électrons disponibles pour les plans de CuO_2 . C'est ce que l'on appelle le dopage. Celui-ci, défini par p ou x , indique le nombre de porteurs de charge par atome de cuivre. Ces porteurs peuvent être des trous (p) ou des électrons (x). Le dopage est nécessaire pour obtenir la supraconductivité dans les cuprates, car sans lui, les cuprates sont des isolants. La figure 2.7 montre un diagramme de phase général du dopage en fonction de la température pour les cuprates.

Isolant de Mott

La théorie des bandes prédit pourtant que les cuprates sont des métaux à dopage nul. Cette prédiction erronée est due au fait que les calculs standards de la théorie des bandes ne

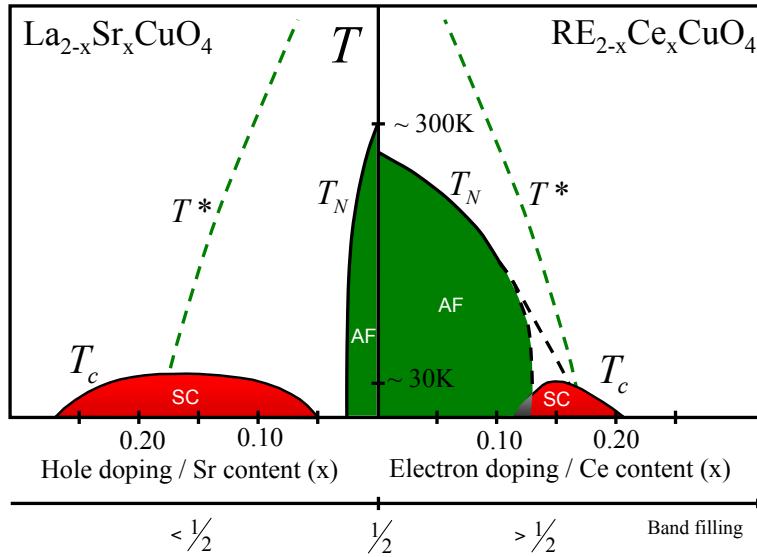


FIGURE 2.7 Diagramme de phase dopage-température des cuprates montrant deux types de dopage : à gauche les dopés en trou (comme $\text{La}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_4$) et à droite les dopés en électron (comme $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$). La phase antiferromagnétique (AF) sous T_N et la phase supraconductrice (SC) sous T_c sont indiquées. T^* désigne la phase pseudogap. On note que ce diagramme de phase n'est pas symétrique. La figure provient de [55].

prennent en compte que les interactions des électrons avec le réseau, et négligent les interactions électrons-électrons. Dans le cas des systèmes fortement corrélés, dont les cuprates, les interactions électrons-électrons sont nécessaires à la représentation adéquate du système. Ce sont ces interactions qui mènent à l'état isolant à dopage nul, appelé «isolant de Mott».

Au sein des plans CuO_2 , les atomes de cuivre sont entourés de quatre oxygènes voisins. Le cuivre se trouve sous forme ionique Cu^{2+} avec la configuration orbitale $3d^9$. Naïvement, le dernier niveau électronique du cuivre étant à demi rempli, on s'attendrait à observer un comportement métallique où il y a une hybridation entre les niveaux d'énergie du cuivre et de l'oxygène (voir figure 2.8 (b)). Cependant, ce n'est pas le scénario observé. Dû à la structure tétragonale du système, le dernier niveau d'énergie du cuivre est le $3d_{x^2-y^2}$ tandis que les orbitales des atomes d'oxygène O^{2-} , soit $2p_x$ et $2p_y$, sont dans le plan [56]. Ainsi, les orbitales remplies $2p$ se trouvent entre le niveau d'énergie vide et celui rempli du cuivre, tel que montré à la figure 2.8. Il est donc très difficile, énergiquement parlant, de déplacer un électron d'un site de cuivre à un autre puisque l'énergie coulombienne U est beaucoup plus grande que le gap isolant Δ . Cette configuration particulière porte le nom d'isolant de transfert de charge et est un cas particulier de l'isolant de Mott dans lequel une bande pleine

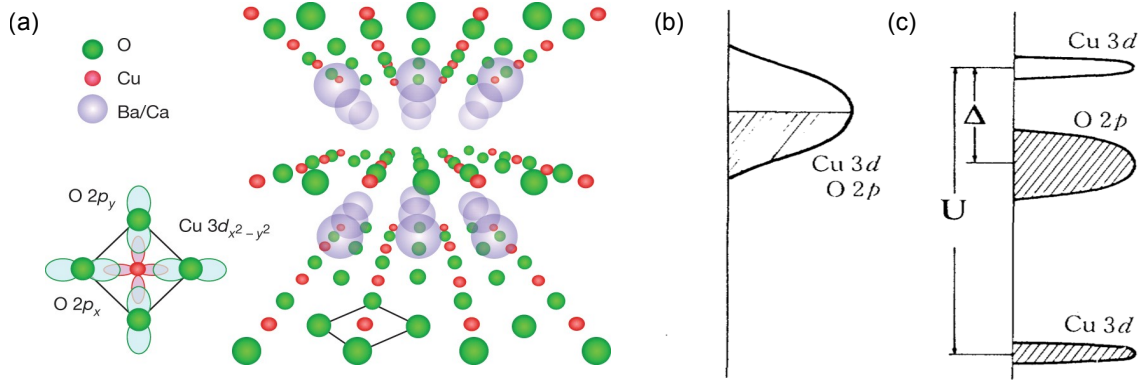


FIGURE 2.8 (a) Représentation schématique du plan CuO_2 des cuprates. La structure électronique des plans implique l'hybridation des orbitales $3d_{x^2-y^2}$ des atomes de cuivre avec les orbitales p_x et p_y des atomes d'oxygène. (b) Schéma de bande en l'absence de l'interaction coulombienne des plans CuO_2 , avec la seule bande issue de l'hybridation de l'orbitale $3d$ et $2p$. Nous obtenons un demi-remplissage. (c) Schéma de bande de l'isolant de transfert de charge en tenant compte de l'interaction coulombienne U qui sépare l'orbitale $3d$ du cuivre en deux et ouvrant un gap de transfert Δ . Les figures sont issues des références [57, 58].

sépare les deux bandes du modèle de Hubbard [56].

Le modèle de Hubbard à une bande permet de bien rendre compte des propriétés microscopiques des cuprates. Ce modèle suppose un réseau carré où les électrons sont situés sur les sites de cuivre des plans CuO_2 . Le Hamiltonien de Hubbard est

$$\mathcal{H} = \sum_{ij,\sigma} t_{ij} \left(c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + c.h. \right) + U \sum_i n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow}, \quad (2.5)$$

où $c_{i,\sigma}^\dagger$ est l'opérateur de création d'un électron sur le site i de spin σ et $n_{i,\sigma} = c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$ est l'opérateur densité d'électrons de spin σ sur le site i . U est l'interaction coulombienne qui agit sur deux électrons de spins opposés lorsqu'ils sont situés sur le même site et t_{ij} l'intégrale de saut entre les sites i et j . Le premier terme en est un d'énergie cinétique, tandis que le deuxième est à l'origine du gap observé dans les isolants de Mott. Ce Hamiltonien traduit donc la compétition entre le terme coulombien qui tend à localiser les électrons sur leur site, et l'énergie cinétique qui tend à les délocaliser. Dans le cas d'un isolant de Mott, l'interaction coulombienne est si forte ($U \gg W$, où W est la largeur de bande ou l'énergie nécessaire pour déplacer deux électrons sur un même site i), qu'il en résulte que les électrons sont localisés, donnant lieu à un comportement isolant.

Propriétés magnétiques

À dopage nul, les cuprates sont des composés antiferromagnétiques (AF) en plus d'être isolants. Sous une température appelée température de Néel (T_N), les spins électroniques sur les sites de cuivre voisins s'ordonnent de façon antiparallèle. Le recouvrement des orbitales d'oxygène et de cuivre crée une interaction magnétique de super-échange entre les premiers voisins, favorisant l'échange d'électron de spins opposés entre deux sites [59]. Il en résulte un ordre antiferromagnétique à longue portée de vecteur d'onde $\vec{Q} = (\pi, \pi)$. Cet état électronique peut être caractérisé par le Hamiltonien de Heisenberg

$$\mathcal{H}_{\text{Heisenberg}} = -J \sum_{\langle ij \rangle} \vec{S}_j \cdot \vec{S}_i, \quad (2.6)$$

avec $J = 4t^2/U$ le paramètre d'échange et S_i l'opérateur de spin au site i . L'interaction antiferromagnétique énergétiquement favorable ($J > 0$) amène le système à former un état antiferromagnétique où les spins alternent de direction d'un site à l'autre.

Lorsque le système fondamental est dopé, que ce soit en trous ou en électrons, cet ordre antiferromagnétique est brisé. La température T_N diminue quand le dopage augmente jusqu'à ce que l'ordre antiferromagnétique disparaisse. Cela a lieu à plus haut dopage dans les cuprates dopés en électrons, autour de $x = 0.13$ [60] pour $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (NCCO), tandis que l'ordre AF disparaît plus rapidement pour les cuprates dopés en trous, autour de $x = 0.02$ pour $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) et $\text{La}_{1.8-x}\text{Eu}_{0.2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (Eu-LSCO) [61].

Diagramme de phase des cuprates dopés en trous

C'est le dopage qui permet d'avoir accès aux différentes phases de la matière dans les cuprates. Concentrons-nous pour le moment sur les cuprates dopés en trous. Lorsque l'on dope en trous le système, on enlève un électron du plan CuO_2 , permettant aux électrons de sauter d'un site à un autre. Plus le nombre de trous est grand, plus la mobilité électronique est grande. Un exemple typique du diagramme de phase est présenté à la figure 2.9.

À bas dopage se trouve la phase antiferromagnétique (AF) délimitée par la température T_N , mais plus le dopage augmente, plus l'ordre antiferromagnétique se détériore jusqu'à disparaître. Dès la fin de la phase antiferromagnétique, une phase supraconductrice délimitée par une température critique T_c apparaît. Cette phase, caractérisée par une résistivité nulle et un diamagnétisme parfait, a fait la renommée des cuprates puisque leur température critique

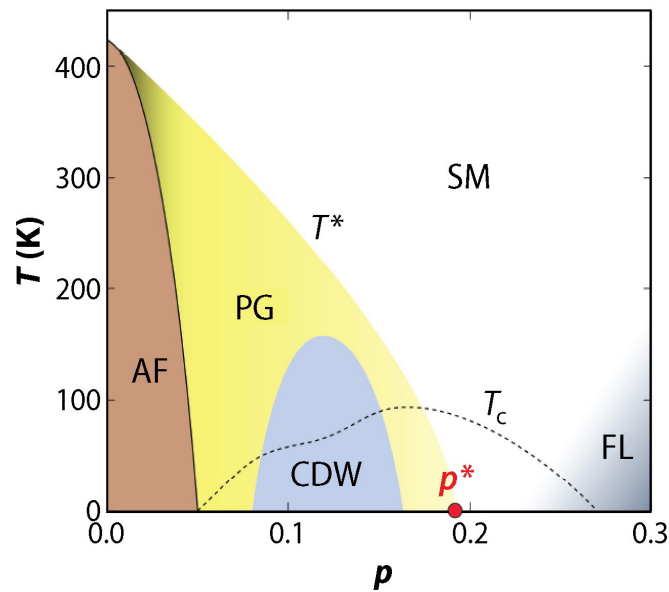


FIGURE 2.9 Diagramme de phase température-dopage typique des cuprates dopés en trous. À bas dopage, nous avons la phase antiferromagnétique (AF) isolante (en brun). La phase pseudogap, délimitée par la température T^* et le dopage critique p^* est indiqué en jaune. À dopage intermédiaire apparaît un ordre de charge nommé onde de densité de charge (ODC, ou CDW en anglais) (en bleu). La phase supraconductrice se situe sous la température critique T_c (ligne pointillée). À plus haut dopage, vers la fin du dôme supraconducteur, les cuprates sont de relativement bons métaux décrits par la théorie de liquide de Fermi (FL, en anglais). Autour du point critique p^* , les cuprates ont un comportement de métaux étranges (SM, en anglais) en blanc. La figure est tirée de [62].

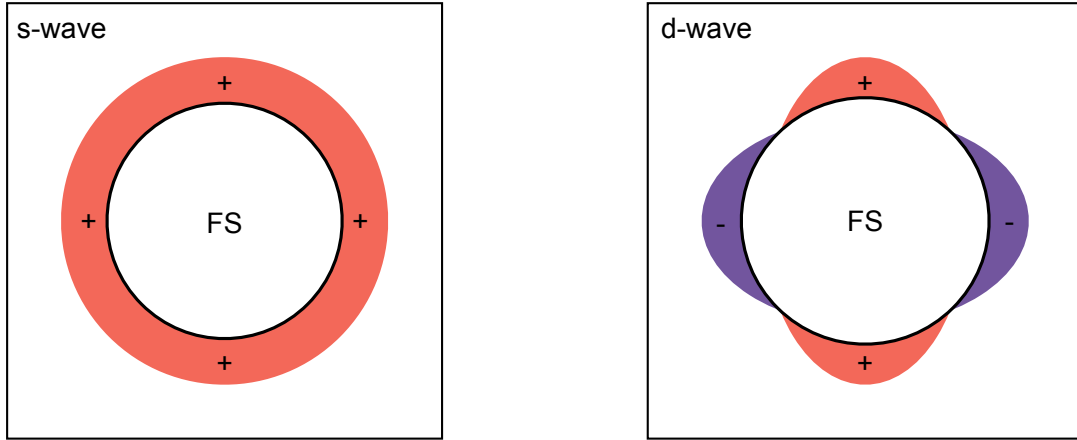


FIGURE 2.10 Exemple de symétries de gaps supraconducteurs sur une surface de Fermi 2D circulaire. À gauche, un gap *s-wave* isotrope et à droite un gap *d-wave* de symétrie $d_{x^2-y^2}$ anisotrope où le gap change de signe.

peut atteindre des températures allant jusqu'à 135 K dans $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{CuO}_3\text{O}_x$ à pression ambiante [63]. Sous pression, cette valeur augmente jusqu'à 164 K [64]. Nous sommes donc à mi-chemin d'un supraconducteur à température ambiante.

Tel que mentionné précédemment, les cuprates ont un mécanisme de supraconductivité dit non conventionnel, c'est-à-dire qu'il n'est pas décrit par la théorie BCS. Dans un mécanisme de supraconductivité conventionnel, les électrons de vecteurs d'onde et de spins opposés forment des paires, appelées paires de Cooper. Ces paires sont créées par les interactions coulombiennes positives que les électrons ont avec les ions du réseau. Ces paires forment un état cohérent macroscopique qui brise la symétrie de jauge et ouvre un gap isotrope d'énergie Δ au niveau de Fermi (appelé *s-wave*). Dans le cas des cuprates, le mécanisme responsable de la supraconductivité ouvre, quant à lui, un gap anisotrope au niveau de Fermi (appelé *d-wave*). Ce gap s'annule à certains points spécifiques appelés nœuds. De plus, le signe du gap varie entre les différents endroits où le gap est nul.

Afin d'étudier l'état fondamental sous-jacent des cuprates en l'absence de la supraconductivité, il est possible de briser les paires de Cooper et d'atteindre l'état normal. Expérimentalement, la suppression de la supraconductivité est faite par l'application d'un champ

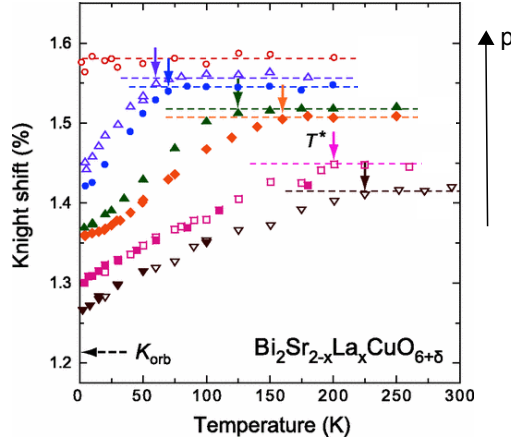


FIGURE 2.11 Déplacement de Knight dans $Bi_2Sr_{2-x}La_xCuO_{6+\delta}$ en fonction de la température pour différents dopages. Plus le dopage augmente, plus la température où la densité d'état commence à chuter diminue. Cela délimite T^* . Lorsque $p > p^*$, le déplacement de Knight est indépendant de la température, tel qu'attendu pour un métal. La figure provient de [66].

magnétique externe normal au plan de CuO_2 . Le champ minimal H_{c2} indique le champ à appliquer pour supprimer toute trace de supraconductivité. Ce dernier varie d'un cuprate à l'autre et d'un dopage à l'autre. Par exemple, pour $YBa_2Cu_3O_y$ (YBCO), où $T_c^{max} = 94$ K, H_{c2} montre deux pics dans le diagramme dopage-champ critique, avec un maximum de 150 T pour $p = 0.2$ [65]. Pour LSCO, H_{c2} a une valeur maximale autour de 60 T [62] à $p = 0.17$, tandis que pour $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$ (Nd-LSCO), H_{c2} est plutôt autour de 15 T [62].

Outre la phase supraconductrice, le diagramme de phase des cuprates présente une phase appelée pseudogap. Cette phase est délimitée par une température T^* et un dopage critique p^* . Elle sera abordée plus en détail dans la prochaine sous-section. Sous cette phase, on retrouve un ordre de charge (*charge density wave* (CDW) en anglais). Cet ordre consiste à la modulation unidirectionnelle de la densité de charges, qui brise la symétrie de translation du réseau cristallin. Notons que celle-ci interagit avec la phase supraconductrice : le dôme supraconducteur est légèrement diminué lorsque la phase CDW est à son maximum.

Phase pseudogap

La phase pseudogap constitue l'un des plus grands mystères des cuprates dopés en trous [56]. Elle est définie, comme son nom l'indique, par l'ouverture partielle d'un gap dans la densité d'états sous une température T^* . Il existe de nombreuses signatures expérimentales de la phase pseudogap. La première observation de cette phase a été faite par

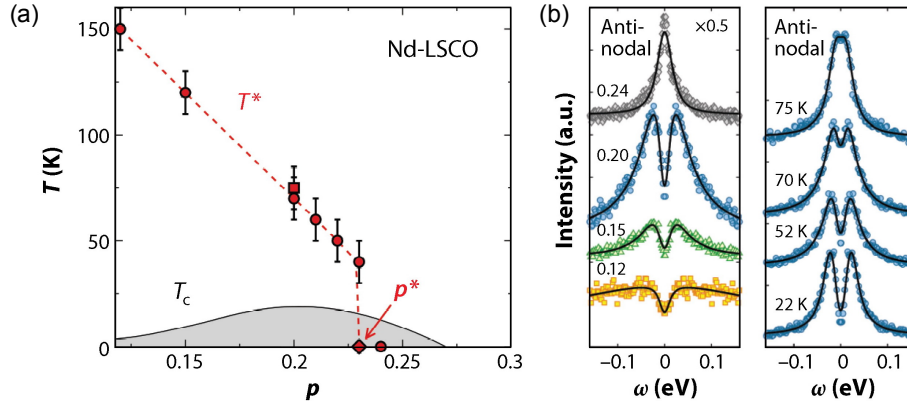


FIGURE 2.12 (a) Diagramme de phase du cuprate Nd-LSCO [69] (b) Le panneau de droite montre l'ouverture d'un gap partiel dans la densité d'états pour les dopages inférieurs à $p^* = 0.23$. Toutes les mesures ont été prises à une température supérieure à T_c . Le panneau de droite montre l'évolution de la densité d'état en fonction de la température au dopage $p = 0.20$. Sous T^* , un gap partiel s'ouvre. Les données proviennent de [68].

des mesures de résonance magnétique nucléaire (RMN) dans YBCO [67]. Le déplacement de Knight (*Knight shift* en anglais), déterminé par la susceptibilité de spin, est directement relié à la densité d'états au niveau de Fermi. Pour un métal ordinaire, il est constant en fonction de la température. Dans les cuprates, le déplacement de Knight montre une chute en fonction de la température qui décroît. Cette chute n'est pas attribuée à T_c , puisqu'elle apparaît à des températures beaucoup plus élevées, ainsi que pour de plus faibles dopages. Cela est montré à la figure 2.11 dans le cas du cuprate $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ [66].

Une autre mesure caractéristique de la phase pseudogap a été obtenue par l'ARPES (*Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy* en anglais). Cette méthode permet de sonder directement la densité d'états au niveau de Fermi, et ce pour différentes orientations dans l'espace réciproque. Ces mesures ont permis de déterminer que cette perte de densité d'états observée en RMN est située dans la région anti-nodale de la surface de Fermi [68]. La figure 2.12 (b) montre des résultats d'ARPES dans le cuprate Nd-LSCO en fonction du dopage dans le panneau de gauche ainsi qu'en fonction de la température dans le panneau de droite. Toutes les mesures sont dans l'état normal. Ainsi, sous une température T^* , il y a une transition dans le poids spectral qui s'apparente à l'ouverture d'un gap partiel. Cela est aussi observé en fonction du dopage. Pour $p < p^*$, un gap partiel s'ouvre tandis que pour $p = 0.23$, la densité d'état reste intacte.

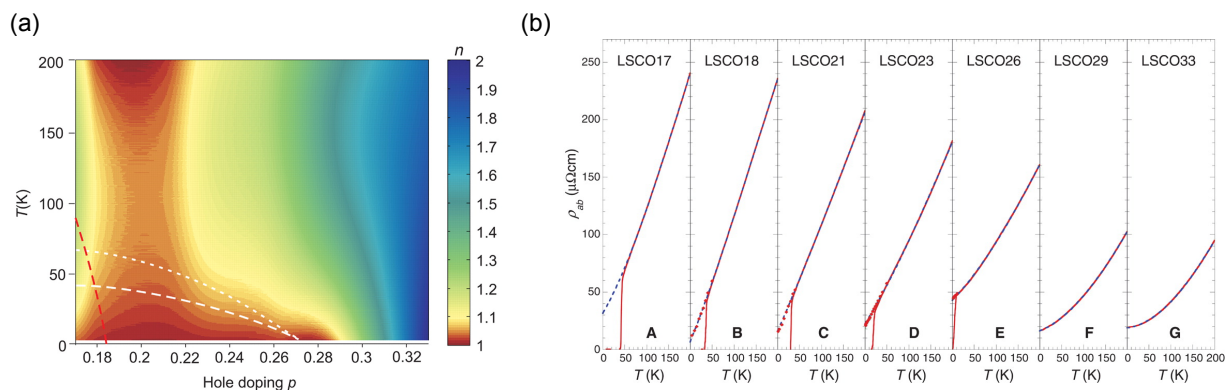


FIGURE 2.13 (a) Diagramme de phases du cuprate LSCO montrant le dopage en fonction de la température. n représente la puissance de T des courbes de résistivité montrées en (b). On observe donc une certaine plage de température linéaire près de p^* . (b) Résistivité en fonction de la température pour LSCO à différents dopages (rouge), ainsi que leurs régressions polynomiales respectives (bleu). Les figures proviennent de [72].

Cette perte de densité d'états est aussi observée dans les mesures de transport. Une signature connue est la remontée en fonction de la température sous T^* de la résistivité linéaire. (Notons que cette valeur de T^* obtenue par des mesures de transport peut être différente de celle mesurée par le déplacement de Knight). À très haut dopage, les cuprates sont des liquides de Fermi : ils présentent une résistivité électrique $\rho \propto T^2$ [70]. Lorsqu'on diminue le dopage, jusqu'à p^* , on observe un comportement différent à basse température. La dépendance en température de la résistivité dévie de la loi de puissance quadratique jusqu'à un comportement linéaire dans la phase normale près de p^* [71, 72]. Cela a été observé dans différents cuprates et semble même être une propriété universelle de ces derniers autour de p^* [73]! Cette linéarité à $T \rightarrow 0$ peut être attribuée à une signature d'un point critique quantique [74]. Effectivement, la linéarité de la résistivité à $T \rightarrow 0$ est attribuée à un point critique antiferromagnétique pour différents matériaux dont le supraconducteur organique (TMTSF)₂X [75] ou encore le fermion lourd CeCu₆ [76]. Par contre, cette théorie pour les cuprates ne fait pas consensus dans la communauté.

L'étude de la résistivité dans l'état normal des cuprates a mis en évidence la déviation de la résistivité linéaire dans la phase pseudogap. Cette déviation apparaît à T^* , lorsque le cuprate entre dans la phase pseudogap. La figure 2.14 illustre bien ce comportement dans le cuprate Nd-LSCO [71, 69]. Cela correspond également à ce qui a été observé en ARPES dans ce même composé, confirmant l'entrée dans la phase pseudogap. Cette signature

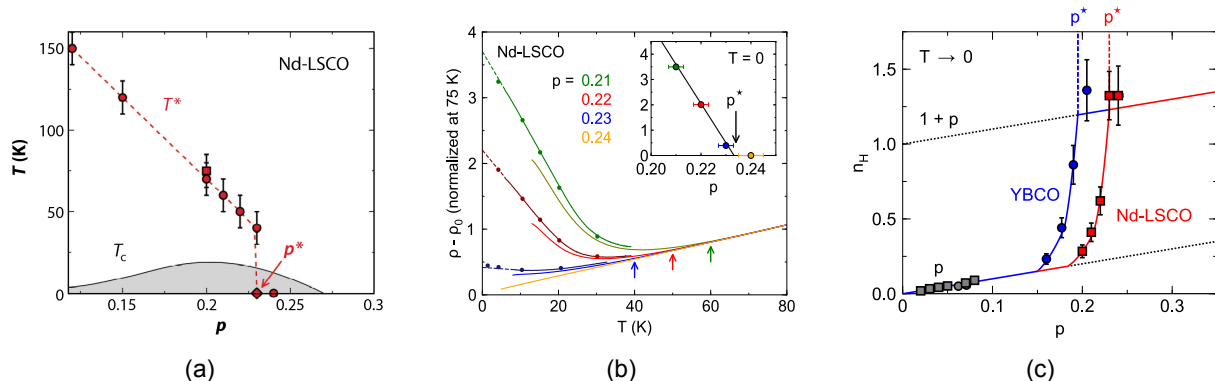


FIGURE 2.14 (a) Diagramme de phases du cuprate Nd-LSCO. (b) Courbes de résistivité en fonction de la température, normalisée à 75 K, dans Nd-LSCO pour différents dopages. Sous T^* , indiquée par les flèches, on observe une déviation de la linéarité de la résistivité. (c) Dépendance en température du nombre de porteurs par plan CuO_2 en fonction de la température dans l'état normal de YBCO [77] et Nd-LSCO [69]. On observe une transition de $n = p$ à $n = 1 + p$ au dopage critique p^* . Les figures proviennent de [69].

expérimentale a aussi été observée dans LSCO [78].

Les mesures de l'effet Hall dans les cuprates ont permis de confirmer que la remontée de la résistivité est associée à une perte de porteurs dans la phase pseudogap [77, 79, 72]. Dans un modèle simple, le nombre de Hall $n_H = V/(eR_H)$ dans la limite $T \rightarrow 0$, correspond à la densité de porteur de charge. Comme le montre la figure 2.14 (c), la densité de porteurs par atome de cuivre n passe de $n = 1 + p$ dans l'état métallique ($p > p^*$) à $n = p$ dans la phase pseudogap ($p < p^*$). Ainsi, la remontée est une conséquence de cette perte de porteurs sous p^* .

La nature métallique de la phase pseudogap a été mise en évidence par des mesures de transport thermique, en vérifiant la loi de Wiedemann-Franz à $T \rightarrow 0$ [80, 81]. La vérification de cette loi implique qu'il existe des quasiparticules bien définies à $T \rightarrow 0$ transportant la charge et la chaleur, dans la phase normale des cuprates. La phase pseudogap ne serait donc pas une transition d'un état métallique vers un état isolant [78], mais bien une transition d'un métal étrange vers un moins bon métal.

De toute évidence, la phase pseudogap est caractérisée par un point critique p^* et apparaît sous une température T^* . Les résultats des mesures de transport supportent l'idée que la phase pseudogap présente une chute dans la densité de porteurs (tel que montré par l'effet

Hall) ainsi qu'un comportement métallique (validé par la loi de WF). Même si ces évidences expérimentales nous en apprennent beaucoup sur la nature de cette phase, son origine reste inconnue.

Théories de la phase pseudogap dans les cuprates dopés en trous

Il existe de nombreux modèles pour décrire le comportement de la phase pseudogap des cuprates dopés en trous. Un premier modèle, proposé par le professeur Varma suppose une brisure de symétrie dans la phase pseudogap [82, 83]. Cette brisure de symétrie par renversement du temps serait le résultat de boucles de courant présentes dans la maille élémentaire des cuprates. Ces boucles de courant se termineraient à un point critique $x = x_c$ à $T = 0$, générant un point critique quantique. Ce mécanisme serait lié à un ordre de longue portée présent dans cette phase. Chakravarty et collaborateurs proposent, quant à eux, un ordre de type onde de densité de symétrie $d_{x^2-y^2}$, brisant les symétries d'inversion du temps, de translation et de rotation [84].

Le groupe du Professeur Tremblay propose plutôt un modèle décrivant le pseudogap comme une conséquence des fortes corrélations associées à la physique de Mott [85, 86, 87, 88], sans brisure de symétrie. En étudiant le modèle de Hubbard avec une approche utilisant la théorie de champ moyen dynamique sur amas, Sordi et collaborateurs proposent que le pseudogap soit caractérisé par la présence d'états singulets [85, 87]. Le pseudogap serait une phase distincte du liquide de Fermi corrélé situé à plus haut dopage. Ces deux phases sont séparées par une transition de phase du premier ordre (transition de Sordi) se terminant par un point critique [86]. Lorsque la température est plus élevée que celle du point critique qui termine la transition de premier ordre, le passage d'une phase à l'autre s'effectue le long d'une ligne qui s'étend à plus haute température à partir du point critique. Dans la théorie des transitions de phase du premier ordre, cette ligne s'appelle une ligne de Widom [89]. Plusieurs définitions de la température T^* sous laquelle le pseudogap apparaît correspondent à un précurseur de la ligne de Widom. Ainsi, aucune brisure de symétrie n'est nécessaire pour expliquer la phase pseudogap, seules les corrélations de spin à courte portée sont impliquées.

Finalement, une autre théorie intéressante est l'hypothèse de fluctuations de spins antiferromagnétiques. Dans les cuprates dopés en électrons, les mesures de diffraction de neutron [60] montrent la présence de fluctuations antiferromagnétiques au-delà de T_N , jusqu'à une température T^* . Une perte de poids spectral est aussi observée aux croisements de la sur-

face de Fermi avec la zone antiferromagnétique (appelés points chauds) [90, 91]. Dans le cas des cuprates dopés en électrons, ces deux observations expérimentales sont la présence d'un pseudogap antiferromagnétique [55]. Des calculs de TPSC (*Two-Particle Self-Consistent* en anglais) dans les cuprates dopés en électrons peuvent reproduire T^* [92] ainsi que le dôme supraconducteur *d-wave* à l'aide d'un modèle de fluctuations antiferromagnétiques à longue portée [93]. Analogiquement, du côté des cuprates dopés en trous, le pseudogap pourrait lui aussi être causé par la présence d'un ordre magnétique. D'autres calculs numériques utilisant le modèle de Hubbard en 2 dimensions suggèrent d'ailleurs que les fluctuations AF à longue portée seraient précurseurs de la phase pseudogap des deux côtés du diagramme de phase [94, 95, 96]. Expérimentalement, une signature de fluctuations de spins AF a été observée récemment dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous [97]. De plus, de récentes mesures RMN et ultrasons révèlent qu'un magnétisme statique existe à basse température dans le cuprate LSCO jusqu'au point critique p^* [98].

Effet Hall thermique comme sonde des cuprates dopés en trous

L'effet Hall thermique a été mesuré dans l'état supraconducteur du cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ dans le but de déterminer le libre parcours moyen des quasiparticules. Dans l'état supraconducteur, les électrons se condensent et forment des paires de Cooper ne transportant pas l'entropie. Cependant, dans le cas d'un supraconducteur *d-wave*, les excitations à énergie nulle situées sur les noeuds permettent l'observation d'une contribution finie dans la limite $T \rightarrow 0$, et ce, même à champ magnétique nul. Ainsi, le but ici est d'utiliser la mesure d'effet Hall afin que seules les quasiparticules soient déviées par le champ magnétique dans le but de mesurer leur libre parcours moyen et d'estimer la pureté du cristal. Pour ce faire, Krishana et collaborateurs ont mesuré la dépendance en champ jusqu'à 14 T de κ_{xy} [99]. Le signal est positif, en raison de la surface de Fermi de type trou à ce dopage. (Ici, un éventuel κ_{xy} des phonons est considéré comme négligeable.) Leurs résultats sont présentés à la figure 2.15. Pour $T > T_c$, $\kappa_{xy}(B)$ est linéaire en champ dans l'état normal métallique. Pour $T < T_c$, $\kappa_{xy}(B)$ développe une courbure négative qui augmente plus la température diminue. L'interprétation des auteurs est que les quasiparticules sont déviées par les vortex qui apparaissent sous T_c , limitant ainsi leur taux de diffusion τ . À l'aide de lissages de la forme

$$\kappa_{xy} = \frac{pB}{[1 + \alpha|B|/\phi_0]^2}, \quad (2.7)$$

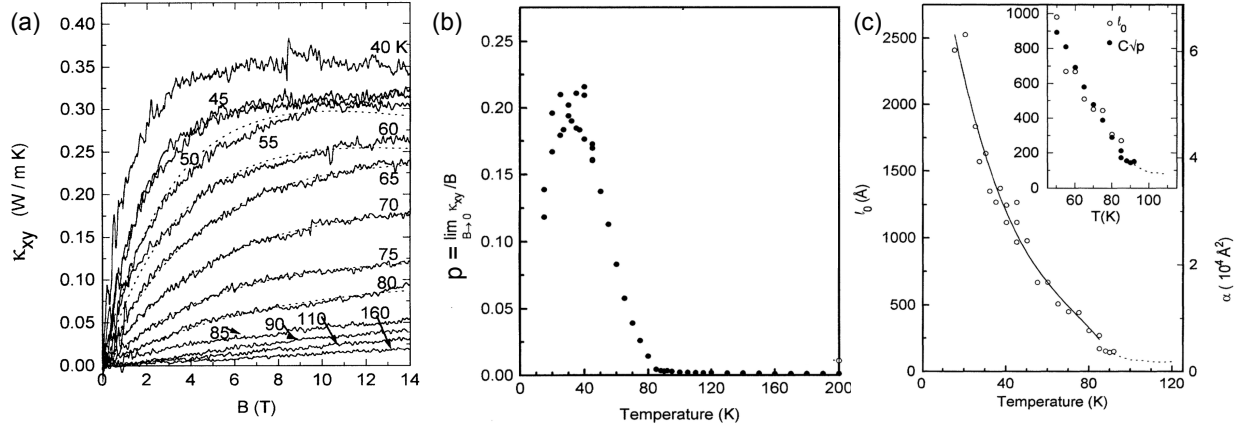


FIGURE 2.15 (a) Effet Hall thermique κ_{xy} en fonction du champ magnétique B pour différentes températures dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ avec une $T_c = 91.8$ K. Les lignes pointillées montrent des lissages selon l'équation (2.7) pour déterminer les deux paramètres libres α et p . (b) La dépendance en température du paramètre de lissage p , déterminé comme $p = \lim_{B \rightarrow 0} \kappa_{xy}/B$ (cercles pleins). (c) Le paramètre α en fonction de la température (échelle de droite). Sur l'échelle de gauche, le libre parcours moyen en fonction de la température est tracé. La sous-figure compare l_0 obtenu à l'aide de α avec $C\sqrt{p}$. C est une constante de proportionnalité pour que les données concordent à haute température. La figure provient de [99].

où p et α sont des paramètres libres et ϕ_0 le quantum de flux, les auteurs ont pu extraire le libre parcours moyen l_0 . Selon leurs calculs, $l_0 \sim \sqrt{p(T)}$ et $\alpha = l_0\sigma$, avec σ la conductivité de Hall. Krishana et collaborateurs ont montré que sous T_c , le libre parcours moyen augmente drastiquement, passant de 90 Å à 90 K à 2500 Å à 15 K, montrant que les quasiparticules *d-wave* atteignent un libre parcours moyen beaucoup plus long que les électrons au-dessus de T_c .

Grissonanche et collaborateurs ont fait l'étude de la conductivité thermique transverse dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO) $p = 0.11$ [12]. En effectuant des mesures à hauts champs magnétiques intenses (jusqu'à $H = 35$ T), champ suffisant pour supprimer la supraconductivité ($H_{c2} = 24$ T), ils ont pu vérifier la loi de WF dans le canal transverse de ce système et confirmer l'état métallique de la phase normale de ce cuprate.

La figure 2.16 montre l'évolution de la conductivité thermique transverse en fonction du champ magnétique. À très basse température $T = 0.7$ K, la loi de WF est vérifiée, confirmant donc l'origine électronique de la phase normale à ce dopage. Notons ici que κ_{xy}/T à basse température est négatif, puisque σ_{xy} l'est lui aussi à cette température. L'évolution du signe de $\sigma_{xy}(T)$, allant de positif à haute température ($T > 60$ K) à négatif plus la température

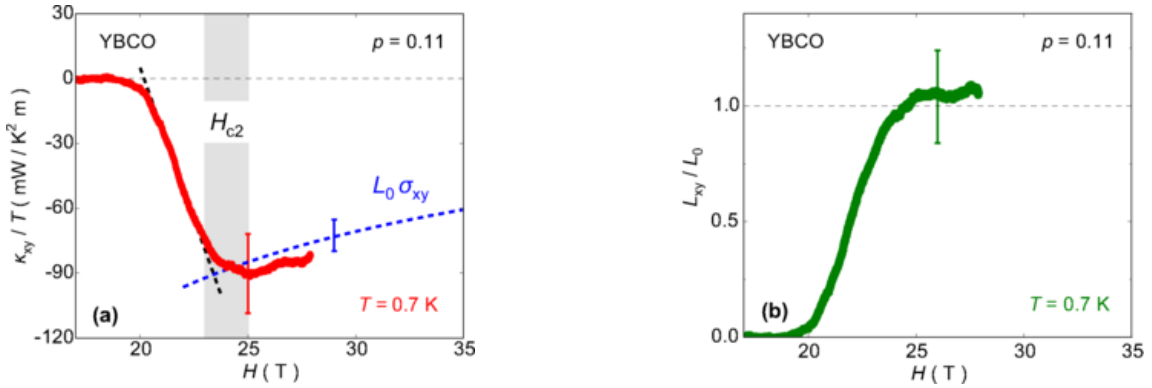


FIGURE 2.16 (a) κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique H à $T = 0.7$ K dans le cuprate YBCO $p = 0.11$. La bande grise indique $H_{c2} = 24 \pm 1$ T. La ligne pointillée bleue indique $L_0\sigma_{xy}$. (b) Ratio de Lorentz dans le canal transverse L_{xy} en fonction du champ magnétique H . On observe que la loi de WF est respectée dans l'état normal du cuprate. La figure provient de [12].

décroit s'explique par la reconstruction de la surface de Fermi qui a lieu à ce dopage [100] causée par l'apparition d'un ordre de charge (CDW) (figure 2.9). On passe alors d'une surface de Fermi de type trous à une petite poche d'électron, expliquant donc le signe négatif de l'effet Hall électrique et thermique dans YBCO à $p = 0.11$ [101].

Afin de poursuivre les études sur la phase pseudogap, l'effet Hall thermique a été utilisé pour la première fois pour mesurer l'état normal des cuprates. Grissonnanche et collaborateurs ont fait l'étude de l'effet Hall thermique dans le cas des cuprates de la famille LSCO [2]. Tel que montré précédemment, à l'extérieur de la phase pseudogap, les cuprates ont un comportement métallique. Ainsi, il est attendu que l'effet Hall thermique sonde les excitations électroniques présentes dans cette phase. C'est ce qui est observé à la figure 2.17 dans le cuprate Nd-LSCO $p = 0.24$ où la loi de Wiedemann-Franz est respectée (voir figure 2.17 (c)). De façon surprenante, la même mesure effectuée à un dopage légèrement inférieur, soit à $p = 0.20$, montre un comportement nouveau et inattendu : un effet Hall thermique négatif lorsque la température décroît (voir figure 2.17 (a)). Cela n'est pas en accord avec les mesures d'effet Hall électrique (voir figure 2.18) qui détermine un coefficient de Hall positif sur toute la gamme de températures. Ainsi, il y a une grande déviation des résultats expérimentaux lorsque l'on compare le canal thermique $\kappa_{xy}(T)$ et le canal électrique $\sigma_{xy}(T) = R_H(T)H$.

Curieusement, cet effet Hall thermique négatif augmente plus le dopage diminue, pour

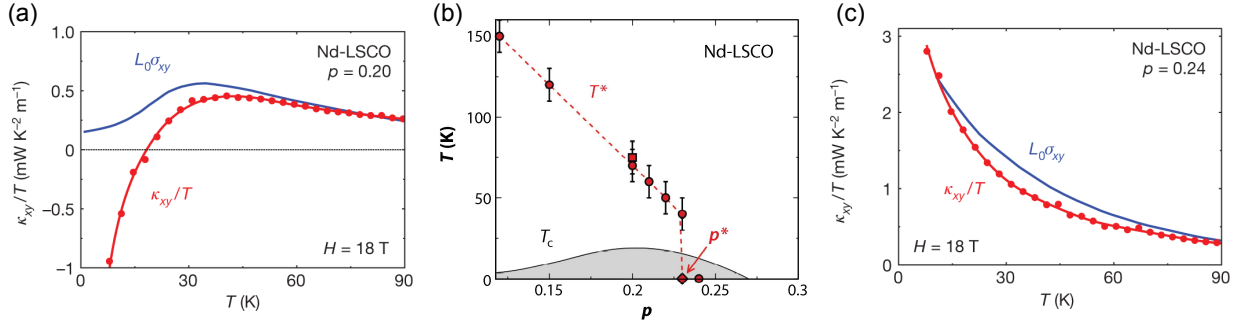


FIGURE 2.17 Mesure de la conductivité thermique transverse, κ_{xy}/T , en fonction de la température à 18T pour Nd-LSCO (a) $p = 0.20$ et (c) $p = 0.24$. (b) Diagramme de phase du cuprate Nd-LSCO. Le dopage critique p^* est indiqué ainsi que la température T^* à laquelle le pseudogap apparaît. La figure provient de [2, 69].

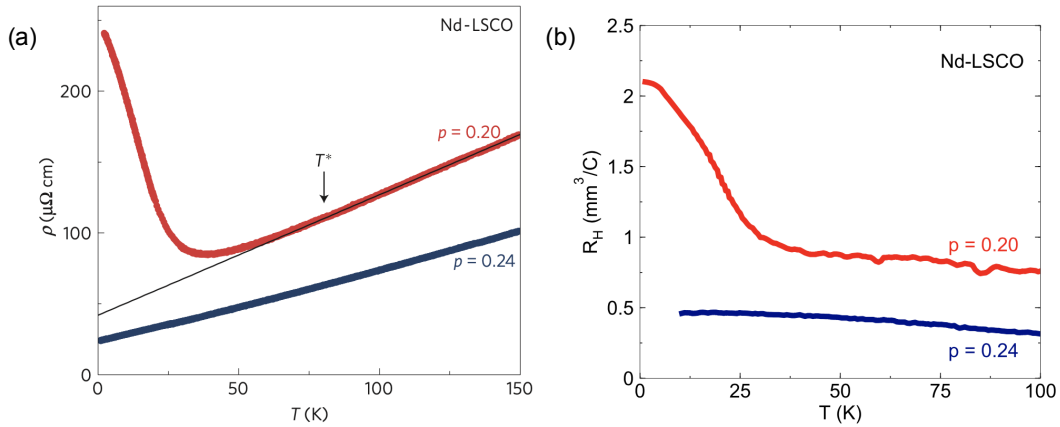


FIGURE 2.18 (a) Courbes de résistivité en fonction de la température dans l'état normal de Nd-LSCO $p = 0.20$ (rouge) et $p = 0.24$ (bleu). (b) Courbes de l'effet Hall R_H en fonction de la température pour ces mêmes échantillons. Les données proviennent de [71].

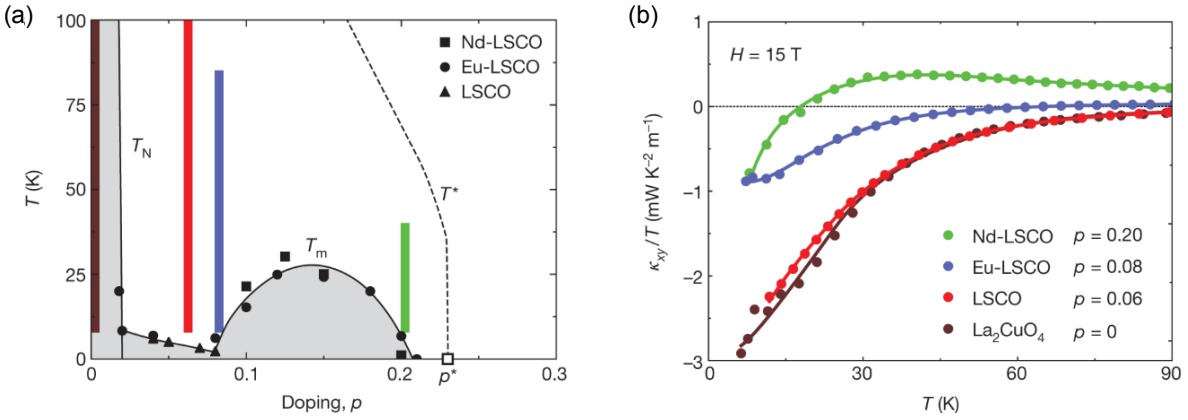


FIGURE 2.19 (a) Diagramme de phase de Nd-LSCO, Eu-LSCO et LSCO montrant les zones antiferromagnétiques sous la température T_N (gris) ainsi que la phase pseudogap sous T^* . La plage de températures des données expérimentales est indiquée par les bandes de couleur. Ce diagramme montre que toutes les données, à l'exception de La_2CuO_4 , ont été prises dans des régions non magnétiques. (b) Conductivité thermique transverse κ_{xy}/T en fonction de T pour Nd-LSCO $p = 0.20$ (vert), Eu-LSCO $p = 0.08$ (bleu), LSCO $p = 0.06$ (rouge) et La_2CuO_4 $p = 0$ (brun) à $H = 15$ T. La figure provient de [2].

devenir maximal à l'isolant de Mott La_2CuO_4 ($p = 0$) (voir figure 2.19) [2]. En d'autres mots, plus le composé devient isolant, plus son effet Hall thermique est grand (pour un même champ magnétique)!

L'origine de ce signal a tout de suite suscité un grand engouement dans la communauté. Notons que puisque le signal est présent dans l'isolant de Mott, à $p = 0$, l'origine électronique de ce signal peut être écartée. Effectivement, à $p = 0$ les électrons de conduction sont localisés et ne contribuent pas au transport. De plus, tel que montré à la figure 2.17, la loi de Wiedemann-Franz n'est pas respectée dès que l'on entre dans la phase pseudogap. Les auteurs réfutent aussi l'idée que ce signal proviendrait des magnons, puisque les mesures ont toutes été effectuées dans des phases ne présentant aucun ordre magnétique à longue portée, à l'exception de La_2CuO_4 .

Cette découverte majeure dans le domaine des cuprates ouvre donc la porte à différents scénarios. La grande question est : quelle est l'origine de l'effet Hall thermique négatif dans la phase pseudogap des cuprates ? À la suite de cet article, de nombreuses études théoriques ont suggéré différents scénarios. Différentes avenues sont étudiées telle la présence d'excitations plus exotiques dont une phase topologique [102], la présence de magnons [103] et même la présence de phonons [104].

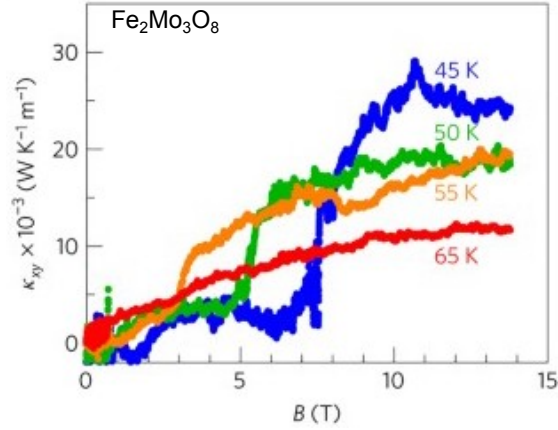


FIGURE 2.20 Effet Hall thermique dans le composé multiferroïque $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ en fonction du champ magnétique. La figure provient de [105].

2.1.3 Effet Hall thermique des phonons

Il était connu, depuis la découverte d'un effet Hall thermique non nul dans le grenat $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (TGG) [20], que les phonons, peuvent sous certaines conditions [23, 24, 25, 26], générer un effet Hall thermique non nul (voir section 1.4.3). Ce signal reste toutefois petit (ΔT_y de l'ordre de $200 \mu\text{K}$ à 5.45 K). Le mécanisme responsable de l'effet Hall thermique dans TGG est la diffusion asymétrique des phonons sur des ions superstoéchiométriques Tb^{3+} [29].

En 2017, dans l'isolant multiferroïque $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, Ideue et collaborateurs ont signalé la présence d'un effet Hall thermique des phonons beaucoup plus grand [105]. Les multiferroïques sont des systèmes présentant un très fort couplage entre le réseau ionique et les spins, les phonons sont fortement influencés par les structures magnétiques. La mesure d'effet Hall thermique a permis de montrer l'influence de ce couplage entre les ions et les spins du réseau sur les phonons de basses énergies dans la phase ferrimagnétique. Le signal mesuré ici est de l'ordre d'une vingtaine de mK/Km à 30 K et 10 T (voir figure 2.20). L'amplitude de ce signal est du même ordre de grandeur que ce qui est observé dans les cuprates [2].

Un grand effet Hall thermique a été observé dans l'isolant paraélectrique SrTiO_3 par Li et collaborateurs [106]. Les résultats sont montrés à la figure 2.21. Puisque ce matériau est isolant, la conductivité thermique longitudinale (κ_{xx}) est clairement attribuée aux phonons. Étant donné que la dépendance en température de $\kappa_{xy}(T)$ est la même que $\kappa_{xx}(T)$, les

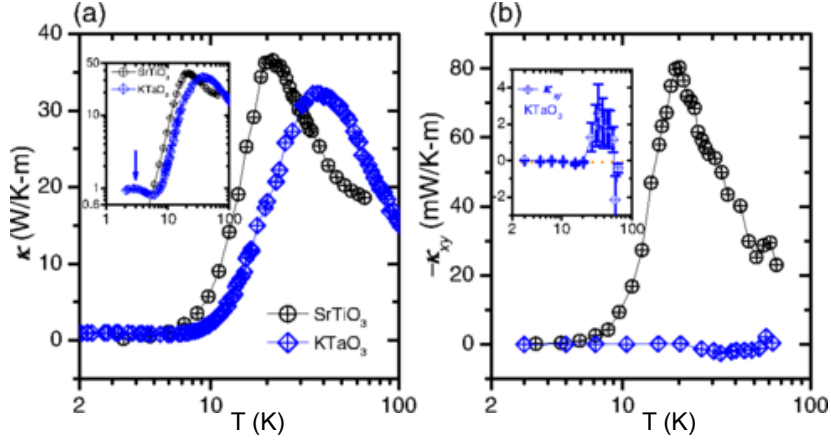


FIGURE 2.21 (a) Mesures de conductivité thermique dans SrTiO_3 (noir) et KTaO_3 (bleu). (b) Mesures de conductivité thermique de Hall dans les mêmes composés tracées comme $-\kappa_{xy}$ en fonction de la température. La figure provient de [106].

auteurs attribuent le signal κ_{xy} entièrement aux phonons. Ce signal n'est pas une propriété intrinsèque des systèmes paraélectriques, puisque l'isolant KTaO_3 ne présente qu'un très faible signal κ_{xy} (voir figure 2.21(b)). La différence entre ces deux composés est que KTaO_3 demeure cubique sur toute la gamme de température, tandis que SrTiO_3 subit une transition structurale (antiferrodistortive) sous 105 K qui entraîne la rotation des structures TiO_6 du cristal [107]. Cela crée la présence de domaines structuraux polaires venant diffuser les phonons. Les auteurs proposent que cette diffusion cause l'effet Hall thermique. L'étude du cyclage thermique générant de nouveaux domaines et donc différentes amplitudes dans κ_{xy} supporte cette hypothèse.

Peu de temps après l'observation d'un effet Hall thermique dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trou, Grissonnanche et collaborateurs ont présenté une nouvelle étude démontrant que le signal κ_{xy} observé était attribuable aux phonons [3]. En effectuant une étude selon l'axe c des cuprates Nd-LSCO, où seuls les phonons sont mobiles dans cette direction [108], l'effet Hall thermique κ_{zy} est présent seulement dans la phase pseudogap, et est nul au-delà (figure 2.22). Le signal observé est même isotrope dans La_2CuO_4 , c'est-à-dire $\kappa_{xy}(T) \simeq \kappa_{zy}(T)$ (figure 2.23). Cette interprétation est basée sur l'étude du transport thermique de l'isolant de Mott La_2CuO_4 effectuée précédemment par Hess et collaborateurs [108]. La conductivité thermique a été mesurée pour un courant parallèle (κ_{ab}) et perpendiculaire (κ_c) aux plans CuO_2 en fonction de la température. Les données sont présentées à la figure 2.24. La dépendance en température de κ_c est celle attendue pour un comportement

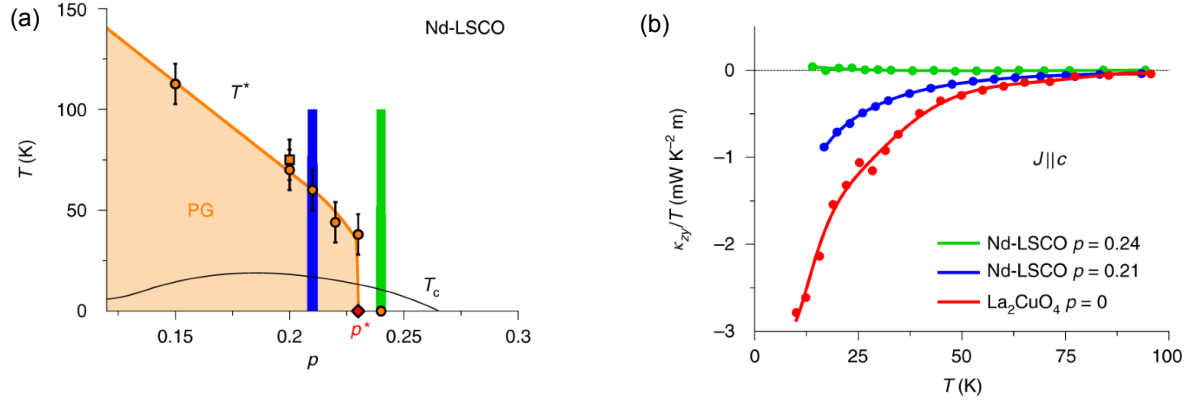


FIGURE 2.22 Évolution de l'effet Hall thermique selon l'axe c des cuprates à travers le diagramme de phase. (a) Diagramme de phase dopage température montrant la phase pseudogap sous T^* et p^* (orange). Les bandes bleu et vert indique la gamme de température où l'effet Hall thermique a été mesuré de part et d'autre de p^* . (b) κ_{zy}/T en fonction de la température T (*i.e.* $J \parallel c$) pour Nd-LSCO $p = 0.24$ (vert), $p = 0.21$ (bleu) et $p = 0$ (rouge). La figure provient de [3].

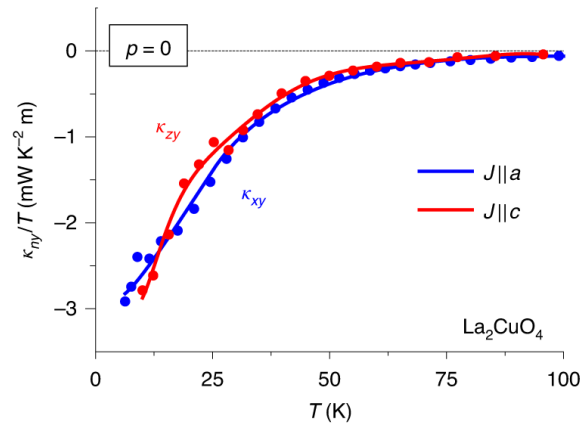


FIGURE 2.23 Conductivité thermique de Hall en fonction de la température sous un champ magnétique de $H = 15$ T dans La_2CuO_4 . Les données sont tracées κ_{ny}/T pour deux directions de chaleur : $J \parallel a$ ($n = x$, courbe bleue) et $J \parallel c$ ($n = z$, courbe rouge). La figure provient de [3].

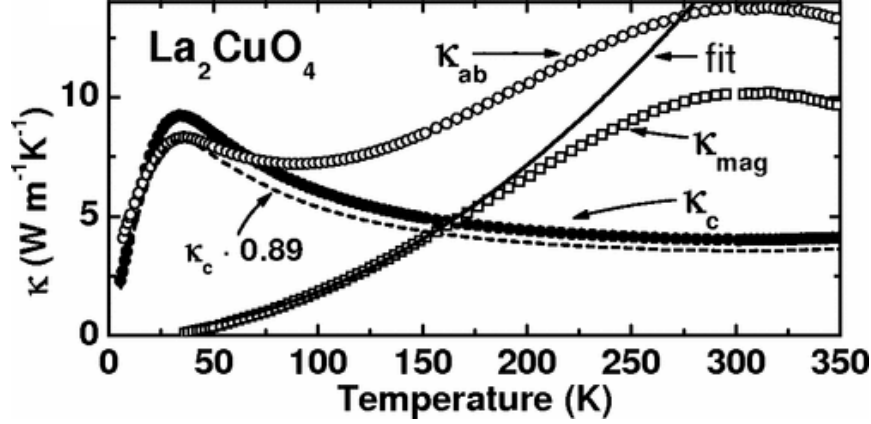


FIGURE 2.24 Conductivités thermiques $\kappa_{ab} = \kappa_{xx}$ (cercles ouverts), $\kappa_c = \kappa_{zz}$ (cercles fermés) et κ_{mag} (carrés ouverts) en fonction de la température dans l’isolant de Mott La_2CuO_4 . La figure provient de [108].

purement phononique, tandis que la dépendance en température de κ_{ab} montre une remontée à plus haute température suivie d’un large pic autour de 300 K. L’interprétation des auteurs est qu’une autre contribution d’origine magnétique s’additionne à la conductivité thermique des phonons pour κ_{ab} . Puisque les excitations magnétiques sont purement bidimensionnelles, elles ne contribuent pas au transport selon l’axe c et c’est pourquoi κ_c est purement phononique. Considérant que $\kappa_{ab}(T) = \kappa_{mag}(T) + \kappa_{ph}(T)$, les auteurs ont pu extraire κ_{mag} de la conductivité thermique pour obtenir la dépendance en température de la conductivité thermique des magnons (carrés ouverts dans figure 2.24).

Ainsi, oui les magnons sont présents dans La_2CuO_4 , mais puisque qu’ils ne contribuent pas au transport hors plan, ils ne peuvent être responsables du signal d’effet Hall thermique κ_{zy} observé par Grissonnanche et collaborateurs [3]. Le fait que $\kappa_{xy}(T) \simeq \kappa_{zy}(T)$ serait donc une conséquence de $\kappa_{ab}(T) \simeq \kappa_c(T)$ à basse température ($T < 50$ K).

Conséquemment, l’effet Hall thermique des phonons serait une nouvelle propriété expérimentale de la phase pseudogap des cuprates dopés en trous. Par contre, le mécanisme permettant aux phonons d’être déviés par un champ magnétique reste à découvrir. De plus, qu’elle est la propriété de la phase pseudogap qui permet aux phonons de réagir au champ magnétique? Est-ce seulement une propriété des cuprates dopés en trous? Ces nombreuses questions demeurent pour le moment sans réponse, mais nous nous y attarderons plus en détail dans le cadre de cette thèse.

2.1.4 Théories de l'effet Hall thermique des phonons

Les différentes études présentées à la sous-section précédente ont suscité beaucoup d'intérêt dans la communauté scientifique. De nombreux groupes de recherche théorique se sont penchés sur l'étude du transport thermique transverse des phonons. Quel est le mécanisme qui permet aux phonons d'être déviés par un champ magnétique dans les cuprates, ou encore dans un isolant ? Dans cette sous-section, nous présentons un peu plus dans le détail les récents développements théoriques du domaine.

Tout comme les électrons se couplant au champ magnétique via la force de Lorentz, les phonons doivent eux aussi se coupler d'une certaine façon au champ magnétique. Il est possible de classer ces mécanismes selon deux scénarios, un intrinsèque et un autre extrinsèque. Ce qui est entendu par scénarios intrinsèques sont les théories qui suggèrent un couplage des phonons avec leur environnement avoisinant [109]. Cela inclut l'état électronique du système où le couplage des phonons avec les spins présents [110]. Dans un cas de scénarios extrinsèques, la chiralité proviendrait de diffusion asymétrique des phonons sur différents types d'impuretés, par exemple sur des ions de terres rares [29], d'oxygène vacant [111], de domaines structuraux [106] ou de diffusion résonnante sur des systèmes dynamiques [112].

Scénarios intrinsèques

Le professeur Varma a proposé une théorie de l'effet Hall thermique dans la phase pseudogap des cuprates [109]. Selon cette approche, les phonons se coupleraient à un état électronique de boucles de courant présent dans la phase pseudogap venant briser la symétrie d'inversion du temps. Ces boucles de courant de la phase pseudogap engendreraient, sous la présence d'un champ magnétique, une distorsion dans le réseau, générant ainsi un effet Hall thermique des phonons. Cette théorie vient appuyer l'idée que le pseudogap possède un paramètre d'ordre de type boucle de courant [83]. Par contre, elle ne fonctionne que dans le cas des cuprates dopés en trous, puisqu'un état de boucles de courant ne trouve aucune signature expérimentale dans les cuprates dopés en électrons.

Le groupe du professeur Kivelson s'est aussi intéressé à l'effet Hall thermique des phonons. Dans un premier article en 2020, Chen et collaborateurs proposent un mécanisme intrinsèque d'effet Hall thermique causé par la courbure de Berry des phonons auquel s'ajoute un mécanisme extrinsèque de diffusions pour expliquer les résultats de SrTiO₃ (STO) [104].

Considérant le mécanisme intrinsèque en lui seul, les phonons acoustiques seuls ne génèrent pas un effet Hall thermique du même ordre de grandeur que celui observé expérimentalement. κ_{xy}^{th} est 10^{-4} fois plus petit que ce qui est observé dans STO [106]. Ainsi, les auteurs proposent en complément un scénario extrinsèque de diffusions asymétriques sur les domaines structuraux où κ_{xy} serait augmentée d'un facteur proportionnel à la constante diélectrique, multipliée par un couplage flexo-électrique du matériau. Le processus serait proportionnel au libre parcours moyen des phonons. Cela expliquerait pourquoi dans le cas de KTaO_3 , l'effet Hall thermique est négligeable, vu l'absence de domaines structuraux pouvant diffuser les phonons et limiter le libre parcours moyen. Dans le cas de STO, les auteurs prédisent donc un ratio $\kappa_{xy}/\kappa_{xx} = 10^{-3}$, qui est du même ordre de grandeur que celui de l'expérience.

Le groupe de Sachdev a proposé quelques théories pour expliquer l'effet Hall thermique dans les isolants, dont RuCl_3 [113]. Dans le cas des cuprates, le groupe Sachdev a proposé que l'état isolant antiferromagnétique sous T_N des cuprates serait à proximité d'une transition de phase quantique vers un état topologique (*semion topological order* en anglais) [102]. Cette proximité pourrait donner la chiralité aux phonons, en leur induisant une viscosité de Hall (*phonon Hall viscosity* en anglais) générant un effet Hall thermique [114]. En effet, la viscosité des phonons peut apparaître pour des phonons couplés à un système électronique gappé qui brise la symétrie d'inversion du temps. Ce modèle intrinsèque suggère que la viscosité de Hall des phonons est induite par un couplage spinon-phonon couplé au réseau cristallin carré et au champ magnétique. Dans un deuxième modèle, Sachdev propose un mécanisme extrinsèque de diffusion asymétrique sur des impuretés ponctuelles, où les phonons possédant une viscosité de Hall généreraient un effet Hall thermique [115]. (Ce modèle est inspiré par les résultats de Chen et collaborateurs [104].) Quoique les auteurs réussissent à générer un effet Hall thermique non nul, l'ordre de grandeur $\kappa_{xy}/\kappa_{xx} \approx 10^{-6}$ est plus faible qu'observé expérimentalement.

Balents et Savary proposent eux aussi un mécanisme intrinsèque de la conductivité des phonons reliés à une viscosité de Hall des phonons [110]. Leur théorie s'applique aux cuprates isolants de Mott et peut être généralisée à d'autres isolants magnétiques. Leur modèle repose sur des interactions spins-phonons dans le réseau ainsi que le couplage spin-orbite. Cependant, l'effet Hall thermique calculé est 10^{-4} fois plus petit que ce qui est observé expérimentalement. Les auteurs suggèrent donc eux aussi qu'un autre mécanisme extrinsèque de diffusion asymétrique des phonons sur les spins locaux serait en jeu pour expliquer le grand signal observé.

Scénarios extrinsèques

Une approche différente a été proposée par Flebus et Macdonald [111]. Ces derniers considèrent la diffusion asymétrique des phonons sur des défauts cristallins causés par un manque d'atome d'oxygène. Cela générerait un défaut ionique, donc une charge locale, qui lui serait influencé par la force de Lorentz en présence d'un champ magnétique. Ce modèle requiert que le libre parcours moyen des phonons soit plus grand que la longueur thermique des phonons acoustiques d'énergie $\hbar\omega \sim k_B T$. De plus, le ratio κ_{xy}/κ_{xx} varie peu en fonction de la température décroissante. Ainsi, le modèle prédit que les phonons acoustiques subiraient une diffusion asymétrique sur les défauts ioniques influencés par la force de Lorentz, générant un effet Hall thermique. Selon leurs estimations, $\kappa_{xy}/\kappa_{xx} \approx -10^{-3}$ serait du même ordre de grandeur que La_2CuO_4 . De plus, cette théorie ne s'applique pas seulement aux cuprates, mais à n'importe quels oxydes diélectriques qui respectent les deux conditions du modèle. Ce modèle prédit que κ_{xy} devrait être beaucoup plus grand dans l'état isolant que l'état métallique, car les électrons mobiles du métal écranterait la charge locale.

Le groupe de Kivelson propose une théorie plus générale impliquant un mécanisme extrinsèque de diffusion asymétrique résonnante des phonons [112]. Cette théorie suppose la diffusion asymétrique sur un système résonnant à trois niveaux comptant deux états excités presque dégénérés soumis à un champ magnétique. À titre d'exemple de système, les auteurs proposent un défaut dipolaire constitué d'une charge positive localisée et d'une charge négative dynamique pouvant occuper n'importe lequel des quatre sites formant un carré dans le plan xy (en supposant $\mathbf{B} = B\hat{z}$). De plus, les auteurs supposent que les phonons sont les porteurs de chaleurs dominant du système subissant des processus de diffusions élastiques. Notons que ce modèle suppose que κ_{xy} augmente de façon linéaire avec le champ magnétique. Ainsi, en utilisant les paramètres typiques des métaux oxydes de transitions et des ions d'oxygène à titre d'impureté dynamique, les auteurs arrivent à reproduire un signal d'effet Hall thermique semblable à celui observé dans La_2CuO_4 .

Jusqu'à maintenant, aucune théorie ne permet d'expliquer exactement ce qui est observé dans le cas des cuprates dopés en trous. Bien que les modèles de diffusion sur des impuretés ponctuelles ou magnétiques semblent générer un effet Hall thermique du bon ordre de grandeur, cela n'explique pas l'absence d'effet Hall thermique des phonons à $p = 0.24$ [3]. De plus, certaines théories sont seulement spécifiques aux cuprates, et il sera montré dans cette thèse que le phénomène d'effet Hall thermique des phonons semble beaucoup plus général que préalablement pensé. Notons aussi que jusqu'à présent, l'origine du signe négatif

de l'effet Hall thermique dans les cuprates demeure incompris.

2.2 Motivation de la thèse

La découverte d'un effet Hall thermique négatif qui apparaît dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous [2] a soulevé un tsunami de questions dans la communauté. Quelle est l'origine de ce signal qui croît quand la concentration de trous diminue? Est-ce qu'il s'agit d'une nouvelle signature de la phase pseudogap? Qu'est-ce qui explique la présence d'un effet Hall thermique dans un isolant de Mott? Est-ce que ce signal est aussi présent dans d'autres isolants?

C'était le portrait de la situation lorsque ma thèse débuta en 2018. Dans le cadre de cette dernière, la première question à investiguer est : qu'elle est l'origine du signal dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous? Quoique les mesures selon l'axe c des cuprates suggère un effet Hall thermique des phonons, l'origine pourrait provenir des magnons ou encore d'excitations plus exotiques. Pour faire la lumière sur l'origine de κ_{xy} dans les cuprates, et le mécanisme sous-jacent, j'ai étudié deux autres cuprates isolants de Mott, soit $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ et Nd_2CuO_4 , qui ont une structure similaire à La_2CuO_4 étudié précédemment [2], mais des différences significatives. Cette étude, présentée au chapitre 4, confirme que l'origine du signal provient des phonons, tout en éliminant divers mécanismes possibles derrière l'effet Hall thermique des phonons.

Par la suite, le chapitre 5 fait état d'une étude exhaustive de l'effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons. Ces matériaux cousins des cuprates dopés en trous ont un diagramme de phase aussi riche, mais mieux compris, que ces derniers. La mystérieuse phase pseudogap des cuprates dopés en trous, caractérisée par une perte de la densité d'états dans la région anti-nodale, est absente de ce côté du diagramme de phase. De plus, la phase anti-ferromagnétique est présente jusqu'à plus haut dopage ($x = 0.13$ dans $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ [60] comparé à $p = 0.02$ dans LSCO [61]) avant l'apparition de la supraconductivité. Dans cette étude, portant sur $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ et $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ et allant de l'isolant de Mott ($x = 0$) à la phase métallique ($x = 0.17$), nous confirmons la présence d'un signal d'effet Hall thermique négatif de ce côté du diagramme de phase, et ce à tous les dopages. L'origine de ce signal est encore une fois attribuée aux phonons, même dans la région métallique du diagramme de phase. Cela suggère aussi le caractère beaucoup plus universel de l'effet Hall thermique

dans les isolants. Nous discutons du rôle possible des fluctuations antiferromagnétiques dans le mécanisme derrière l'effet Hall thermique des phonons dans les cuprates.

Finalement, le chapitre 6 se concentre sur l'étude de l'effet Hall thermique dans un isolant antiferromagnétique cubique Cu_3TeO_6 . Effectivement, au cours de mon doctorat, la question initiale est devenue beaucoup plus large. Il semblerait que l'effet Hall thermique des phonons soit un phénomène beaucoup plus commun qu'il n'était pensé au début de ma thèse. Maintenant, nous voulons répondre à la question : quel est le mécanisme responsable de la chiralité des phonons dans les isolants. En étudiant un matériau cubique présentant une physique différente des cuprates, nous cherchons donc à comprendre ce phénomène. Le fait de mesurer un signal dans un composé cubique beaucoup plus simple est surprenant en soi. Cela confirme encore une fois que les phonons, sous certaines conditions, peuvent aussi donner un signal d'effet Hall thermique dans les isolants et que la physique des cuprates n'est pas un élément essentiel à cette chiralité. Cette étude montre aussi le caractère plus universel de cette signature dans les matériaux quantiques et suggère, tout comme le cas des cuprates, que l'antiferromagnétisme a un rôle à jouer derrière la conductivité thermique transverse des phonons.

Cette thèse ouvre donc la porte vers un tout nouveau domaine de la physique des matériaux quantiques : la recherche du mécanisme derrière la conductivité thermique transverse des phonons !

,

Chapitre 3

Méthodes expérimentales

Aux chapitres précédents, nous avons abordé les conductivités thermiques longitudinale et transverse de manière théorique, sans entrer dans les détails de la mesure en laboratoire. Ce présent chapitre est entièrement dédié aux méthodes expérimentales utilisées dans cette thèse. À travers les différentes sections, nous décrivons la préparation des échantillons, point de départ pour toute mesure expérimentale dans le domaine des matériaux quantiques, en passant par le montage expérimental et ses constituants pour finir par le déroulement de la mesure en laboratoire.

Les précautions à considérer seront aussi abordées, puisque bien que conceptuellement, les mesures puissent sembler simples, la mesure de la conductivité thermique demande beaucoup de minutie et de considérations.

3.1 Conductivité thermique : approche expérimentale

Comme vu au chapitre 1, la conductivité thermique κ_{xx} correspond au ratio de la chaleur appliquée sur le gradient thermique généré dans un échantillon. En pratique, le gradient thermique s'obtient lorsqu'une extrémité de l'échantillon est ancrée thermiquement à une valeur de référence T_0 connue (par exemple la sonde expérimentale) et l'autre à une source de chaleur. Le courant thermique est généré en injectant un courant électrique I dans un élément chauffant. Par effet Joule, il est possible de connaître précisément la quantité de

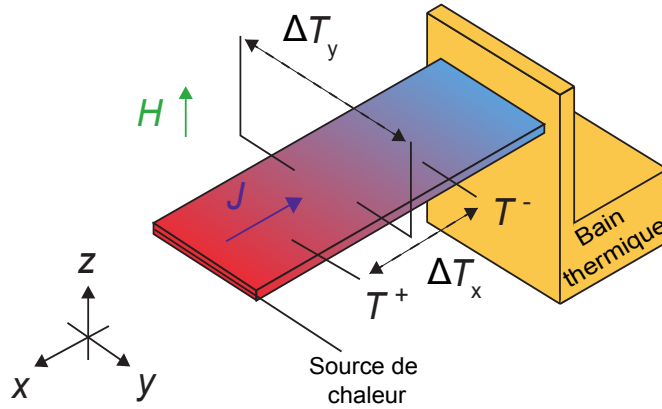


FIGURE 3.1 Schéma du montage expérimental de la mesure de conductivité thermique longitudinale, κ_{xx} , et transverse κ_{xy} . Une source de chaleur génère un courant de chaleur J le long de l'axe x d'un échantillon ancré thermiquement. Une différence de température ΔT_x peut alors être mesurée. Si l'on applique un champ magnétique H , perpendiculaire au courant de chaleur, un gradient thermique transverse ΔT_y peut être généré.

chaleur fournie à l'échantillon. Une différence de température $\Delta T_x = T^+ - T^-$ peut alors être mesurée.

L'effet Hall thermique κ_{xy} , ou conductivité thermique transverse, s'obtient lorsqu'un champ magnétique H , appliqué perpendiculairement au courant de chaleur, génère une différence de température transverse ΔT_y dans l'échantillon.

La figure 3.1 montre un schéma simplifié de la mesure utilisée pour obtenir les conductivités thermiques longitudinale et transverse.

3.2 Préparation des échantillons

Cette thèse porte principalement sur les cuprates dopés en électrons. Dans le groupe Taillefer, nous ne participons pas à la croissance des cristaux, et donc la collaboration avec d'autres groupes de recherche a rendu cette thèse possible. Les différents cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ont été fournis par le groupe de Zhi-Xun Shen de l'Université Stanford en Californie, tandis que les cristaux de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ont été fournis par le groupe de Richard

Greene de l'Université du Maryland. Les cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ont été crus selon la méthode de croissance en fusion de zone (*floating zone grown* en anglais) tandis que ceux de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ont été crus par la méthode de croissance en solution (*flux grown* en anglais). La concentration en oxygène ainsi que le dopage sont déjà connus lors de la réception. Plus de détails sur les techniques de croissance se trouvent aux références [55, 116]. Les cristaux reçus sont des monocristaux, préalablement orientés, permettant une mesure selon l'axe de haute symétrie désiré.

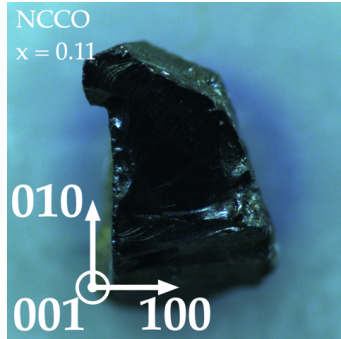
Afin de mesurer la conductivité thermique de nos échantillons, il faut les préparer adéquatement. La première étape consiste à les couper (si nécessaire), à l'aide d'une scie à fil, selon l'orientation à étudier. Dans le cas des cuprates, la majorité des mesures est effectuée selon l'axe a , afin que le champ magnétique soit parallèle à l'axe c des cristaux. Effectivement, ces matériaux étant principalement bidimensionnels, la physique que nous voulons étudier se trouve dans les plans CuO_2 . Donc, pour les mesures de κ_{xx} et κ_{xy} , le côté le plus long est l'axe a , et le champ est appliqué selon l'axe c . Les échantillons sont donc coupés et polis, si nécessaire, selon ces orientations. Dans le cas idéal, la longueur L est maximisée tandis que l'épaisseur t doit être la plus faible possible pour maximiser le gradient thermique longitudinal.

Une fois les échantillons sous forme de prismes rectangulaires, s'en suit l'apposition des contacts pour effectuer la mesure. Les contacts permettent de fixer des fils d'argent de diamètre de $25\ \mu\text{m}$ ou $50\ \mu\text{m}$ à l'échantillon, et les mesures thermiques ou électriques s'effectuent par ces fils.

Pour une mesure thermique, ce qui est le cas dans cette thèse, la qualité des contacts est moins importante que pour une mesure électrique, car il s'agit d'un courant de chaleur qui est envoyé dans notre échantillon, et les phonons sont toujours présents pour assurer son transport. Dans le cas présent, les contacts de tous les échantillons mesurés ont été faits suivant la même procédure.

De l'époxy d'argent (Epotex H20 E) a été utilisé pour apposer les fils d'argent, puis les échantillons ont été soumis à un chauffage dans un four allant à 500°C durant une heure sous oxygène. La disposition des contacts est montrée à la figure 3.2, soit deux contacts recouvrant la largeur de l'échantillon, en ses extrémités, pour le courant de chaleur, deux contacts pour ΔT_x et deux derniers contacts pour ΔT_y , opposé à T^+ et T^- . Il est aussi possible, tel que montré au schéma de la figure 3.1, d'apposer des contacts supplémentaires

(a) Cristal orienté



(b) Échantillon avec ses contacts

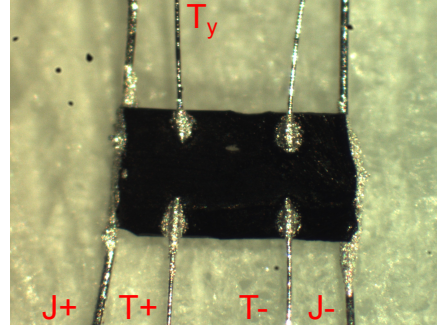


FIGURE 3.2 (a) Photo d'un cristal orienté de NCCO à dopage $x = 0.11$. Les dimensions de ce cristal sont $2.5 \times 1.7 \times 2.2$ mm. Une fois préparé, l'échantillon ressemble à la photo présentée en (b). L'orientation des deux photos est la même, *i.e.* le long côté de l'échantillon est selon l'axe (100), ou l'axe a du cristal. Plusieurs contacts sont présents, mais seulement cinq sont nécessaires à la mesure, soit deux contacts pour le courant de chaleur, deux contacts pour ΔT_x et un contact supplémentaire, T_y , opposé à T^+ pour ΔT_y , tel qu'indiqué sur la figure.

pour ΔT_y . Cela dépend toujours de l'échantillon et de la configuration de ce dernier. La géométrie des contacts ne devrait pas affecter la mesure.

Généralement, afin d'évacuer le courant de chaleur, le côté de l'échantillon où le contact J^- est apposé est lui-même connecté directement au bloc de cuivre, à l'aide de peinture d'argent. Cela facilite la thermalisation et diminue le temps de stabilisation. Cela permet aussi une meilleure stabilité lors des manipulations de l'échantillon, puisque le montage est plus solide de cette façon.

3.3 Montage expérimental

Chaque dispositif pour mesurer la conductivité thermique (longitudinale ou transverse) est composé des mêmes éléments, soit une source de chaleur, une thermométrie ainsi qu'une sonde. Dans cette section, nous décrirons en détail les différents éléments nécessaires à la mesure. De plus, nous discuterons différentes précautions mises en place pour s'assurer de la validité de la mesure.

Notons que deux sondes ont été utilisées dans le cadre de cette thèse, soit deux sondes pour les mesures à haute température dans un VTI (*Variable Temperature Inset*), nommées sonde du VTI et sonde Tallahassee (TLH). Quoique très semblables, ces différentes sondes amènent différentes procédures et composantes, et c'est ce qui est discuté ci-bas.

Pour clarification, nous nommons T_0 , la température de la sonde, T^+ la température du contact situé le plus près de la source de chaleur (point chaud) et T^- , la température du contact le plus proche du bain thermique (point froid).

3.3.1 Source de chaleur

Source de chaleur des échantillons

Afin de générer un courant thermique dans nos échantillons, une jauge de contrainte a été utilisée. Cette dernière a l'avantage d'offrir une très grande résistance électrique qui est indépendante de la température et du champ magnétique afin que la puissance transmise à l'échantillon soit toujours $P = RI^2$. Ainsi, la quantité de chaleur fournie à l'échantillon est toujours connue. Dans le but de générer un gradient thermique, l'autre extrémité de l'échantillon est, quant à elle, directement collée sur un bloc de cuivre, qui lui est vissé à la sonde (*i.e.* au bain thermique). Cela permet un gradient thermique stable lorsqu'un courant de chaleur constant est appliqué.

Une jauge de contrainte de $5 \text{ k}\Omega$ constitue la source de chaleur principale pour les deux sondes du VTI. Un fil d'argent de $100 \mu\text{m}$ est soudé sur la source de chaleur pour permettre l'apport de chaleur à l'échantillon. Des bobines de manganin (alliage de cuivre, manganèse et nickel) assurent la connexion électrique, tout en étant isolées thermiquement de l'échantillon.

Source de chaleur de la sonde

Finalement, une dernière source de chaleur est nécessaire au montage expérimental. Il s'agit de la source de chaleur de la sonde. Cette source de chaleur permet de réguler et stabiliser la température T_0 (à l'aide d'un régulateur PID) pour faire la mesure (voir section 3.4).

La source de chaleur de la sonde VTI est un fil résistif de manganèse de $120\ \Omega$ collée, à l'aide de verni GE, directement sur la sonde. Pour la sonde TLH, deux jauges de contraintes en série de $120\ \Omega$ chacune constituent la source de chaleur principale.

3.3.2 Thermométrie

La thermométrie constitue un élément crucial du montage de conductivité thermique. Chaque composante doit être judicieusement choisie afin d'opérer de façon optimale en fonction de la gamme de températures à étudier.

Thermomètres Cernox

Ces thermomètres composés d'oxynitrides sont des isolants présentant une grande variation dans leur résistance en fonction de la température. Cela nous permet d'associer une température à toute résistance R_{Cernox} mesurée. Les Cernox utilisées dans cette thèse sont sensibles sur la gamme de température allant de 1 K à 300 K.

Les Cernox doivent être calibrées *in situ* à chaque mesure par rapport à la température de base T_0 (qui elle est calibrée). Pour chaque valeur de T_0 , le signal R_{Cernox} sans chaleur est enregistré afin d'obtenir une courbe de référence. Ensuite, le courant de chaleur peut être appliqué dans l'échantillon, ce qui va faire augmenter la température de ce dernier et donc changer la valeur de la résistance du Cernox. Une courbe de calibration $R(T)$ peut alors être créée, et ce pour chaque thermomètre utilisé dans la mesure (T^+ et T^-).

Ces thermomètres sont utilisés sur la sonde appelée «sonde Tallahassee» (sonde TLH). Ces derniers sont reliés électriquement à l'échantillon par des fils d'argent de $50\ \mu\text{m}$.

Thermocouples

Un thermocouple est une composante utilisée pour mesurer la température, tout comme les thermomètres. Les thermocouples sont constitués de deux branches métalliques fabriquées à partir de métaux différents. Ces métaux sont fusionnés à une extrémité créant ainsi la jonction. C'est à cet endroit que la température est mesurée. Lorsque la jonction subit un changement de température, par effet Seebeck, une tension est générée. Cette tension mesurée peut alors être traduite, à l'aide de table de référence, en température.

L'effet thermoélectrique, ou effet Seebeck, consiste en l'apparition d'un champ électrique, et donc d'une différence de potentiel, entre les points chaud et froid d'un métal. Le coefficient Seebeck S est décrit selon

$$S = - \left| \frac{\vec{E}}{\vec{\nabla}T} \right| = - \left| \frac{\Delta V}{\Delta T} \right|, \quad (3.1)$$

où E est le champ électrique produit par le mouvement des électrons soumis à une variation de température ΔT . Le signe négatif vient du fait que les électrons soumis à un gradient thermique se déplacent du point chaud au point froid, créant une différence de potentiel $-\Delta V$. Ainsi, le coefficient Seebeck est positif si le courant électrique est dans la même direction que le courant de chaleur. Le pouvoir thermoélectrique est donc une sonde sensible aux porteurs de charges dans les métaux.

Le type de thermocouple utilisé ici est le thermocouple de type E composé de constantan (alliage métallique de cuivre et de nickel) et de chromel (alliage métallique de nickel et de chrome). Ce dernier offre l'avantage d'être peu sensibles au champ magnétique et sensible sur la gamme de température allant de 2.5 K à 800 K.

Deux types de thermocouples peuvent être utilisés, soit un thermocouple absolu ou un thermocouple différentiel. Le premier est utilisé pour obtenir une température absolue inconnue, tandis que le second est utilisé pour obtenir une différence de température. Le principe guidant ces deux types de thermocouples reste le même. À partir d'une valeur de référence connue T_0 et en utilisant le pouvoir thermoélectrique, il est possible de trouver la température recherchée (ou la différence de température recherchée). Cela est montré à la figure 3.3.

Dans le cas du thermocouple absolu, afin de trouver T_1 à partir de T_0 , nous utilisons

$$\Delta V = - \int_{T_0}^{T_1} S_{\text{Ct}} dT - \int_{T_1}^{T_0} S_{\text{Chr}} dT = (S_{\text{Ct}} - S_{\text{Chr}}) (T_1 - T_0) = S_{\text{Ther}} (T_1 - T_0), \quad (3.2)$$

où S_{Ct} est le coefficient Seebeck du constantan, S_{Chr} celui du chromel et S_{Ther} du thermocouple, afin de trouver la température T_1 , puisque ΔV et T_0 sont des quantités mesurées en laboratoire. Dans le cas du montage sur la sonde VTI, le thermocouple absolu est jumelé à un thermocouple différentiel dans le but de connaître ΔT_x . Effectivement, un thermocouple absolu est connecté à T^- pour obtenir une valeur de référence. Dans le cas des thermocouples

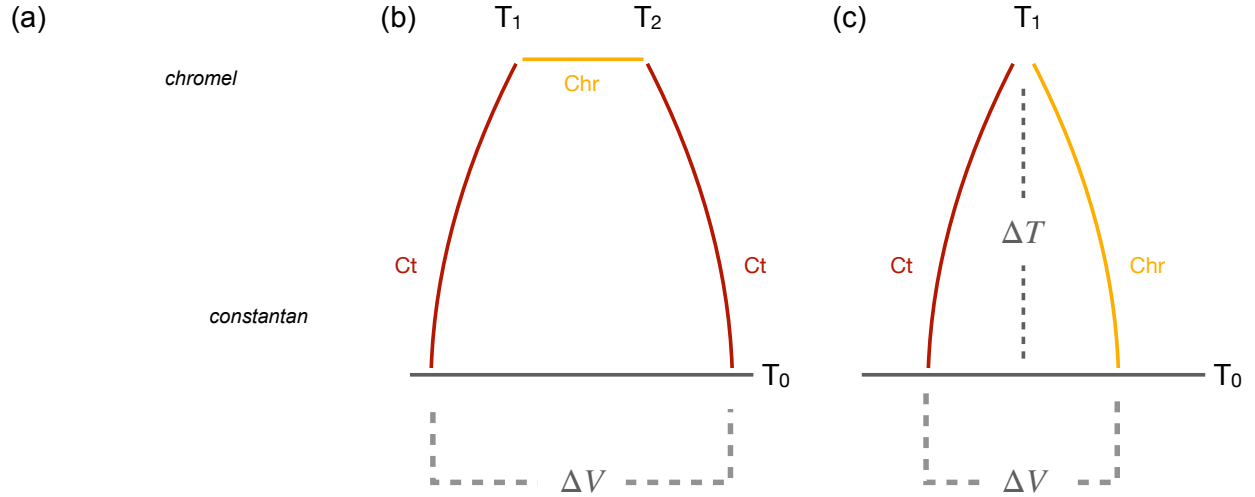


FIGURE 3.3 (a) Photo d'un thermocouple différentiel de type E utilisé dans les mesures de conductivité thermique. (b) Schéma d'un thermocouple différentiel. La différence de température est donnée par $\Delta T = T_1 - T_2 = \Delta V/S_{\text{Ther}}$. (c) Schéma d'un thermocouple absolu. À l'aide de la différence de température $\Delta T = T_1 - T_0 = \Delta V/S_{\text{Ther}}$, il est possible d'obtenir T_1 . Dans tous les cas, T_0 représente la température connue (à l'aide d'un thermomètre calibré) de la sonde.

différentiels, ces derniers donnent directement un ΔT tel que

$$\Delta V = - \int_{T_0}^{T_1} S_{\text{Ct}} dT - \int_{T_1}^{T_2} S_{\text{Chr}} - \int_{T_2}^{T_0} S_{\text{Ct}} dT = (S_{\text{Ct}} - S_{\text{Chr}}) (T_2 - T_1) = S_{\text{Ther}} \Delta T. \quad (3.3)$$

Pour la sonde VTI, deux thermocouples différentiels sont utilisés : un pour ΔT_x et un pour ΔT_y . Dans la sonde TLH, un thermocouple différentiel est utilisé pour obtenir ΔT_y .

Donc, dans tous les cas, lorsqu'un thermocouple est utilisé, une différence de potentiel entre deux points est mesurée, puis à l'aide de tables fournies par le fabricant, cette différence de potentiel est traduite en température. Les thermocouples sont reliés à l'échantillon à l'aide de fils d'argent de $25 \mu\text{m}$, qui eux sont connectés à la jonction par du vernis Ge. Ainsi, les thermocouples sont connectés thermiquement à l'échantillon tout en étant isolés électriquement.

Thermomètre principal

Afin de connaître la température du montage, soit T_0 , un thermomètre principal calibré en température doit être installé. Dans le cas des deux sondes utilisées, une Cernox calibrée en

température est installée directement sur le porte échantillon. Ce thermomètre principal est parfaitement ancré thermiquement sur le porte échantillon, afin que nous puissions connaître en tout temps sa température et ainsi bien calibrer notre thermométrie.

3.3.3 Précautions expérimentales

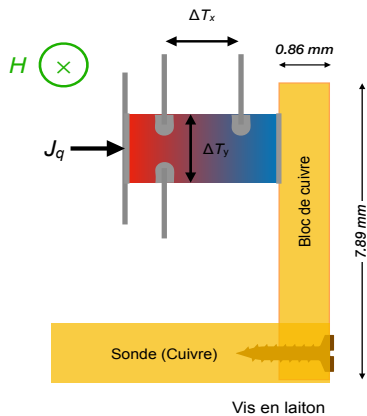
Une des plus grandes difficultés de la mesure de la conductivité thermique est de s'assurer que toute la chaleur fournie par la source thermique traverse l'échantillon afin de générer un ΔT_x . Effectivement, s'il y a des fuites de chaleur, la conductivité thermique de l'échantillon serait surestimée puisque le gradient thermique généré serait plus faible qu'attendu. Afin d'éviter toute perte de chaleur, de nombreuses précautions ont été prises en compte dans le développement du montage expérimental. Premièrement, afin d'éviter des pertes de chaleur par convection, la mesure est toujours effectuée sous vide ($\sim 10^{-6}$ mBar). Ensuite, les composantes du montage sont découplées thermiquement de la sonde expérimentale. Tous les éléments du montage sont suspendus dans le vide par des fils de Kevlar, un mauvais conducteur thermique, de $10 \mu\text{m}$ de diamètre. Cependant, un lien électrique doit être fait entre les éléments du montage (thermomètres et source de chaleur) et la sonde pour pouvoir effectuer la mesure. Pour limiter les fuites de chaleur via les différents éléments du montage, les connexions électriques sont réalisées à l'aide de bobines de fil de manganin. Il s'agit d'un alliage de mauvaise conductivité thermique. Ces bobines de fil sont constituées de fils d'environ 15 cm de long, enroulés sur eux-mêmes d'une résistance d'environ 150Ω chacun.

Les thermocouples, quant qu'à eux, sont directement soudés aux fils de cuivre de la sonde. La soudure est ensuite collée, à l'aide de vernis Ge, au niveau du montage de la sonde, donc à T_0 . Ainsi, il n'y a pas d'autres gradients thermiques induits.

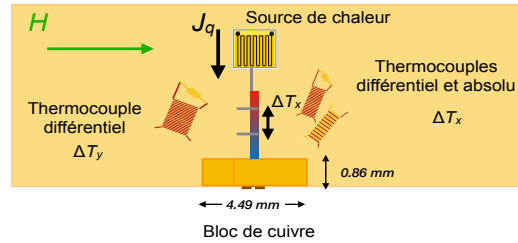
Finalement, les pertes de chaleur par rayonnement peuvent aussi venir biaiser la mesure. Ces dernières sont plus susceptibles de se produire à haute température, soit lorsque l'échantillon (et les composantes du montage) sont plus chauds que l'enceinte. Pour limiter ces pertes par radiation, le gradient de température induit dans les échantillons est limité à 5 % de la température moyenne de l'échantillon.

Puisqu'un des buts principaux de cette thèse est de mesurer l'effet Hall thermique transverse, ces précautions sont d'autant plus nécessaires. Effectivement, le signal brut de l'effet

(a) Vue de côté du montage expérimental



(b) Vue de haut du montage expérimental



(c) Photo du montage expérimental (sonde VTI)



FIGURE 3.4 Schéma du montage expérimental de la sonde VTI utilisée dans cette thèse. (a) Vue de côté. L'échantillon, collé sur le bloc de cuivre, est inséré sur la sonde de façon à ce que le champ magnétique H soit perpendiculaire au courant de chaleur J . (b) Vue de haut. La source de chaleur est reliée à l'échantillon par un fil d'argent. Un thermocouple différentiel est utilisé pour obtenir ΔT_y . Un second thermocouple différentiel est utilisé pour obtenir ΔT_x . Un thermocouple absolu est connecté à T^- . (c) Photo de la sonde. Le schéma de montage présenté en (a) et (b) est encadré en jaune. La source de chaleur principale (fil de manganèse) de la sonde est enroulée autour de la sonde (encadré rouge).

Hall thermique (ΔT_y) est de 100 à 1000 fois plus petit que celui mesuré en conductivité thermique (ΔT_x). Les conditions expérimentales doivent donc être optimales.

3.3.4 Sondes à haute température

Une sonde est un dispositif sur lequel est rattaché l'échantillon et le montage expérimental qui permet d'atteindre la gamme de température désirée. Dans le cadre de cette thèse, deux sondes, soit la sonde VTI et la sonde TLH, ont été utilisées pour la plage de température allant de 2.5 K à 100 K. Ces deux sondes permettent d'obtenir les mêmes résultats, et leur utilisation varie en fonction des besoins des autres membres du groupe Taillefer. Par contre, la sonde TLH a spécialement été conçue par Nicolas Doiron-Leyraud et Gaël Grissonnanche pour des mesures en laboratoire de champ magnétique intense selon les spécificités des cryo-

stats et aimants supraconducteurs de ces laboratoires externes. Plus de détails peuvent être trouvés dans la thèse de Gaël Grissonnanche sur la création de cette sonde [117].

Lesdites sondes sont constituées d'un cylindre creux d'acier inoxydable d'une longueur approximative de 2 m sur lequel est soudé un demi-cylindre de laiton assez massif à une de ses extrémités. La sonde comprend le montage expérimental (sur le demi-cylindre de laiton), les paires de fils torsadés ainsi que la tête avec les connexions électriques. La tige est creuse, puisqu'elle sert de ligne de pompage sur le montage afin que ce dernier reste sous vide durant toute la mesure. Un cône de laiton est inséré autour du montage et est fixé à l'aide de la graisse sous vide. La sonde TLH possède, quant à elle, une deuxième ligne de pompage puisque cette sonde doit être insérée dans une enceinte, avec du gaz d'échange (~ 2 mBar d'hélium), avant d'aller dans le cryostat ou VTI. La sonde VTI s'insère directement dans l'enceinte désirée.

Une fois la sonde prête, elle est insérée dans un VTI qui est lui-même dans un cryostat contenant une bobine supraconductrice allant à 15 T (ou 17 T si sa température est abaissée sous 2 K). Le VTI est une enceinte permettant de varier la température de la sonde et d'atteindre la température désirée de 2.5 K. Effectivement, à l'aide d'une valve pointeau et d'un système de pompage, il est possible de descendre sous la température de l'hélium liquide (4.2 K) jusqu'à 1.8 K dans des conditions optimales. Afin d'aller à des températures plus élevées, la température du VTI est augmentée pour éviter les pertes de chaleur par radiation. Un des grands avantages de ce système est qu'il est très facile d'insérer ou d'enlever la sonde, permettant un bon roulement des différentes mesures. Plus de détails sur le fonctionnement du VTI se trouvent dans la thèse de Gaël Grissonnanche [117].

3.4 Déroulement de la mesure

Toutes les mesures de conductivités thermiques longitudinale et transverse présentées dans cette thèse ont été produites en variant la température en utilisant une méthode à l'état stationnaire (*steady-state method* en anglais). Cela consiste à maintenir nos échantillons sous un champ magnétique fixe H et à changer sa température par bonds discrets (par exemple des pas de 2 ou 3 K pour les mesures à haute température). Ainsi, il faut attendre à chaque température désirée que toutes les composantes du montage soient thermalisées avant d'effectuer la mesure.

Pour les mesures dans le VTI, le temps de stabilisation passe de quelques minutes à basse température (sous ~ 10 K) à une trentaine de minutes à plus haute température (plus de ≈ 50 K).

Une fois la température stabilisée (le temps de stabilisation varie pour chaque température et champ magnétique), une valeur de référence des thermocouples (ou thermomètres) est enregistrée avant d'envoyer le courant de chaleur J dans l'échantillon. Ces valeurs de références permettent d'enlever le signal de fond (*background*) des thermocouples une fois la chaleur appliquée, ou encore de calibrer les thermomètres. La mesure est alors reprise pour une autre valeur de température.

Afin d'obtenir κ_{xy} , une fois toute la plage de température couverte (par exemple, de 2.5 K à 100 K), la direction du champ est inversée à $-H$. La même procédure, avec exactement les mêmes paramètres (mêmes incréments de température, temps de stabilisation, etc.), est utilisée pour ces valeurs négatives de champ. On définit alors $\Delta T_y(T, H) = [\Delta T_y(T, +H) - \Delta T_y(T, -H)] / 2$, éliminant ainsi toute contamination symétrique du signal provenant du gradient thermique longitudinal par le possible désalignement des contacts transversaux.

Les mesures sont toujours effectuées en fonction d'une température croissante, allant de 2.5 K à 100 K pour les mesures prises dans le VTI et de 50 mK à 4 K pour les mesures dans le réfrigérateur à dilution. Le champ magnétique est toujours changé à la même température, soit à 100 K avant de débiter le cycle de refroidissement.

3.4.1 Validité de la méthode expérimentale

Bien que la méthode présentée ci-haut fut celle utilisée dans cette thèse, il est possible de mesurer la conductivité thermique transverse, κ_{xy} , de différentes façons.

La méthode à état stationnaire peut aussi être utilisée en fonction du champ magnétique. Cela consiste à maintenir la température de nos échantillons stable et changer la valeur du champ magnétique selon des bonds discrets (de 1 à 2 T par exemple). À une température T donnée, un courant de chaleur J est envoyé dans l'échantillon. Lorsque l'échantillon est thermalisé, il est possible de changer le champ de $-H$ à H par bonds discrets. Lorsque toute la plage de champ est couverte, la température de l'échantillon est changée. Contrairement

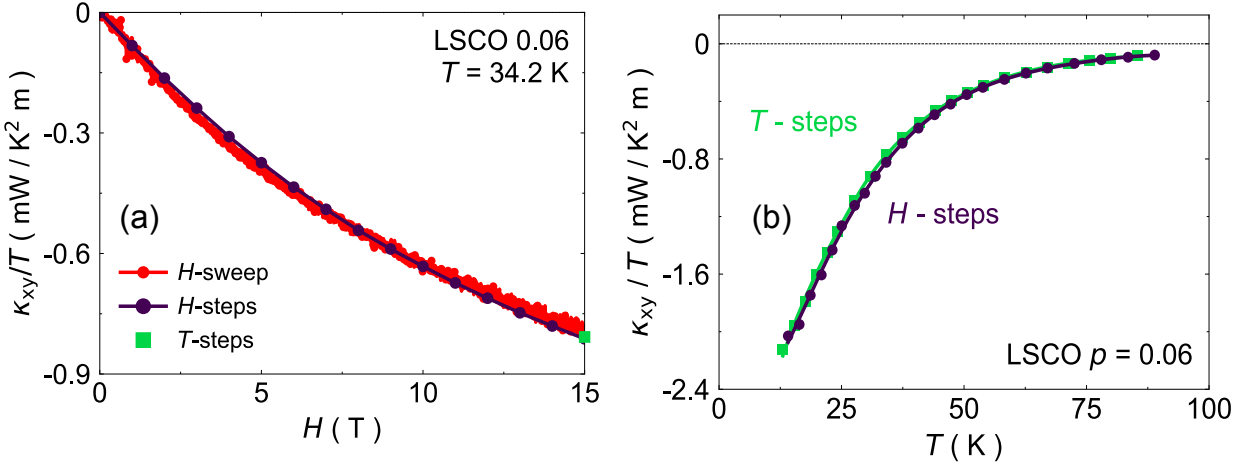


FIGURE 3.5 (a) κ_{xy}/T en fonction du champ magnétique à $T = 34.2$ K dans le cuprate LSCO $p = 0.06$. Le carré vert a été obtenu en utilisant la méthode à état stationnaire en fonction de la température (*T-steps*) à $H = 15$ T. Les cercles mauves ont été obtenus en utilisant la méthode à état stationnaire en fonction du champ magnétique (*H-steps*). Les points rouges ont été obtenus en utilisant la méthode de balayage en champ continu (*H-sweep*) à un taux de 0.7 T/min. (b) κ_{xy}/T en fonction de la température pour $H = 15$ T. Les points verts ont été obtenus en utilisant la méthode à état stationnaire en fonction de la température (*T-steps*). Les cercles mauves ont été obtenus en utilisant la méthode à état stationnaire en fonction du champ magnétique (*H-steps*).

à la méthode utilisée dans cette thèse, cette méthode ne tient pas compte des possibles changements dans le signal de fond dans les thermocouples. Pour tenir compte du signal de fond, il faudrait effectuer la mesure une deuxième fois, mais sans courant de chaleur, pour venir soustraire ce dernier. Notons que les thermocouples devraient cependant être symétriques en champ magnétique.

Finalement, il est possible de mesurer l'effet Hall thermique en effectuant des balayages en champ magnétique. Très similaire à la méthode stationnaire en champ, cette méthode consiste en premier lieu à fixer l'échantillon à une température donnée. Un courant de chaleur J peut être appliqué et une fois l'échantillon thermalisé, le champ est balayé de $-H$ à H . Cette méthode n'est pas à privilégier si les différences de température ΔT_y sont très faibles, puisqu'il peut y avoir des délais dans la thermalisation transverse.

La validité des trois méthodes présentées ici a été vérifiée par des mesures en laboratoire dans le cuprate LSCO par deux membres du groupe Taillefer, Gaël Grissonnanche et Étienne

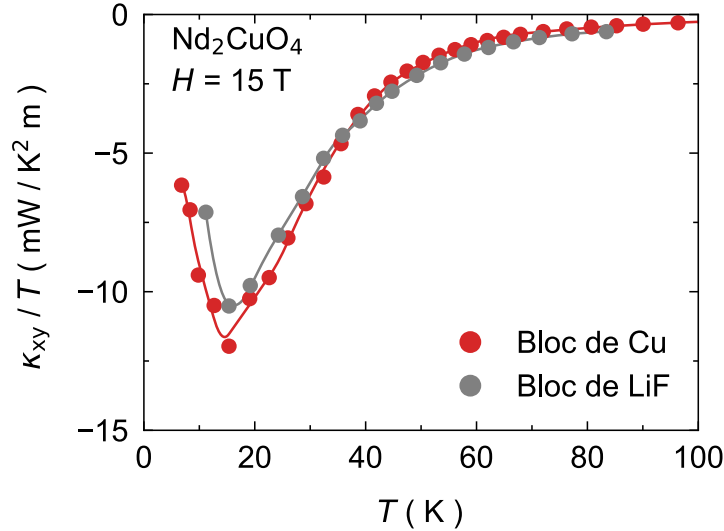


FIGURE 3.6 Conductivité thermique κ_{xy} dans le composé Nd_2CuO_4 pour un champ magnétique de $H = 15$ T, tracé comme κ_{xy}/T en fonction de la température T . En rouge, l'échantillon était collé sur un bloc de cuivre, tandis qu'en gris, le même échantillon était collé sur un bloc de LiF. Dans les barres d'erreur, le signal mesuré est le même. La principale incertitude sur la valeur absolue de ces données vient des facteurs géométriques associés aux contacts et aux dimensions, mais comme les mêmes contacts et le même échantillon ont été utilisés, la comparaison ne souffre pas de cette incertitude. On conclut donc que le cuivre n'a aucun effet sur le signal ΔT_y mesuré.

Lefrançois. Les résultats sont présentés à la figure 3.5. Il est possible d'observer que ces méthodes donnent des résultats similaires. Ainsi, la méthode expérimentale utilisée dans cette thèse est tout aussi valable que n'importe quelle autre méthode présentée dans la littérature.

Une autre précaution qui a été prise fut la vérification que le bloc de cuivre ne contaminait pas le signal ΔT_y mesuré. Dans les informations supplémentaires de D. Watanabe et collaborateurs [41], il est suggéré d'utiliser un bloc de LiF, un isolant électrique, plutôt qu'un métal comme le cuivre pour éviter des contaminations parasites. Nous avons donc vérifié cette hypothèse dans le composé Nd_2CuO_4 et n'avons observé aucune contamination provenant du bloc de cuivre. Les résultats, illustrés à la figure 3.6, confirment que le bain thermique choisi dans le cadre de cette thèse, soit un bloc de cuivre, n'a aucun impact sur le ΔT_y mesuré.

3.5 Mesure sous différentes configurations

Dans cette thèse, nous nous intéressons principalement aux cuprates supraconducteurs. Ces matériaux sont quasi-bidimensionnels et la direction selon laquelle le courant de chaleur est injecté, ainsi que la réponse induite, sont très importantes. Dans la majorité des résultats présentés dans cette thèse, le courant de chaleur est injecté selon l'axe des x , ou dans le plan Cu-O des cuprates. Le champ magnétique est alors perpendiculaire au plan Cu-O, ou parallèle à l'axe z ou l'axe c des composés. Ainsi, nous obtenons κ_{xx} et κ_{xy} tel qu'expliqué précédemment.

Dans certaines situations, il peut être instructif de varier l'orientation du champ magnétique ou encore du courant de chaleur. Nous appelons κ_{zy} la situation où le courant de chaleur est induit selon l'axe c de nos cristaux et le champ magnétique H orienté dans le plan. Il faut donc préparer nos échantillons en conséquence pour obtenir l'orientation désirée. En d'autres termes

$$\kappa_{zz} = \frac{J}{\Delta T_z} \frac{L}{wt}, \quad (3.4)$$

$$\kappa_{zy} = -\kappa_{yy} \frac{\Delta T_y}{\Delta T_z} \frac{L}{w}. \quad (3.5)$$

Dans le cas des cuprates, en considérant la géométrie des plans de CuO_2 , il est possible de prendre $\kappa_{yy} = \kappa_{xx}$. Cependant, si ce n'est pas le cas comme dans des matériaux orthorhombiques, cette quantité doit être mesurée indépendamment.

La technique de mesure est la même que celle décrite ci-haut. Cependant, tout dépendamment des symétries du cristal, il peut être nécessaire de faire une mesure supplémentaire pour obtenir κ_{yy} . Dans tous les cas, pour une mesure selon l'axe c dans les cuprates, il est nécessaire d'avoir deux échantillons : un premier coupé et orienté afin d'avoir le plus long côté selon l'axe a pour obtenir κ_{xx} et κ_{xy} , et un deuxième échantillon avec le plus long côté selon l'axe c pour obtenir κ_{zz} et κ_{zy} . Il est préférable que ces deux échantillons proviennent du même échantillon «mère» pour obtenir des résultats fiables et comparables en termes de concentration d'impuretés.

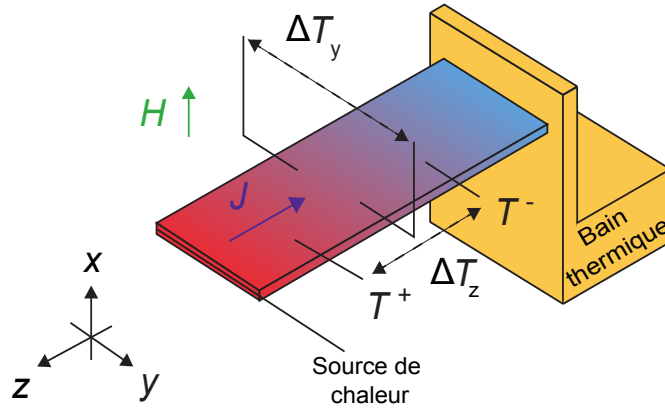


FIGURE 3.7 Schéma de la conductivité thermique κ_{zy} selon l'axe z . Semblable à la conductivité thermique longitudinale κ_{xx} , cette fois-ci, le plus long côté de l'échantillon L est selon l'axe c de nos cristaux.

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté dans le détail la méthode expérimentale utilisée dans cette thèse, soit la mesure de la conductivité thermique. Les deux sondes permettent des mesures à haute température dans un VTI. Peu importe la sonde utilisée, les mesures sont valides dans tous les cas.

Maintenant que les concepts de base de la conductivité thermique longitudinale et transverse sont acquis, et que nous avons une meilleure idée de la difficulté expérimentale pour réaliser une telle expérience, il convient d'entrer dans le vif du sujet. Aux prochains chapitres, nous présentons les résultats principaux de cette thèse sur l'effet Hall thermique dans des isolants de Mott, les cuprates dopés en électrons et un isolant antiferromagnétique.

Chapitre 4

Effet Hall thermique dans des cuprates isolants de Mott

4.1 Mise en contexte

Une récente étude de notre groupe a démontré qu'il existait un signal de l'effet Hall thermique dans la phase pseudogap des cuprates dopés en trous, et ce jusqu'à la phase isolante [2]. Cette découverte surprenante a mis en évidence la présence de particules sans charge, mais sensibles au champ magnétique externe. Une étude de l'effet Hall thermique selon l'axe c a révélé l'origine de ce signal : les phonons [3]. En effet, seuls les phonons sont mobiles dans cette direction. Les excitations électroniques et de spins sont confinées au plan CuO_2 . Les données rapportées par Grissonnanche et collaborateurs montrent que les phonons chiraux sont aussi mobiles pour un courant de chaleur dans le plan que hors plan. Puisque les phonons sont des excitations sans charge et sont présents dans tous les matériaux, nous sommes amenés à une toute nouvelle question : comment les phonons acquièrent-ils cette chiralité dans les cuprates ?

C'est la première question que nous nous posons dans cette thèse. Le premier article est une étude comparative de trois isolants de Mott, soit Nd_2CuO_4 , $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ et La_2CuO_4 . Le premier objectif de cet article est de confirmer l'hypothèse des phonons comme origine du transport thermique transverse. Quoique la mesure selon l'axe c des cuprates soit convaincante pour confirmer l'origine des phonons, les magnons pourraient se coupler, via des interactions de type Dzyaloshinskii-Moriya (DM), au champ magnétique dans La_2CuO_4 [103].

Caractéristiques	La ₂ CuO ₄	Nd ₂ CuO ₄	Sr ₂ CuO ₂ Cl ₂
Structure	Orthorhombique	Tétraogonale	Tétraogonale
T_N	300 K	245 K	250 K
Oxygènes apicaux	Oui	Non	Non
«Spin-Canting»	Oui	Non	Non
Domaines structuraux	Oui	Non	Non

TABLEAU 4.1 Différentes caractéristiques étudiées dans l'étude comparative de l'effet Hall thermique dans trois isolants de Mott.

En effet, la structure unique de ce cuprate permet aux spins des octaèdres CuO₆ de sortir du plan pour générer l'interaction DM. C'est pourquoi les isolants de Mott Nd₂CuO₄ et Sr₂CuO₂Cl₂ sont si important pour notre analyse comparative. Ces matériaux sont structurellement différents, nous permettant d'étudier différentes hypothèses de chiralité. Les différences principales sont indiquées au tableau 4.1.

Cette étude a permis d'exclure trois des principaux mécanismes connus de la chiralité des phonons. Nous montrons que ni un ordre magnétique chiral [27], ni des impuretés de terre rare permettant la diffusion asymétrique des phonons [29] et ni les domaines structuraux [106] ou magnétiques ne sont en cause. Cela nous permet de conclure que d'autres mécanismes sont en jeu, tel le couplage des phonons à des particules exotiques [118], dont les spinons [102] ou encore un couplage aux fluctuations antiferromagnétiques à courte portée.

4.2 Article

Cet article présente les résultats de mon premier projet de thèse. Mon collègue Gaël Grissonnanche et moi sommes les investigateurs principaux de ce projet. J'ai pris part à la préparation des échantillons de Sr₂CuO₂Cl₂ (mise en place des contacts), à la prise et l'analyse des données expérimentales ainsi qu'à la rédaction de l'article. Andréanne Allaire et Adrien Gourgout ont assisté à l'expérience et l'analyse des données expérimentales. Les mesures sur Nd₂CuO₄ ont été prises par Sven Badoux, Anaëlle Legros et Étienne Lefrançois quelque temps auparavant. Les échantillons de Sr₂CuO₂Cl₂ nous ont été fournis par R. Liang,

W. N. Hardy et D. A. Bonn et l'échantillon de Nd_2CuO_4 nous a été fourni par C.H. Wang et X. H. Chen. Maxime Dion a orienté les cristaux de $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Louis Taillefer a supervisé le projet et participé à la rédaction de l'article.

En plus des résultats présentés dans l'article, nous avons fait l'étude de cinq échantillons de $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, tous présentant des résultats similaires. La préparation des échantillons fut un procédé très délicat, puisque $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ est très sensible à l'air ambiant. Afin de prévenir l'oxydation de ces composés, nous avons dû travailler de façon très rapide et minutieuse. Les échantillons nous sont parvenus dans une enceinte scellée, et une fois cette enceinte brisée, nous avons coupé et préparé deux échantillons lors de la même journée où nous avons débuté la mesure. Ces précautions limitaient donc le temps d'exposition à l'air, limitant ainsi les risques de dégradation. Les cristaux restants ont été entreposés dans une enceinte sous vide, et pour les mesures subséquentes, les mêmes précautions ont toujours été appliquées.

Comme montré dans l'article, cette étude ne se résume pas seulement à mesurer $\kappa_{xy}(T)$ dans $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ selon une seule configuration, soit $H \perp J$. Afin d'étudier la possibilité que l'effet Hall thermique ne résulte pas de domaine magnétique, nous avons effectué la mesure selon différentes configurations. Les échantillons ont dû être montés de façon à ce qu'une composante du champ magnétique soit dans le plan de cuivre-oxygène, pour aligner les moments magnétiques. Le champ magnétique a donc été appliqué à haute température, pour $T > T_N$, afin de ne créer un seul domaine magnétique lors du refroidissement. La même expérience a été effectuée, mais pour un champ appliqué à basse température, dans le but de comparer l'effet du champ dans le plan sur des multidomaines magnétiques. Cette longue étude a constitué une contribution très importante au projet.

Aussi, pour éviter toutes critiques externes face à notre montage expérimental, nous avons vérifié les effets du bloc de cuivre sur la conductivité thermique transverse. Ces résultats sont présentés dans la section «information supplémentaire» de l'article. Puisque le même échantillon de Nd_2CuO_4 mesuré sur un bloc de cuivre et un bloc de LiF donne la même réponse transverse, nous avons conclu que le bloc de cuivre n'induisait pas de contamination du signal transverse mesuré, confirmant la robustesse de notre expérience.

Tel que mentionné au début de cette thèse, c'est à travers ce projet que j'ai pu apprendre la technique expérimentale de l'effet Hall thermique. À la fin de cette étude, je suis devenue autonome pour la suite de mon doctorat, que ce soit dans la méthode expérimentale ou encore l'analyse des données.








Cet article a été publié en octobre 2020 dans le journal *Nature Communications*.

Titre : Thermal Hall conductivity in the cuprate Mott insulators Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$

Auteurs et autrices : Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Sven Badoux, Andréanne Allaire, Étienne Lefrançois, Anaëlle Legros, Adrien Gourgout, Maxime Dion, C.H. Wang, X. H. Chen, R. Liang, W. N. Hardy, D. A Bonn, Louis Taillefer

Référence : [Nature Communications 11, 5325 \(2020\)](#)

Thermal Hall conductivity in the cuprate Mott insulators Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$

Marie-Eve Boulanger ^{1,6}, Gaël Grissonnanche ^{1,6}, Sven Badoux ¹, Andréanne Allaire¹, Étienne Lefrançois¹, Anaëlle Legros ^{1,2}, Adrien Gourgout¹, Maxime Dion ¹, C. H. Wang³, X. H. Chen ³, R. Liang⁴, W. N. Hardy⁴, D. A. Bonn⁴ & Louis Taillefer ^{1,5}✉

The heat carriers responsible for the unexpectedly large thermal Hall conductivity of the cuprate Mott insulator La_2CuO_4 were recently shown to be phonons. However, the mechanism by which phonons in cuprates acquire chirality in a magnetic field is still unknown. Here, we report a similar thermal Hall conductivity in two cuprate Mott insulators with significantly different crystal structures and magnetic orders – Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ – and show that two potential mechanisms can be excluded – the scattering of phonons by rare-earth impurities and by structural domains. Our comparative study further reveals that orthorhombicity, apical oxygens, the tilting of oxygen octahedra and the canting of spins out of the CuO_2 planes are not essential to the mechanism of chirality. Our findings point to a chiral mechanism coming from a coupling of acoustic phonons to the intrinsic excitations of the CuO_2 planes.

¹Institut Quantique, Département de Physique & RQMP, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, QC J1K 2R1, Canada. ²SPEC, CEA, CNRS-UMR3680, Université Paris-Saclay, Gif-Sur-Yvette, France. ³Hefei National Laboratory for Physical Science at Microscale and Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei, Anhui 230026, People's Republic of China. ⁴Department of Physics & Astronomy, University of British Columbia, Vancouver, BC V6T 1Z1, Canada. ⁵Canadian Institute for Advanced Research, Toronto, ON M5G 1M1, Canada. ⁶These authors contributed equally: Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche. ✉email: louis.taillefer@usherbrooke.ca

In the last decade, the thermal Hall effect has become a useful probe of insulators¹, because it can reveal whether the carriers of heat in a material have chirality. (Here we use the term “chirality” to mean handedness in the presence of a magnetic field.) In insulators, the carriers of heat are not charged, but neutral, and so the electrical Hall effect is zero. The thermal Hall conductivity κ_{xy} is measured by sending a heat current along the x -axis and detecting a transverse temperature gradient along the y -axis, in the presence of a perpendicular magnetic field (along the z -axis). It has been shown that in certain conditions, spins can produce such chirality². For example, magnons give rise to a thermal Hall signal in the antiferromagnet $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ (ref. ³). As a result, a measurement of the thermal Hall effect can in principle provide access to various topological excitations in insulating quantum materials, such as Majorana edge modes in chiral spin liquids⁴. Recently, the thermal Hall conductivity κ_{xy} seen in α - RuCl_3 below $T \simeq 80$ K (refs. ^{5,6}) has been attributed to the excitations of a Kitaev spin liquid⁷. Similarly, the κ_{xy} signal observed in some frustrated magnets—in which there is no magnetic order down to the lowest temperatures—has been attributed to spin-related heat carriers⁸.

However, phonons can also generate a nonzero thermal Hall conductivity if some mechanism confers chirality to them. For instance, an intrinsic mechanism is the Berry curvature of phonon bands acquired from a magnetic environment⁹. In the ferromagnetic insulator $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, the large κ_{xy} signal is attributed to the strong spin–lattice coupling characteristic of multiferroic materials¹⁰. An extrinsic mechanism is the skew scattering of phonons by rare-earth impurities¹¹, as in the rare-earth garnet $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (refs. ^{12,13}). Recently, a large phononic κ_{xy} has been observed in the nonmagnetic insulator SrTiO_3 (ref. ¹⁴). A proposed explanation involves the large ferroelectric susceptibility of this oxide insulator, together with an extrinsic mechanism whereby phonons are scattered by the polar boundaries from the antiferrodistortive structural transition at 105 K (ref. ¹⁵). This interpretation is supported by the fact that κ_{xy} is negligible in the closely related material KTaO_3 (ref. ¹⁴), which remains cubic and free of structural domains.

In cuprates, a large negative κ_{xy} signal was observed at low temperature inside the pseudogap phase¹⁶, i.e., for dopings $p < p^*$, where p^* is the pseudogap critical doping¹⁷. Because it persists down to $p = 0$, in the Mott insulator state, this negative κ_{xy} cannot come from charge carriers, which are not mobile at $p = 0$. Therefore, it must come either from spin-related excitations (possibly topological, as in refs. ^{18,19}) or from phonons (as in ref. ¹⁵). To distinguish between these two types of heat carriers, a simple approach was recently adopted: the thermal Hall conductivity was measured for a heat current along the c -axis, normal to the CuO_2 planes, a direction in which only phonons move easily²⁰. In La_2CuO_4 , at $p = 0$, the thermal Hall signal was found to be just as large as for an in-plane heat current, i.e., $\kappa_{zy}(T) \approx \kappa_{xy}(T)$ (ref. ²¹). This is compelling evidence that phonons are the heat carriers involved in the thermal Hall signal of this insulator. Moreover, it was found that this phonon Hall effect vanishes entirely immediately outside the pseudogap phase, i.e., $\kappa_{zy}(T) = 0$ at $p > p^*$, revealing that phonons only become chiral upon entering the pseudogap phase²¹.

The question is: what makes the phonons in cuprates become chiral? In order to provide answers to this question, we have investigated two other cuprate Mott insulators, Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, and find in both a large negative thermal Hall conductivity similar to that of La_2CuO_4 . While the three materials share the same fundamental characteristic of cuprates, namely they are a stack of single CuO_2 planes, there are significant differences between them (see “Methods” and Fig. 1). Our comparative study allows us to conclude that none of the

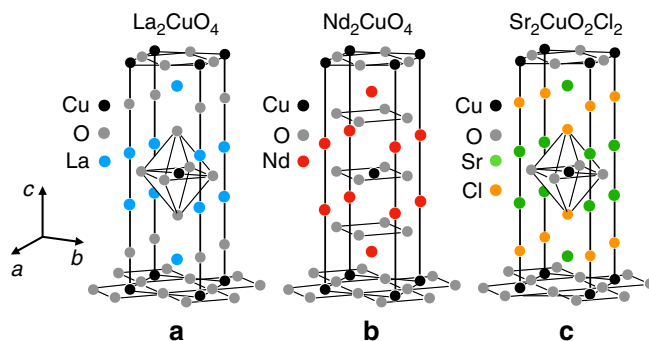


Fig. 1 Crystal structure of La_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 , and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Sketch of the crystal structure of the three single-layer cuprate Mott insulators compared in the present study: **a** La_2CuO_4 , **b** Nd_2CuO_4 , and **c** $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Note that the small orthorhombic distortion in La_2CuO_4 below 530 K is not shown here, nor is the tilt in the oxygen octahedra surrounding the Cu atoms.

distinguishing features—orthorhombicity, structural domain boundaries, apical oxygens, spin canting, noncollinear alignment of spins, and nature of the cation—play a key role in causing the chirality. This points to a chiral mechanism associated with the coupling of phonons to the CuO_2 planes themselves.

Results

Thermal Hall conductivity. In Fig. 2, we show our data for κ_{xx} and κ_{xy} in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample A) and Nd_2CuO_4 . We see that as in La_2CuO_4 , both materials show a large negative thermal Hall signal. We also observe a certain field dependence of κ_{xx} , larger than the small one observed in La_2CuO_4 (ref. ¹⁶). In $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, the field increases κ_{xx} slightly, below $T \approx 20$ K. In Nd_2CuO_4 , the field decreases κ_{xx} below $T \approx 40$ K.

In Fig. 3, we compare the three cuprate Mott insulators. We observe that the curves of $-\kappa_{xy}$ vs. T (right panels) are similar in shape, peaking at $T \approx 25$ K, a temperature close to that where κ_{xx} vs. T peaks (left panels). At low temperature, κ_{xx} is dominated by phonons. Indeed, because there is a gap in the magnon spectrum of these antiferromagnets²², their contribution to κ_{xx} becomes negligible at low T compared to the phonon contribution. At $T = 35$ K, the magnon conductivity is only 2% of the measured κ_{xx} (ref. ²⁰), and it rapidly becomes vanishingly small below that temperature. At $T = 20$ K, the magnitude of κ_{xx} is 8 times larger in Nd_2CuO_4 compared to $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (Fig. 3). So, phonons are a lot more conductive in Nd_2CuO_4 . We see from Fig. 3e, f that κ_{xy} is correspondingly (ten times) larger in Nd_2CuO_4 . This is strong evidence that phonons are the heat carriers responsible for the Hall response.

In Fig. 4, we plot the ratio κ_{xy}/κ_{xx} vs T for the three materials. We see that not only is this ratio of similar magnitude in the three cuprates, but its temperature dependence is also very similar, growing with decreasing T to reach a maximal (negative) value at $T \approx 10$ –15 K, where $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| \approx 0.3$ –0.4% (at $H = 15$ T).

Having observed a large negative thermal Hall conductivity κ_{xy} in both Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ that is very similar to that previously reported for La_2CuO_4 (i.e., of comparable magnitude when measured relative to κ_{xx}) allows us to draw several conclusions about the underlying mechanism for chirality in the cuprate Mott insulators.

Spin canting. It has been shown theoretically that in ferromagnetic or antiferromagnetic insulators, under certain conditions, magnons can have chirality and should give rise to a thermal Hall effect¹. In the collinear Néel antiferromagnetic order of La_2CuO_4 , no thermal Hall effect is expected theoretically, because of the so-

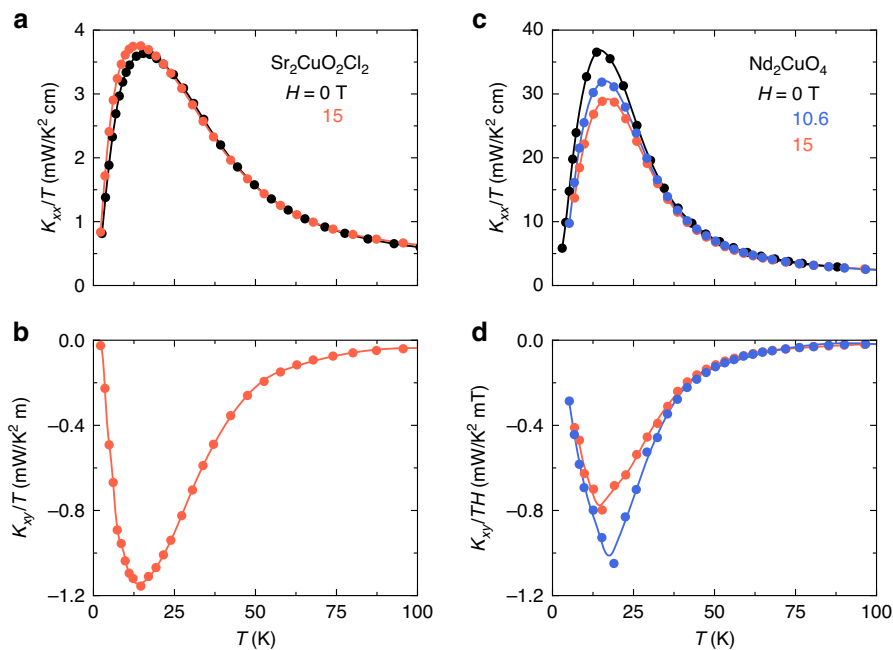


Fig. 2 Thermal transport in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ and Nd_2CuO_4 . **a** Thermal conductivity of $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample A) in zero field ($H = 0$, black) and in a field of 15 T applied parallel to the c -axis (light red), plotted as κ_{xx}/T vs T . The field is seen to increase κ_{xx} slightly at low temperature. **b** Thermal Hall conductivity of $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (same sample) in a field of 15 T applied parallel to the c -axis, plotted as κ_{xy}/T vs T . **c** Thermal conductivity of Nd_2CuO_4 , plotted as κ_{xx}/T vs T , for three values of the magnetic field applied parallel to the c -axis: $H = 0$ T (black), $H = 10.6$ T (blue), and $H = 15$ T (light red). In this case, the field is seen to decrease κ_{xx} at low temperature. **d** Thermal Hall conductivity of Nd_2CuO_4 , plotted as $\kappa_{xy}/(TH)$ vs T , for two values of the magnetic field applied parallel to the c -axis: $H = 10.6$ T (blue); $H = 15$ T (light red). The Hall conductivity κ_{xy} is seen to be sublinear in H at low T and linear in H at high T ($T > 50$ K). All lines are a guide to the eye.

called “no-go” theorem, which states that Néel order on a square lattice has zero chirality¹. However, if the spins of the Néel order cant out of the plane, as they do in La_2CuO_4 , due to some Dzyaloshinskii–Moriya (DM) interaction, then some chirality becomes possible. In this case, one could get a nonzero κ_{xy} signal, but it is expected to be much smaller than the measured κ_{xy} signal in La_2CuO_4 (ref. 23). Our data on Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ completely eliminate this possibility, because a κ_{xy} signal of similar or larger magnitude is found in these materials for which there is no canting of spins out of the plane (see “Methods”), and so no DM interaction. We conclude that magnons are not responsible for the thermal Hall effect in cuprate Mott insulators. This conclusion is consistent with the fact that in La_2CuO_4 a large κ_{xy} signal persists down to temperatures well below the smallest magnon gap, of magnitude 26 K (ref. 22), and up in doping well above the critical doping for the suppression of Néel order, i.e., $p \approx 0.02$ in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (ref. 16).

As for a phonon scenario whereby phonons would acquire chirality through their coupling to spins, spin canting also appears to be unimportant.

Let us now consider two mechanisms known to confer chirality to phonons in other materials—skew scattering off rare-earth impurities and scattering off structural domain boundaries—and show that neither is relevant to cuprates.

Nature of cation. The initial observation of a phonon thermal Hall effect, in the garnet $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (refs. 12,13), has been attributed to the skew scattering of phonons by superstoichiometric Tb^{3+} ions¹¹. This extrinsic mechanism depends crucially on the details of the crystal-field levels of the rare-earth ion. A different rare-earth ion will in general produce skew scattering of a very different strength. The fact that the ratio $\kappa_{xy}/$

κ_{xx} is the same in all three cuprates considered here is compelling evidence that the underlying mechanism does not depend on the nature of the particular cation, whether La, Sr, or Nd.

Note also that strong skew scattering by rare-earth impurities shows up as a major reduction in κ_{xx} (ref. 24). In $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, 2% of Tb^{3+} impurities gives rise to both a finite κ_{xy} signal from phonons (whose magnitude is given in Table 1) and a fivefold reduction in κ_{xx} (ref. 13), whose value at $T = 15$ K is then only $\kappa_{xx} = 1.2$ W/Km (ref. 11). In the pyrochlore oxide $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, a frustrated magnet with a sizable thermal Hall effect⁸ (Table 1), κ_{xx} is massively reduced compared to $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, by a factor 15 at $T = 15$ K ($H = 0$) (ref. 25), pointing again to strong scattering of phonons by Tb^{3+} ions. (Note that the thermal Hall effect in $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ has recently been attributed to phonons²⁶.) By comparison, the thermal conductivity in the cuprate Mott insulators is an order of magnitude larger (Table 1), evidence that no strong skew scattering is at play: $\kappa_{xx} = 10$ W/Km in La_2CuO_4 , 45 W/Km in Nd_2CuO_4 , and 6 W/Km in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, at $T = 15$ K ($H = 15$ T, Fig. 3). We conclude that skew scattering of phonons by superstoichiometric cation atoms is not the mechanism that confers chirality to phonons in cuprates.

Structural domains. In the nonmagnetic insulator SrTiO_3 , a negative thermal Hall conductivity was recently observed¹⁴, with a magnitude comparable to that of the three cuprate Mott insulators (Table 1). There is little doubt that the thermal Hall effect in SrTiO_3 is due to phonons. Importantly, the κ_{xy} signal in the closely related oxide KTaO_3 is 30 times smaller (and of opposite sign)¹⁴ (Table 1). The key difference between the two materials is that SrTiO_3 undergoes an antiferrodistortive structural transition at 105 K, whereas KTaO_3 remains cubic down to $T \approx 0$ K. The authors of the study on those two materials conclude that the

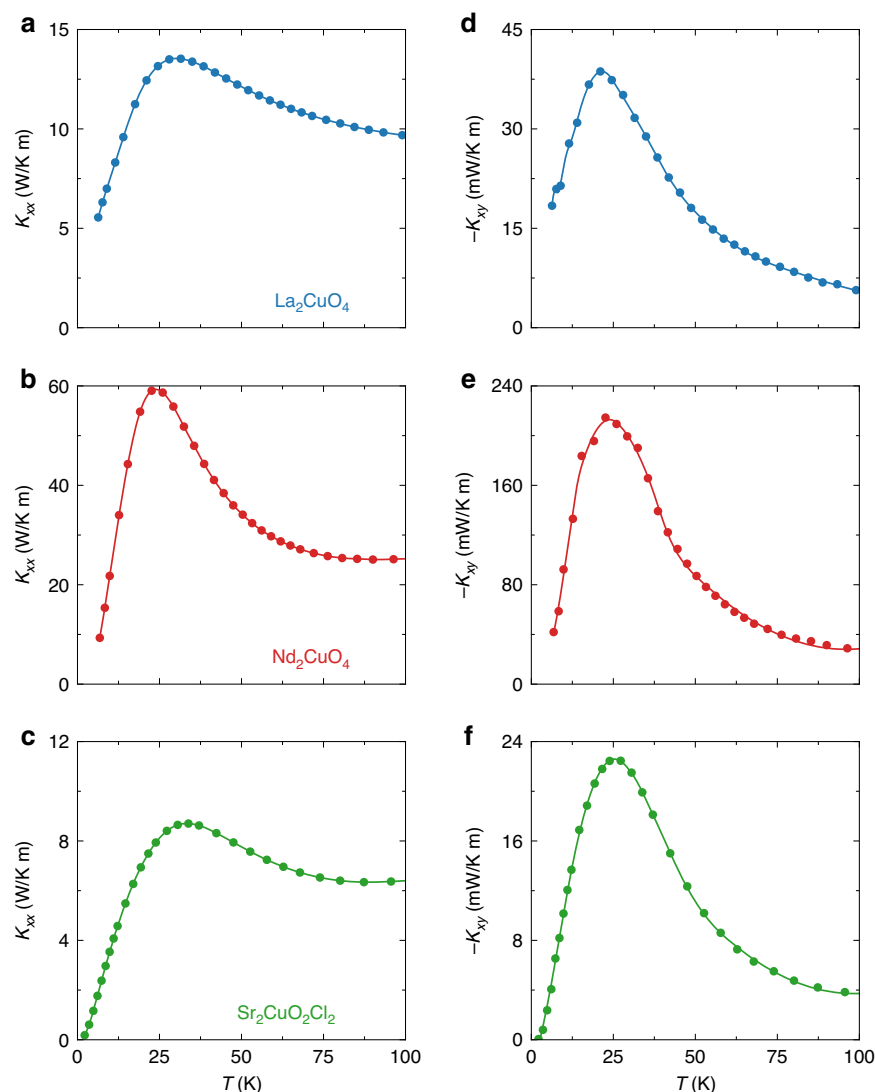


Fig. 3 Thermal Hall conductivity in the three Mott insulators. Left panels: thermal conductivity of the three cuprate Mott insulators, plotted as κ_{xx} vs T : **a** La_2CuO_4 , **b** Nd_2CuO_4 , and **c** $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Right panels: Corresponding thermal Hall conductivity, plotted as $-\kappa_{xy}$ vs T : **d** La_2CuO_4 , **e** Nd_2CuO_4 , and **f** $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. All data shown in this figure are taken in a field of 15 T (along the c -axis).

large signal in SrTiO_3 is linked to the structural domain boundaries that exist below 105 K (ref. ¹⁴), although the precise mechanism whereby these confer chirality to phonons is still unclear. Our comparative study of the three cuprates allows us to rule out a similar role for structural domains. Indeed, whereas La_2CuO_4 undergoes a structural transition to an orthorhombic phase below 530 K, both Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ remain tetragonal down to $T \approx 0$ K, and yet all three have a similar thermal Hall effect, in both T dependence (Fig. 3) and magnitude—relative to κ_{xx} (Fig. 4 and Table 1).

Magnetostructural domains. Because the collinear spin order in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ breaks the fourfold symmetry of the lattice, there will be antiferromagnetic domains below T_N and these will in principle be accompanied by an orthorhombic distortion of the tetragonal lattice aligned with the moment direction in each domain. To investigate the possible effect of these putative structural distortions, we have measured κ_{xy} in the same sample of $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample B) under three different conditions: (1) for a field $H = 10.6$ T applied along the c -axis, (2) for a field $H = 15$ T applied at an angle of 45° from the c -axis (whose

components normal and parallel to the CuO_2 planes are both 10.6 T), applied at $T = 2$ K (zero-field cooling), and (3) same as for (2), but applied at $T = 300$ K $> T_N$ (in-field cooling). In the latter in-field cooling condition, the in-plane component of the field (of magnitude 10.6 T) applied at $T > T_N$ will ensure that a single antiferromagnetic domain is present below T_N . (We expect the in-plane field needed to create a monodomain to be approximately 5 T, as verified in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ (ref. ²⁷.) Comparing conditions (2) and (3) amounts to comparing a multidomain sample vs a monodomain sample.

The results of this comparative study are displayed in Fig. 5. We see that κ_{xy} is identical in the three situations, within error bars. So, magnetic domains in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, and any associated structural distortions, do not influence the thermal Hall response. Note that the noncollinear order in Nd_2CuO_4 does not break the fourfold symmetry of the lattice, so here no magnetic domains are expected.

We conclude that structural (or magnetostructural) domains are not the mechanism that confers chirality to phonons in cuprates. Moreover, the thermal Hall conductivity of cuprates is independent of whether the system has orthorhombic or

tetragonal symmetry, or whether there are apical oxygens in the structure or not.

In summary, our results show that the cuprate Mott insulators Nd_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ exhibit a large negative thermal Hall conductivity κ_{xy} very similar to that found in La_2CuO_4 . The fact that the magnitude of κ_{xy} scales with the magnitude of the phonon-dominated κ_{xx} as the latter varies by a factor 10 between $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ and Nd_2CuO_4 is further evidence in favor of phonons as the carriers of heat responsible for the thermal Hall effect in these materials. Given the different crystal structures and cations involved in those three materials, the similarity in κ_{xy}/κ_{xx} allows us to rule out two extrinsic mechanisms of phonon

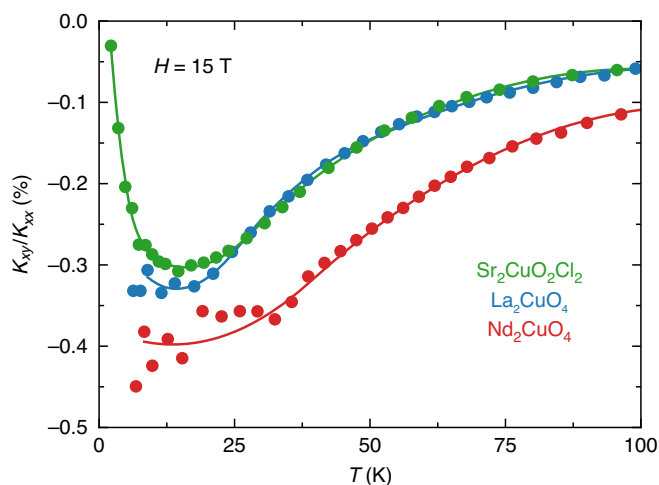


Fig. 4 Ratio of κ_{xy} over κ_{xx} . Ratio of κ_{xy} over κ_{xx} in the three cuprate Mott insulators (expressed in %), measured in a field of 15 T applied parallel to the c -axis: $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (green), La_2CuO_4 (blue), and Nd_2CuO_4 (red). All lines are a guide to the eye. We see that despite a factor 10 in the magnitude of κ_{xy} between $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ and Nd_2CuO_4 (Fig. 2), the ratio κ_{xy}/κ_{xx} is very similar in magnitude for all three cuprates.

chirality proposed for other oxides, namely the scattering off rare-earth impurities—invoked for $\text{Tb}_3\text{Gd}_5\text{O}_{12}$ —and the scattering off structural domain boundaries—invoked for SrTiO_3 . This suggests that phonon chirality in the cuprates comes from an intrinsic coupling of phonons to their environment.

Discussion

Phonons can acquire chirality through a coupling to their intrinsic environment (see, e.g., ref. 9). This could involve a coupling to charge or a coupling to spin, for example. In ref. 15, a flexoelectric coupling of phonons to their charge environment was shown to generate a Hall response. However, even in the nearly ferroelectric insulator SrTiO_3 , where the electric polarizability is exceptionally large, this intrinsic mechanism is estimated to be much too small. The inclusion of some additional, extrinsic, scattering mechanism—possibly structural domain boundaries—is deemed necessary. Applied to cuprates, the intrinsic flexoelectric coupling is certainly much too small. It is not clear what extrinsic mechanism could be added to make this mechanism strong enough to account for the observed data in the cuprate Mott insulators.

In multiferroic materials like $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, a large κ_{xy} signal is observed even in the paramagnetic phase¹⁰, where $\kappa_{xy}/\kappa_{xx} \approx 0.5\%$ (at $T = 65$ K and $H = 14$ T) (Table 1). This is attributed to a strong spin–lattice coupling. In cuprates, a coupling of phonons to spins in their environment should be investigated as a possible source of chirality.

Another avenue of investigation for cuprates is the possibility that they harbour exotic chiral excitations, like spinons^{18,19} that could couple to phonons. Such a coupling has recently been considered for the case of Majorana fermions in a Kitaev spin liquid²⁸.

In a scenario of phonons coupled to their environment, there could be two relevant regimes of temperature, namely above and below the peak in κ_{xy} vs. T , so roughly above 25 K and below 15 K, respectively (Fig. 3). At temperatures above the peak, it has been shown that if the heat carriers have Berry curvature, they

Table 1 Thermal Hall conductivity in various oxide insulators.

Material	Doping	κ_{xy} (mW/Km)	κ_{xx} (W/Km)	$ \kappa_{xy}/\kappa_{xx} $ (%)	T (K)	H (T)	Reference
Nd_2CuO_4	0.00	−212.5	58.3	0.37	22	15	This work
$\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$	0.00	−22.3	8.2	0.26	25	15	This work
La_2CuO_4	0.00	−38.6	12.4	0.30	20	12	16
La_2CuO_4 ($J // c$)	0.00	−30.0	16	0.2	20	15	21
LSCO	0.06	−30.0	5.1	0.58	15	15	16
Eu-LSCO	0.08	−13.2	4.5	0.29	15	15	16
Nd-LSCO ($J // c$)	0.21	−14.0	2.9	0.48	20	15	21
Nd-LSCO ($J // c$)	0.24	0	1.2	0	20	15	21
Eu-LSCO ($J // c$)	0.24	0	1.2	0	20	15	21
$\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$		+1.0	−	0.14	50	0.1	3
$\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$		+0.02 ^a	0.2	0.01	5	3	13
$\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$		+1.2	0.27	0.44	15	12	8
$\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$		0	18	0	15	8	8,25
$(\text{Tb}_{0.3}\text{Y}_{0.7})_2\text{Ti}_2\text{O}_7$		+3.8	1.0	0.38	15	12	26
SrTiO_3		−80	36	0.20	20	12	14
KTaO_3		+2	30	0.007	30	12	14
$\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$		+12	2.5	0.48	65	14	10

^aExpected to be 10 times larger at $T = 20$ K and $H = 15$ T. The magnitude and sign of κ_{xy} are given for a temperature T and magnetic field H as indicated. The quoted values are typically the largest absolute values for a field of 15 T or so. The value of κ_{xx} at the same T and H is also given, as is the corresponding ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$. The first group of materials is cuprates, including the three undoped Mott insulators studied here (top) and some hole-doped cuprates, whose doping p is indicated in the second column. At high doping ($p > 0.2$), the samples are not insulating but metallic, and so we quote here the thermal transport coefficients for a heat current normal to the CuO_2 planes ($J // c$), which contain only the phonon contribution to heat transport. The second group consists of one material, the ferromagnet $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$, whose κ_{xy} signal is due to magnons. The third group consists of insulating materials with no magnetic order. It includes four pyrochlore oxides with Tb and/or Y ions, whose magnetism is either frustrated (Tb) or absent (Y), and two nonmagnetic oxides (SrTiO_3 and KTaO_3). The last group consists of the multiferroic material $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, which has ferrimagnetic order below 45 K. Here we quote values above that temperature, in the paramagnetic state at 65 K.

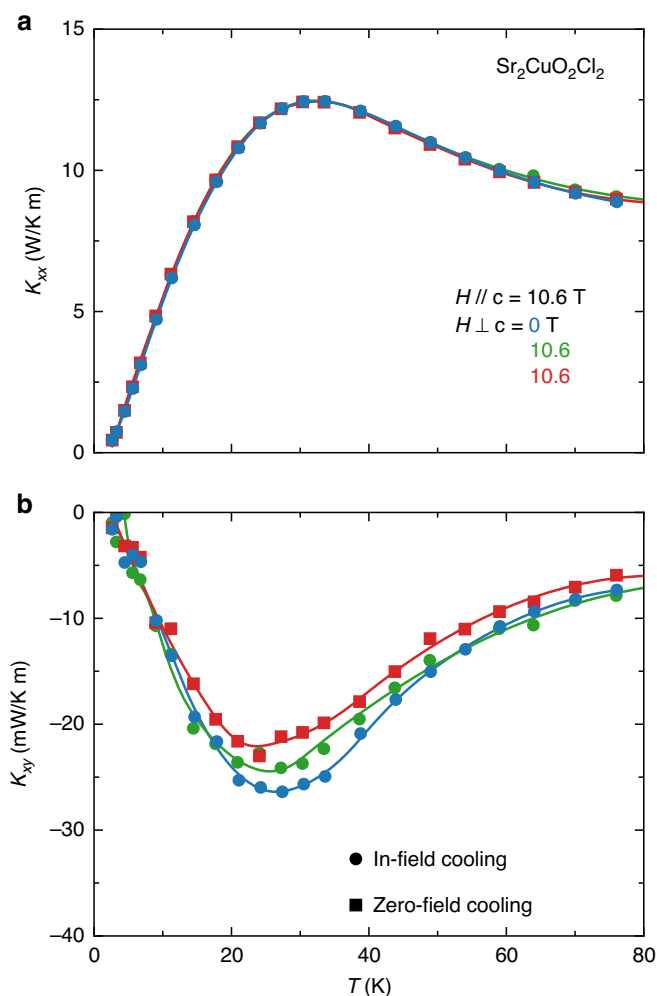


Fig. 5 Effect of magnetostructural domains in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Thermal transport in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample B) for a heat current $J//a$, measured as a function of increasing temperature from $T = 2$ K up to 80 K, in three different conditions: (1) for a field $H = 10.6$ T along the c -axis, applied at $T = 300$ K (blue circles), (2) for a field $H = 15$ T at 45° from the c -axis (meaning equal in-plane and out-of-plane fields, i.e., $H \perp c = H // c = 10.6$ T), applied at $T = 2$ K (zero-field cooling, red squares), and (3) for a field $H = 15$ T at 45° from the c -axis, applied at $T = 300$ K (in-field cooling, green circles). All lines are a guide to the eye. In conditions (1) and (2), we expect that multiple orthorhombic magnetostructural domains and associated boundaries exist below $T_N = 270$ K. Condition (3)—in-field cooling in the presence of an in-plane field of 10.6 T—ensures that a single antiferromagnetic domain exists when magnetic order sets in below T_N , and so there should be no, or very few, structural domain boundaries in that case. **a** Thermal conductivity κ_{xx} vs T . There is no detectable difference between the three curves, showing that the presence of magnetostructural domains has a negligible impact on the phonon thermal conductivity. **b** Thermal Hall conductivity κ_{xy} vs. T . Within error bars, there is no significant difference between the three curves, demonstrating that magnetostructural domains do not play a significant role in generating the thermal Hall signal in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$.

would be expected to exhibit a characteristic exponential dependence, namely $\kappa_{xy}/T \propto \exp(-T/T_0)$ (ref. 29). In Fig. 6, we fit our data on $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ and Nd_2CuO_4 to that form and find a good fit over the intermediate temperature range from 30 to 100 K. An equally good fit is found for La_2CuO_4 (ref. 21). Whether this implies that phonons acquire a Berry curvature through their coupling to the environment remains to be determined. At low

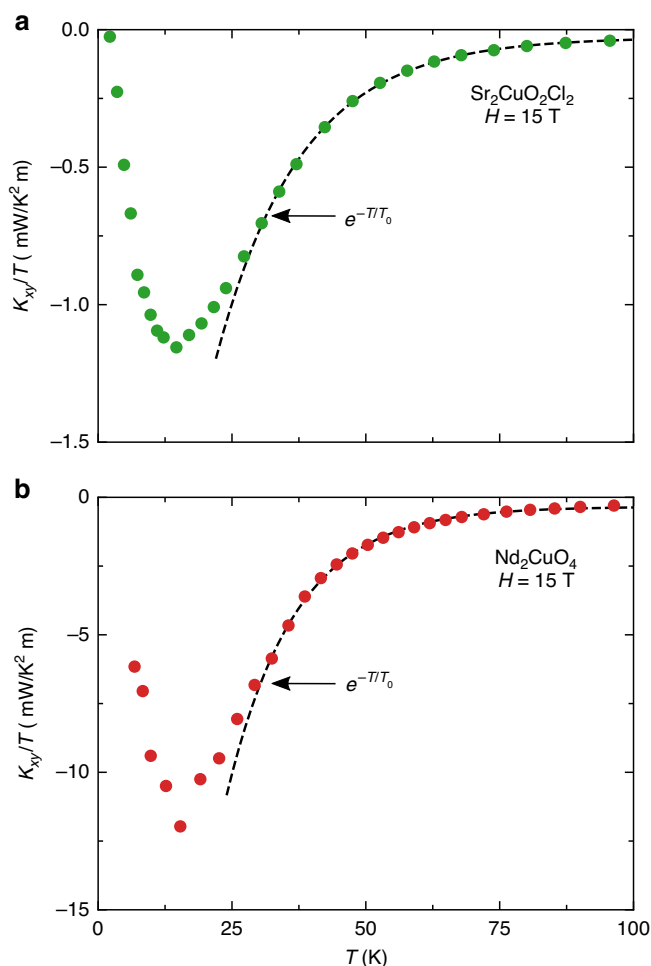


Fig. 6 Phenomenological fit to the phonon thermal Hall conductivity.

Thermal Hall conductivity, plotted as κ_{xy}/T vs T in **a** $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample A) and **b** Nd_2CuO_4 . The data are fit to the phenomenological expression $\kappa_{xy}/T = A \exp(-T/T_0) + C$ from ref. 29. The fit interval is 30–100 K. The resulting fit parameters are **a** $A = -5$ mW/K²m, $C = -0.03$ mW/K²m, $T_0 = 16$ K; **b** $A = -67$ mW/K²m, $C = -0.3$ mW/K²m, $T_0 = 12$ K.

temperature, we would expect phonons to eventually decouple from their environment, whether that be spins or other excitations of electronic origin. The temperature below which they do so would shed light on the nature of that coupling. In Fig. 4, we see that upon cooling below 10 K, $|\kappa_{xy}|$ in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ falls more rapidly to zero than κ_{xx} does. (Our current data on Nd_2CuO_4 and La_2CuO_4 do not allow us to explore their regime below 10 K.) In Fig. 7, we zoom on the low- T regime in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. We see that whereas κ_{xx}/T^3 rises monotonically as $T \rightarrow 0$, κ_{xy}/T^3 drops rapidly toward zero, starting roughly at 5 K. We identify 5 K as the approximate decoupling temperature between acoustic phonons and their chiral environment.

It is instructive to compare our data on undoped cuprates to prior data on hole-doped cuprates. At a doping $p = 0.24$, in both Nd-LSCO and Eu-LSCO, the thermal Hall signal coming from phonons—as opposed to charged carriers—is zero²¹ (Table 1). It only becomes nonzero when the doping is reduced below the critical doping for the pseudogap phase, i.e., when $p < p^*$ ($p^* = 0.23$). The magnitude of κ_{xy} is relatively constant from p^* down to $p = 0$ when measured relative to κ_{xx} (see Table 1), and the sign is negative throughout. This continuity suggests that the same chiral mechanism is at play in the Mott insulator and within the pseudogap phase.

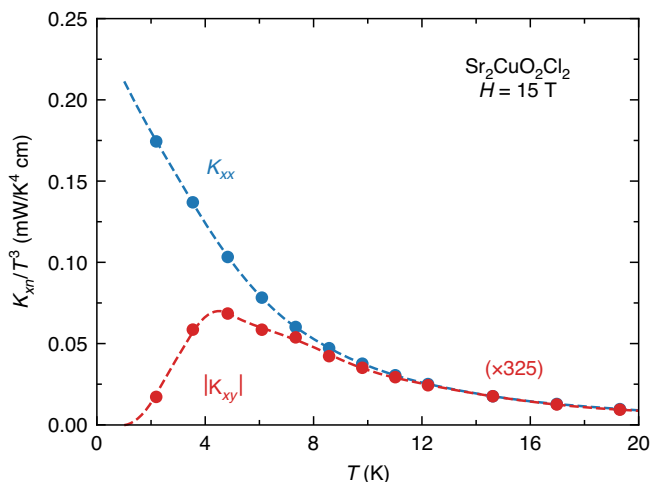


Fig. 7 Low-temperature regime in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Thermal conductivity κ_{xx} and thermal Hall conductivity κ_{xy} of $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (sample A), plotted as κ_{xx}/T^3 (blue) and $-\kappa_{xy}/T^3$ (red) vs T . The dashed lines are a guide to the eye. Note that the κ_{xy} data are multiplied by a factor 325, to compare them more easily with κ_{xx} , using only one y-axis scale.

Moreover, because the phononic κ_{xy} signal in Nd-LSCO goes from zero at $p = 0.24$ to its full value at $p = 0.21$, rising abruptly upon crossing below p^* , this chiral mechanism must be an intrinsic property of the pseudogap phase—since there is no change in the crystal structure^{21,30} and little change in the amount of impurity scattering between $p = 0.24$ and $p = 0.21$. This is consistent with our finding that structural domains and cation impurities are unimportant, and it extends the argument to all other defects and impurities, e.g., oxygen vacancies, all of which are essentially unchanged between $p = 0.24$ and $p = 0.21$. (In a scenario of oxygen vacancies screened by mobile charge carriers, we would expect zero screening at $p = 0$, in the insulator, so we should see a much larger κ_{zy} signal in La_2CuO_4 than in Nd-LSCO at $p = 0.21$, for example. This is not the case, on the contrary. As seen from Table 1, the κ_{zy} signal is larger at $p = 0.21$, relative to κ_{zz} : $|\kappa_{zy}/\kappa_{zz}| = 0.48\%$ in Nd-LSCO $p = 0.21$ vs. 0.2% in La_2CuO_4 .)

One intrinsic mechanism has recently been proposed whereby phonons couple to an electronic state that breaks time-reversal and inversion symmetries, which would be realized in the pseudogap phase of cuprates³¹.

Another possible mechanism is the coupling of phonons to short-range antiferromagnetic correlations. Experimental evidence for such correlations includes the Fermi-surface transformation across p^* observed by angle-dependent magnetoresistance³² and the drop in carrier density across p^* observed in the electrical Hall effect^{33–35}, both consistent with spin modulations with a wavevector $Q = (\pi, \pi)$. Solutions of the Hubbard model in the paramagnetic state find that, in doped Mott insulators such as the cuprates, local moments^{36,37} persist all the way from half-filling up to a critical doping where the pseudogap disappears^{38–40}. In calculations within the pseudogap phase, superexchange between local moments naturally favors short-range antiferromagnetic^{41–43} or singlet correlations^{36,37}. In such a scenario, the question becomes: how can the coupling of phonons to spins make these phonons chiral (in the presence of a magnetic field)?

Methods

Crystal structures. La_2CuO_4 : La_2CuO_4 is the parent compound of the most widely studied family of single-layer cuprates, $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. In La_2CuO_4 , there is an (apical) oxygen atom above the Cu atom, thereby forming an octahedron of O atoms around Cu (Fig. 1). Upon cooling from high temperature, La_2CuO_4 goes from a tetragonal ($I4/mmm$) structure to an orthorhombic ($Cmca$) structure at 530 K (ref. 44), wherein the octahedra are tilted (the orthorhombic distortion and

associated tilt are not shown in Fig. 1). This means that unless they are deliberately detwinned by application of uniaxial stress, crystals of La_2CuO_4 will be full of orthorhombic structural domains (twins) whose boundaries can in principle scatter phonons. (The samples of La_2CuO_4 studied in refs. 16,21 were twinned.) Below $T_N = 270$ K, the Cu spins order into a collinear antiferromagnetic arrangement, whereby all alternating moments point along the same direction ($[110]$) within every CuO_2 plane inside a given orthorhombic domain. The tilting of the oxygen octahedra causes a slight canting of the spins out of the CuO_2 plane (by 0.17°) (ref. 45), thereby producing a Dzyaloshinskii–Moriya (DM) interaction that could, in principle, be a source of chirality.

Nd_2CuO_4 : Nd_2CuO_4 is the parent compound of the electron-doped family of cuprates $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. Unlike La_2CuO_4 , it does not undergo any structural transition and remains tetragonal down to $T = 0$. A significant difference from La_2CuO_4 is the absence of apical oxygens, so that Cu atoms in Nd_2CuO_4 are not surrounded by oxygen octahedra (Fig. 1). So, in Nd_2CuO_4 , there are no structural domain boundaries and no spin canting.

Magnetically, Nd_2CuO_4 differs from La_2CuO_4 in two ways: there is a large moment on the Nd^{3+} ions and the Cu spins adopt a noncollinear antiferromagnetic order⁴⁶. Below $T_N = 255$ K, the spins of the Cu^{2+} ions order antiferromagnetically along the Cu–O bond ($[100]$). This breaks the fourfold symmetry within a single CuO_2 plane. However, in the next CuO_2 plane along the c -axis, the same spin configuration is rotated by 90° , thereby restoring the fourfold symmetry of the entire system. This noncollinear magnetic structure therefore preserves the tetragonal symmetry of the crystal.

$\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$: $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ has the same crystal structure as tetragonal La_2CuO_4 ($T > 530$ K), with La replaced by Sr and the apical O replaced by Cl (Fig. 1). Unlike La_2CuO_4 , it remains tetragonal down to low temperature and its octahedra show no sign of tilting^{47–49}. So here, again, there are no structural domain boundaries and no spin canting. $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ develops collinear antiferromagnetic order below $T_N = 250$ K, with a magnetic structure similar to that of La_2CuO_4 (moments along $[110]$), except with no spin canting out of the plane⁴⁸. It remains in the same magnetic phase down to at least $T = 10$ K (ref. 48).

Samples. Our single crystal of Nd_2CuO_4 was grown at the University of Science and Technology of China by a standard flux method, annealed in helium for 10 h at 900°C , and cut in the shape of rectangular platelets with dimensions $0.50 \times 0.69 \times 0.066$ mm³ (length between contacts \times width \times thickness in the c direction). Contacts were made with silver epoxy, diffused at 500°C for 1 h. The thermal conductivity κ_{xx} of similar samples was studied in detail at low temperature ($T < 20$ K) (refs. 50,51). Single crystals of $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ were grown at the University of British Columbia using a flux-growth method. Here, we report data on two samples (labeled A and B), cut in the shape of rectangular platelets with dimensions $0.6 \times 0.11 \times 0.03$ mm³. Contacts were made using silver paint. In all cases, the heat current was made to flow along the a -axis of the tetragonal structure.

Measurements. The thermal conductivity κ_{xx} was measured applying a heat current I_x within the CuO_2 plane, generating a longitudinal temperature difference $\Delta T_x = T^+ - T^-$. The thermal conductivity along the x -axis is given by $\kappa_{xx} = (I_x/\Delta T_x)(L/wt)$, where L is the distance between T^+ and T^- , w is the width of the sample, and t its thickness. By applying a magnetic field along the c -axis of the crystal, normal to the CuO_2 planes, a transverse temperature gradient, ΔT_y , was generated (see inset of Supplementary Fig. 1). The thermal Hall conductivity is defined as

$$\kappa_{xy} = -\kappa_{yy}(\Delta T_x/\Delta T_y)(L/w)$$

where κ_{yy} is the longitudinal thermal conductivity along the y -axis. Due to the tetragonal structure of our samples, we can take $\kappa_{xx} = \kappa_{yy}$.

The measurements were made with a steady-state method as a function of temperature, using differential type-E thermocouples for ΔT_x and ΔT_y (see inset of Supplementary Fig. 1). This method consists in keeping the sample in a fixed magnetic field H and changing its temperature in discrete steps, typically of 2–3 K. At each fixed temperature, the background value of the thermocouple that measures ΔT_y is recorded before sending heat J to the sample. Once the sample is entirely in equilibrium, we measure $\Delta T_y(H)$. Here, the voltage (heat-off) background in the thermocouple is carefully subtracted from the heat-on signal of the thermocouple to give the correct $\Delta T_y(H)$. Once the entire temperature range is covered, say from 10 to 100 K, the field direction is reversed to $-H$. The same procedure is now applied for these negative values of the field. We then define $\Delta T_y(H) = [\Delta T_y(T, H) - \Delta T_y(T, -H)]/2$, thereby removing any symmetric contamination of the signal coming from the longitudinal thermal gradient and the possible misalignment of transverse contacts.

The heat current along the x -axis is generated by a heater stuck at one end of the sample. The other end is glued to a block that serves as a heat sink (see inset of Supplementary Fig. 1). For the data reported here (and in refs. 16,21), this block was made of copper. To confirm that the Hall response of copper in a field does not contaminate the Hall response coming from the sample, we performed the same measurement twice, once with the copper block (using metallic contacts made with Ag paint) and then with a block made of the insulator LiF (using insulating contacts made with GE varnish), using the same sample of Nd_2CuO_4 in both cases. The results are shown in Supplementary Fig. 1; we see that the same κ_{xy} curve is

obtained with the two setups. We conclude that using copper for the heat sink does not lead to any detectable contamination of the thermal Hall signal.

Data availability

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request. Source data are provided with this paper.

Received: 9 July 2020; Accepted: 17 September 2020;

Published online: 21 October 2020

References

- Katsura, H., Nagaosa, N. & Lee, P. A. Theory of the thermal Hall effect in quantum magnets. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 066403 (2010).
- Lee, H., Han, J. H. & Lee, P. A. Thermal Hall effect of spins in a paramagnet. *Phys. Rev. B* **91**, 125413 (2015).
- Onose, Y. et al. Observation of the magnon Hall effect. *Science* **329**, 297–299 (2010).
- Nasu, J., Yoshitake, J. & Motome, Y. Thermal transport in the Kitaev model. *Phys. Rev. Lett.* **119**, 127204 (2017).
- Kasahara, Y. et al. Unusual thermal Hall effect in a Kitaev spin liquid candidate α -RuCl₃. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 217205 (2018).
- Hentrich, R. et al. Large thermal Hall effect in α -RuCl₃: evidence for heat transport by Kitaev-Heisenberg paramagnons. *Phys. Rev. B* **99**, 085136 (2019).
- Kasahara, Y. et al. Majorana quantization and half-integer thermal quantum Hall effect in a Kitaev spin liquid. *Nature* **559**, 227–231 (2018).
- Hirschberger, M., Krizan, J. W., Cava, R. J. & Ong, N. P. Large thermal Hall conductivity of neutral spin excitations in a frustrated quantum magnet. *Science* **348**, 106–109 (2015).
- Qin, T., Zhou, J. & Shi, J. Berry curvature and the phonon Hall effect. *Phys. Rev. B* **86**, 104305 (2012).
- Ideue, T., Kurumaji, T., Ishiwata, S. & Tokura, Y. Giant thermal Hall effect in multiferroics. *Nat. Mater.* **16**, 797–802 (2017).
- Mori, M., Spencer-Smith, A., Sushkov, O. P. & Maekawa, S. Origin of the phonon Hall effect in rare-earth garnets. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265901 (2014).
- Stroh, C., Rikken, G. L. J. A. & Wyder, P. Phenomenological evidence for the phonon Hall effect. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 155901 (2005).
- Inyushkin, A. V. & Taldenkov, A. N. On the phonon Hall effect in a paramagnetic dielectric. *JETP Lett* **86**, 379–382 (2007).
- Li, X., Fauqué, B., Zhu, Z. & Behnia, K. Phonon thermal Hall effect in strontium titanate. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 105901 (2020).
- Chen, J.-Y., Kivelson, S. A. & Sun, X.-Q. Enhanced thermal Hall effect in nearly ferroelectric insulators. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 167601 (2020).
- Grissonnanche, G. et al. Giant thermal Hall conductivity in the pseudogap phase of cuprate superconductors. *Nature* **571**, 376–380 (2019).
- Proust, C. & Taillefer, L. The remarkable underlying ground states of cuprate superconductors. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **10**, 409–429 (2019).
- Samajdar, R. et al. Enhanced thermal Hall effect in the square-lattice Néel state. *Nat. Phys.* **15**, 1290–1294 (2019).
- Han, J. H., Park, J.-H. & Lee, P. A. Consideration of thermal Hall effect in undoped cuprates. *Phys. Rev. B* **99**, 205157 (2019).
- Hess, C. et al. Magnon heat transport in doped La₂CuO₄. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 197002 (2003).
- Grissonnanche, G. et al. Chiral phonons in the pseudogap phase of cuprates. *Nat. Phys.* <https://doi.org/10.1038/s41567-020-0965-y> (2020).
- Keimer, B. et al. Soft phonon behavior and magnetism at the low temperature structural phase transition of La_{1.65}Nd_{0.35}CuO₄. *Z. Phys. B* **91**, 373 (1993).
- Samajdar, R., Chatterjee, S., Sachdev, S. & Scheurer, M. S. Thermal Hall effect in square-lattice spin liquids: a Schwinger boson mean-field study. *Phys. Rev. B* **99**, 165126 (2019).
- Slack, G. A. & Oliver, D. W. Thermal conductivity of garnets and phonon scattering by rare-earth ions. *Phys. Rev. B* **4**, 592 (1971).
- Li, Q. J. et al. Phonon-glass-like behavior of magnetic origin in single crystal Tb₂Ti₂O₇. *Phys. Rev. B* **87**, 214408 (2013).
- Hirokane, Y., Nii, Y., Tomioka, Y. & Onose, Y. Phononic thermal Hall effect in diluted terbium oxides. *Phys. Rev. B* **99**, 134419 (2019).
- Náfrádi, B. et al. Magnetostriction and magnetostructural domains in antiferromagnetic YBa₂Cu₃O₆. *Phys. Rev. Lett.* **116**, 047001 (2016).
- Ye, M., Fernandes, R. M. & Perkins, N. B. Phonon dynamics in the Kitaev spin liquid. *Phys. Rev. Res.* **2**, 033180 (2020).
- Yang, Y.-F., Zhang, G.-M. & Zhang, F.-C. Universal behavior of the thermal Hall conductivity. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 186602 (2020).
- Dragomir, M. et al. Materials preparation, single crystal growth, and the phase diagram of the high temperature cuprate superconductor La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO₄. Preprint at <https://arxiv.org/abs/2008.07573> (2020).
- Varma, C. M. Thermal Hall effect in the pseudogap phase of cuprates. *Phys. Rev. B* **102**, 075113 (2020).
- Fang, Y. et al. Fermi surface transformation at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. Preprint at <https://arxiv.org/abs/2004.01725> (2020).
- Collignon, C. et al. Fermi-surface transformation across the pseudogap critical point of the cuprate superconductor La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO₄. *Phys. Rev. B* **95**, 224517 (2017).
- Doiron-Leyraud, N. et al. Pseudogap phase of cuprate superconductors confined by Fermi surface topology. *Nat. Commun.* **8**, 2044 (2017).
- Badoux, S. et al. Change of carrier density at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. *Nature* **531**, 210–214 (2016).
- Ferrero, M. et al. Valence bond dynamical mean-field theory of doped Mott insulators with nodal/anti nodal differentiation. *Europhys. Lett.* **85**, 57009 (2009).
- Sordi, G., Haule, K. & Tremblay, A.-M. S. Mott physics and first-order transition between two metals in the normal-state phase diagram of the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. B* **84**, 075161 (2011).
- Sordi, G., Haule, K. & Tremblay, A.-M. S. Finite doping signatures of the Mott transition in the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 226402 (2010).
- Wu, W. et al. Pseudogap and Fermi-surface topology in the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. X* **8**, 021048 (2018).
- Reymbaut, A. et al. Pseudogap, van Hove singularity, maximum in entropy, and specific heat for hole-doped Mott insulators. *Phys. Rev. Res.* **1**, 023015 (2019).
- Sénéchal, D. & Tremblay, A.-M. S. Hot spots and pseudogaps for hole- and electron-doped high-temperature superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126401 (2004).
- Kyung, B., Sénéchal, D. & Tremblay, A.-M. S. Pairing dynamics in strongly correlated superconductivity. *Phys. Rev. B* **80**, 205109 (2009).
- Scalapino, D. J. A common thread: the pairing interaction for unconventional superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1383 (2012).
- Birgeneau, R. J. et al. Soft-phonon behavior and transport in single-crystal La₂CuO₄. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1329–1332 (1987).
- Thio, T. et al. Antisymmetric exchange and its influence on the magnetic structure and conductivity of La₂CuO₄. *Phys. Rev. B* **38**, 905–908 (1988).
- Sachidanandam, R., Yildirim, T., Harris, A. B., Aharony, A. & Entin-Wohlman, O. Single-ion anisotropy, crystal-field effects, spin reorientation transitions, and spin waves in R₂CuO₄ (R=Nd, Pr, and Sm). *Phys. Rev. B* **56**, 260–286 (1997).
- Miller, L. L. et al. Synthesis, structure, and properties of Sr₂CuO₂Cl₂. *Phys. Rev. B* **41**, 1921 (1990).
- Vaknin, D., Sinha, S. K., Stassis, C., Miller, L. L. & Johnston, D. C. Antiferromagnetism in Sr₂CuO₂Cl₂. *Phys. Rev. B* **41**, 1926 (1990).
- Farzaneh, M., Liu, X.-F., El-Batanouny, M. & Chou, F. C. Structure and lattice dynamics of Sr₂CuO₂Cl₂ (001) studied by helium-atom scattering. *Phys. Rev. B* **72**, 085409 (2005).
- Li, S. Y., Taillefer, L., Wang, C. H. & Chen, X. H. Ballistic magnon transport and phonon scattering in the antiferromagnet Nd₂CuO₄. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 156603 (2005).
- Li, S. Y. et al. Low-temperature phonon thermal conductivity of single-crystalline Nd₂CuO₄: effects of sample size and surface roughness. *Phys. Rev. B* **77**, 134501 (2008).

Acknowledgements

We thank L. Balents, K. Behnia, R.M. Fernandes, B. Flebus, I. Garate, J.H. Han, C. Hess, S.A. Kivelson, P.A. Lee, A.H. MacDonald, J.E. Moore, B.J. Ramshaw, L. Savary, O. Sushkov, A.-M.S. Tremblay, R. Valenti, and C.M. Varma for the fruitful discussions. We thank S. Fortier for his assistance with the experiments. L.T. acknowledges support from the Canadian Institute for Advanced Research (CIFAR) as a CIFAR Fellow and funding from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC, PIN: 123817), the Fonds de recherche du Québec—Nature et Technologies (FRQNT), the Canada Foundation for Innovation (CFI), and a Canada Research Chair. This research was undertaken, thanks in part to funding from the Canada Research Excellence Fund. Part of this work was funded by the Gordon and Betty Moore Foundation's EPiQS Initiative (Grant GBMF5306 to L.T.). This work was also supported by the National Natural Science Foundation of China (11888101 and 11534010).

Author contributions

M.-E.B., G.G., S.B., A.A., E.L., A.L., and A.G. performed the thermal Hall measurements. M.-E.B., G.G., S.B., A.A., E.L., and A.L. analyzed the results. M.D. performed the X-ray diffraction measurements. C.H.W. and X.H.C. grew the Nd₂CuO₄ crystal. R.L., W.N.H., and D.A.B. grew the Sr₂CuO₂Cl₂ crystals. M.-E.B., G.G., and L.T. wrote the paper, in consultation with all authors. L.T. supervised the project.

Competing interests

The authors declare no competing interests.

Additional information

Supplementary information is available for this paper at <https://doi.org/10.1038/s41467-020-18881-z>.

Correspondence and requests for materials should be addressed to L.T.

Peer review information *Nature Communications* thanks the anonymous reviewer(s) for their contribution to the peer review of this work. Peer reviewer reports are available.

Reprints and permission information is available at <http://www.nature.com/reprints>

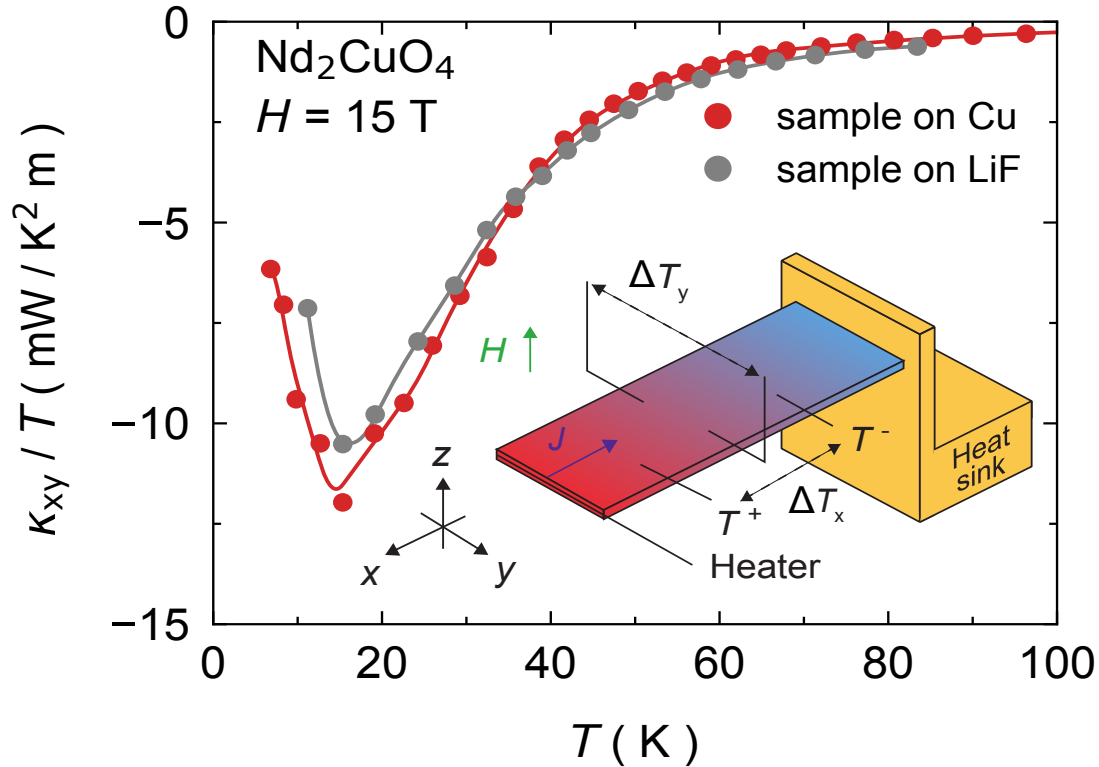
Publisher's note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



Open Access This article is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License, which permits use, sharing, adaptation, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons license, and indicate if changes were made. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in a credit line to the material. If material is not included in the article's Creative Commons license and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>.

© The Author(s) 2020

Supplementary Figure 1 | Thermal Hall conductivity measurement



Thermal Hall conductivity κ_{xy} of our Nd_2CuO_4 sample, measured in a magnetic field $H = 15$ T, plotted as κ_{xy}/T vs T . Two measurements were carried out: one with the heat sink made of copper (red data points) and the other one with the heat sink made of LiF (gray data points). Inset: Sketch of the measurement setup. One end of the thin sample is glued to a heat sink, while the other end is heated using a resistive heater attached to the sample by a silver wire. The heat current J generates a longitudinal temperature difference ΔT_x , both along the length of the sample (x direction). A magnetic field H applied along the z direction produces a transverse temperature difference ΔT_y between the two sides of the sample, along the y direction.

Chapitre 5

Effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons

5.1 Mise en contexte

Les mesures de la conductivité thermique de Hall dans les cuprates dopés en trous [2, 3] ont montré que les phonons interagissent avec le champ magnétique dans la phase pseudogap ainsi qu'à dopage nul, dans la phase isolant de Mott [119]. Parce que les phonons sont des excitations sans charge omniprésentes dans les matériaux, une question fondamentale se pose : comment les phonons acquièrent-ils la chiralité dans les cuprates, et même dans les autres isolants ?

Suite à ces découvertes, des mécanismes ont été suggérés par des groupes en théorie dans les deux dernières années, dont la diffusion asymétrique des phonons sur des défauts (ioniques, cristallins, etc.) [111, 115, 112], le couplage des phonons aux spins [110] ou encore un état d'ordre de boucles de courant brisant la symétrie par inversion du temps [109]. Cependant, aucune théorie proposée n'explique ou ne représente exactement (en termes d'ordre de grandeur du signal) parfaitement les mesures expérimentales.

Dans le but de poursuivre notre étude sur l'effet Hall thermique des cuprates, nous nous tournons maintenant vers les cuprates dopés en électrons. Aucune mesure d'effet Hall thermique de ce côté du diagramme de phase n'a été réalisée avant celles qui sont présentées dans ce chapitre.

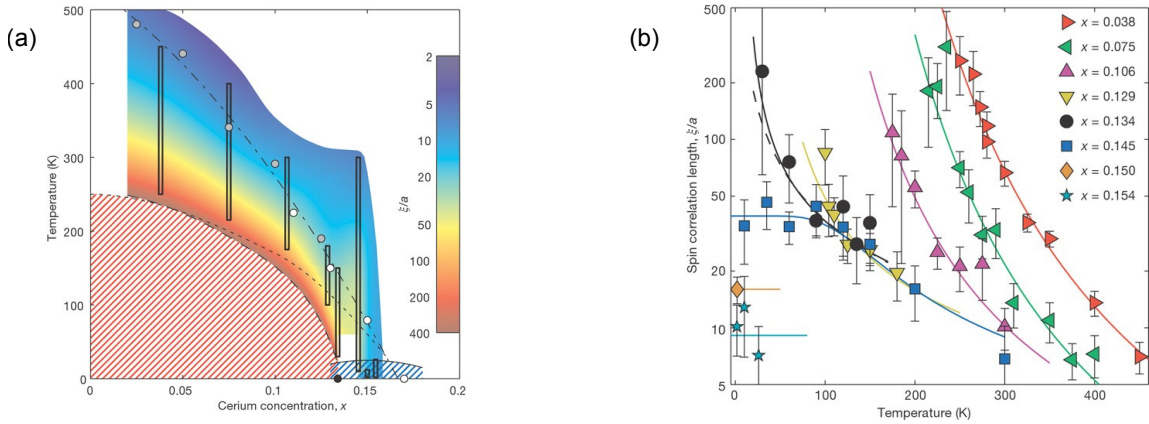


FIGURE 5.1 (a) Diagramme de phase température-dopage dans le cuprate dopé en électrons $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ obtenu par diffraction de neutrons. Les zones hachurées rouges et bleues indiquent la phase antiferromagnétique à longue portée, qui se termine à $x = 0.13$ ainsi que la phase supraconductrice sous T_c . Les régions encadrées indiquent la plage de température où la mesure est faite pour chaque dopage. La ligne pointillée à haute température indique T^* à partir des points obtenus en conductivité optique [120]. (b) Dépendance en température de la longueur de corrélation de spin ξ à différents dopages. Pour $x \leq 0.134$, les données suivent l'équation (5.1), indiquant la présence d'un ordre magnétique à longue portée. Pour $x \geq 0.145$, ξ ne diverge pas et a une valeur finie à $T = 0$. La figure provient de [60].

Les cuprates dopés en électrons sont une famille cousine aux cuprates dopés en trous. Ils ont des propriétés similaires (phase antiferromagnétique, phase supraconductrice) et offrent l'avantage d'être mieux compris théoriquement [55]. Ainsi, les différences et similitudes dans le diagramme de phase peuvent permettre des comparaisons intéressantes entre ces deux familles de matériaux. La première grande question est : y a-t-il un effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons ? Si oui, est-ce que ce signal est présent à tous les dopages ?

Prenons quelques moments pour bien décrire le diagramme de phase des cuprates dopés en électrons, plus particulièrement de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (NCCO) et ses différences avec les cuprates dopés en trous. Au fur et à mesure que les plans de CuO_2 sont dopés, la phase antiferromagnétique est supprimée et la supraconductivité émerge. Cependant, la phase antiferromagnétique est présente à haut dopage ($x = 0.13$ dans NCCO [60] comparativement à $p = 0.02$ dans LSCO [61]). La figure 5.1(a) montre l'évolution du diagramme de phase dans NCCO, obtenu par diffraction de neutrons. Motayama et collaborateurs ont pu déterminer la fin de l'ordre antiferromagnétique à longue portée en mesurant la longueur de corrélation de spin ξ bidimensionnelle qui varie exponentiellement en fonction de l'inverse de la

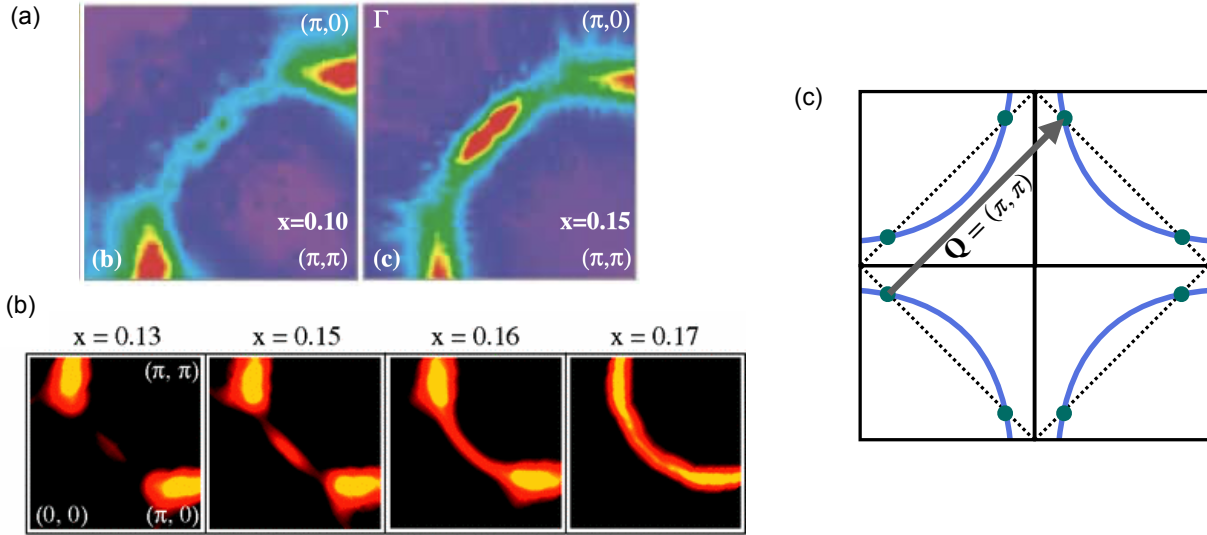


FIGURE 5.2 (a) Évolution de la surface de Fermi déterminée par ARPES pour NCCO à différents dopages montrant une perte de poids spectral aux points chauds pour $x = 0.15$. (b) Même chose, mais pour $x = 0.15$ et $x = 0.16$. Les figures proviennent de [55, 91]. (c) La perte de poids spectral est observée lorsque la surface de Fermi croise la zone de Brillouin antiferromagnétique. Cette figure est la courtoisie de Chloé Gauvin-Ndiaye.

température pour $T > T_N$,

$$\xi(x, T) = A(x) \exp \left[\frac{2\pi\rho_s(x)}{T} \right], \quad (5.1)$$

où $\rho_s(x)$ est la rigidité de spin (*spin stiffness* en anglais) et x la concentration de Ce [60]. La figure 5.1(b) montre que pour $x < 0.134$, ξ/a croît exponentiellement lorsque la température diminue, indiquant un ordre magnétique à longue portée. Ce résultat est important puisqu'il implique que la supraconductivité et le magnétisme ne cohabitent pas ensemble, *i.e.* que ce sont deux phases distinctes.

Le dôme supraconducteur des cuprates dopés en électrons est beaucoup moins étendu que celui des dopés en trous. De plus, la température critique au dopage optimal est $T_c = 24$ K pour NCCO $x = 0.15$ [121]. Cela fait en sorte qu'il est beaucoup plus facile d'avoir accès à l'état normal, et ce, jusqu'aux millikelvins puisque $H_{c2} < 10$ T [122, 123].

Une autre différence frappante est l'absence de phase pseudogap, tel qu'observée par la chute de densité d'état aux régions anti-nodales, dans les cuprates dopés en trous [68].

Les cuprates dopés en électrons présentent une phase dite «pseudogap antiferromagnétique», caractérisée par une chute de la densité d'état au croisement de la surface de Fermi avec la zone de Brillouin antiferromagnétique (voir figure 5.2) [55, 91]. Ces points de croisements sont appelés «points chauds» (*hot spots* en anglais). Le pseudogap antiferromagnétique serait ainsi lié à l'ordre antiferromagnétique à longue portée.

D'un point de vue théorique, le pseudogap antiferromagnétique existe dans un modèle de Hubbard en deux dimensions, tel que démontré par différentes méthodes de résolutions [124]. L'approche autocohérente à deux particules ou TPSC (*Two-Particle Self Consistent* en anglais) fut la première méthode numérique à prédire l'existence du pseudogap dans le modèle de Hubbard en deux dimensions [125]. Cette méthode prédit, à l'aide d'arguments analytiques, qu'une perte de poids spectral est observée aux points chauds lorsque la longueur de corrélation antiferromagnétique ξ_{spin} devient plus grande que la longueur d'onde de Broglie ($\xi_{th} = v_F \hbar / \pi k_B T$ avec v_F la vitesse de Fermi) [125, 92]. Motoyama et collaborateurs ont vérifié ce critère expérimentalement dans NCCO et pour $x < 0.15$ et ont montré que $\xi_{spin} \sim 2.6 \xi_{th}$ [60]. Plus récemment, Boschini et collaborateurs ont réalisé une mesure de TR-ARPES (*time- and angle-resolved photoemission* en anglais) dans NCCO $x = 0.15$ et établit que T^* persistait à ce dopage, même si l'ordre AF est absent [121]. Ainsi, les corrélations de spins 2D à courte portée sont présentes au-delà de l'ordre AF et la phase pseudogap semble être précurseur de l'ordre AF à longue portée. Donc, la phase pseudogap antiferromagnétique résulte des fluctuations de spin 2D dans les cuprates dopés en électrons [92, 60, 121].

Finalement, au-delà de la phase supraconductrice (à fort dopage), les cuprates dopés en électrons sont dans la phase liquide de Fermi tout comme leurs analogues dopés en trous. Une phase dite de métal étrange est aussi présente pour $T > T_c$ au-dessus du dôme supraconducteur [122].

Ainsi, avec un diagramme de phase tout aussi riche que celui des cuprates dopés en trous, les cuprates dopés en électrons sont des candidats idéals pour permettre des comparaisons intéressantes. Dans notre étude, nous nous penchons sur le composé NCCO et $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (PCCO), de l'isolant de Mott ($x = 0$) à l'état métallique ($x = 0.17$). Les cuprates dopés en électrons ont l'avantage d'avoir une structure tétragonale à tous les dopages, facilitant les comparaisons entre eux. Nous observons un signal d'effet Hall négatif présent à tous les dopages que nous attribuons aux phonons. Le signal est plus grand que celui observé du côté dopé en trous, présentant des ratios κ_{xy}/κ_{xx} allant jusqu'à 2.7 %, comparativement à

0.4 % [119]. Puisque les fluctuations AF à courte portée sont présentes à tous les dopages, cela constitue une piste de mécanisme intéressante pour expliquer la chiralité des phonons dans les cuprates. L'implication serait donc que le signal $\kappa_{xy} < 0$ vu dans les dopés en trous sous p^* soit la signature de corrélations AF dans la phase pseudogap.

5.2 Article

Cet article présente les résultats de l'étude complète de la conductivité thermique longitudinale et transverse dans les cuprates dopés en électrons. Tel que mentionné précédemment, il n'existe aucune autre étude de l'effet Hall thermique dans ces composés. Il s'agit d'un projet où j'étais indépendante tout au long du processus, de la préparation des échantillons à la prise et l'analyse des données expérimentales ainsi qu'à la rédaction de l'article. Gaël Grissonanche, Étienne Lefrançois et Adrien Gourgout ont assisté à l'expérience ainsi qu'aux discussions scientifiques reliant le projet. Les échantillons de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ nous ont été fournis par Ke-Jun Xu et Zhi-Xun Shen tandis que ceux de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ont été fournis par Richard L. Greene. Louis Taillefer a supervisé le projet et rédigé l'article.

Dans le cas des cuprates dopés en électrons, la préparation des échantillons était plus simple que pour $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, puisque les cuprates sont moins sensibles à l'air. Tous les cristaux ont été orientés cristallographiquement par Maxime Dion afin de s'assurer que nous puissions orienter le champ magnétique parallèlement à l'axe c . Par la suite, les échantillons ont pu être coupés et polis pour obtenir des formes rectangulaires. Les contacts ont été apposés en utilisant de l'époxy (tel que décrit au chapitre 3) et diffusés sous oxygène.

Les résultats présentés dans l'article montrent l'effet Hall thermique pour un champ magnétique $H = 0.15$ T. Pour tous les échantillons présentés, nous avons aussi mesuré $\kappa_{xy}(T)$ pour différents champs magnétiques, soit $H = 5, 10.6$ et 15 T. Les résultats sont très similaires pour tous les dopages, présentant une dépendance sous-linéaire en fonction de la température pour $T < 40$ K. Pour $T > 40$ K, on trouve $\kappa_{xy} \sim H$.

Nous avons aussi effectué une étude selon l'axe c , tel que fait précédemment dans les cuprates dopés en trous [3], pour NCCO $x = 0.04$ et $x = 0.17$. Cette étude a permis de confirmer l'origine des phonons comme porteurs de chaleur responsables de l'effet Hall thermique dans NCCO.

Cette étude ne se limite pas seulement à l'étude de NCCO à travers le diagramme de phase, mais aussi sur l'effet des ions d'oxygène sur l'effet Hall thermique. En effet, les cuprates dopés en électrons présentent la subtilité que la concentration en cérium (x) ainsi que la teneur en oxygène contrôlent le diagramme de phase [55]. Sans oxygénation, les cuprates dopés en électrons ne sont pas supraconducteurs et leurs propriétés électroniques peuvent en être grandement influencées [126]. Il est cependant très difficile de connaître exactement la teneur en oxygène des échantillons une fois le recuit effectué [122]. Dans le but de voir le rôle de l'oxygénation sur l'effet Hall thermique, nous avons effectué des mesures sur des cristaux *as grown*, sans recuit. L'idée est venue de l'étude théorique de Flebus et Macdonald, qui prédisent l'absence d'ions d'oxygène comme mécanisme responsable de la chiralité des phonons [111]. Cette étude, ayant nécessité de nouveaux échantillons, constitue une étape importante du projet.

Cet article en entier forme une part importante de ma thèse, tout en étant une contribution importante au domaine de l'effet Hall thermique dans les matériaux quantiques. Cela ajoute une autre pièce au sujet de la conductivité thermique transverse des phonons, tout en suggérant une nouvelle avenue théorique : le couplage des phonons aux fluctuations de spins antiferromagnétiques à courte portée.

Cet article a été publié en mars 2022 dans le journal *Physical Review B*.

Titre : Thermal Hall conductivity of electron-doped cuprates

Auteurs et autrices : Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Étienne Lefrançois, Adrien Gourgout, Ke-Jun Xu, Zhi-Xun Shen, Richard L. Greene et Louis Taillefer

Référence : [Physical Review B 105, 115101 \(2022\)](#)

Thermal Hall conductivity of electron-doped cuprates

Marie-Eve Boulanger¹, Gaël Grissonnanche¹, Étienne Lefrançois¹, Adrien Gourgout¹, Ke-Jun Xu,^{2,3,4}
Zhi-Xun Shen,^{2,3,4} Richard L. Greene⁵, and Louis Taillefer^{1,6}

¹*Institut quantique, Département de physique & RQMP, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, J1K 2R1, Canada*

²*Geballe Laboratory for Advanced Materials, Stanford University, Stanford, California 94305, USA*

³*Stanford Institute for Materials and Energy Sciences, SLAC National Accelerator Laboratory, Menlo Park, California 94025, USA*

⁴*Departments of Physics and Applied Physics, Stanford University, Stanford, California 94305, USA*

⁵*Department of Physics, Maryland Quantum Materials Center, University of Maryland, College Park, Maryland 20742, USA*

⁶*Canadian Institute for Advanced Research, Toronto, Ontario M5G 1M1, Canada*



(Received 16 December 2021; revised 11 February 2022; accepted 11 February 2022; published 1 March 2022)

Measurements of the thermal Hall conductivity in hole-doped cuprates have shown that phonons acquire chirality in a magnetic field both in the pseudogap phase and in the Mott insulator state. The microscopic mechanism at play is still unclear. A number of theoretical proposals are being considered including skew scattering of phonons by various defects, the coupling of phonons to spins, and a state of loop-current order with the appropriate symmetries, but more experimental information is required to constrain theoretical scenarios. Here we present our study of the thermal Hall conductivity κ_{xy} in the electron-doped cuprates $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ and $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ for dopings across the phase diagram, from $x = 0$ in the insulating antiferromagnetic phase up to $x = 0.17$ in the metallic phase above optimal doping. We observe a large negative thermal Hall conductivity at all dopings in both materials. Since heat conduction perpendicular to the CuO_2 planes is dominated by phonons, the large thermal Hall conductivity we observe in electron-doped cuprates for a heat current in that direction must also be due to phonons, as in hole-doped cuprates. However, the degree of chirality, measured as the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ where κ_{xx} is the longitudinal thermal conductivity, is much larger in the electron-doped cuprates. We discuss various factors that may be involved in the mechanism that confers chirality to phonons in cuprates, including short-range spin correlations.

DOI: [10.1103/PhysRevB.105.115101](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.105.115101)

I. INTRODUCTION

The thermal Hall effect is a promising tool for obtaining information on the nature of excitations in quantum materials. The thermal Hall conductivity κ_{xy} is obtained by measuring the transverse temperature difference (along the y axis) produced by a magnetic field applied along the z axis, perpendicular to the heat current (along the x axis). Electrons give rise to a thermal Hall signal in metals due to the Lorentz force for the same reason they produce an electrical Hall effect. In recent years, it has become clear that insulators can also give rise to a thermal Hall signal, even though their excitations are charge neutral. Magnons can produce a thermal Hall effect under certain conditions [1], as observed in the antiferromagnet (AF) $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ [2]. It has been proposed that more exotic excitations, such as Majorana edge modes in Kitaev spin liquids [3], can also be detected via the thermal Hall effect.

Phonons can also give rise to a thermal Hall signal, even if they are charge neutral excitations. The first observation of a phonon thermal Hall effect was in the paramagnetic insulator $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [4,5]. In that case, the effect was attributed to the skew scattering of phonons by superstoichiometric Tb^{3+} ions [6]. Since then, a phonon Hall effect has been reported in various other insulators. In the multiferroic material $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, the effect was linked to the strong spin-lattice interaction [7]. In the quantum paraelectric SrTiO_3 , the effect was linked

to a strong flexoelectric susceptibility and the presence of structural domains [8,9]. In the AF Cu_3TeO_6 , the record-high κ_{xy} signal was linked to a large phonon conductivity κ_{xx} , giving a ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ comparable with that measured in other insulators [10].

In hole-doped cuprates, a large negative κ_{xy} signal was observed in the pseudogap phase below the critical doping p^* [11] but also in the Mott insulator state at zero doping in La_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 , and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ [12].

In La_2CuO_4 , phonons were shown to be responsible for the thermal Hall effect by applying a heat current normal to the CuO_2 planes, a direction in which only phonons can move easily, which revealed that the c -axis thermal Hall conductivity, κ_{zy} , is comparable in magnitude to the in-plane conductivity, κ_{xy} [13].

The question is this: By what mechanism can a magnetic field confer chirality—here defined as handedness in a magnetic field—to phonons and thus produce a thermal Hall effect in cuprates, and more generally in insulators? A number of theoretical proposals have recently been made, including the skew scattering of phonons by defects [14–17], the coupling of phonons to spins [18] and a state of loop-current order with the appropriate symmetries [19]. It is currently unclear what precise mechanism is appropriate for the cuprates or indeed for $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, SrTiO_3 , and Cu_3TeO_6 .

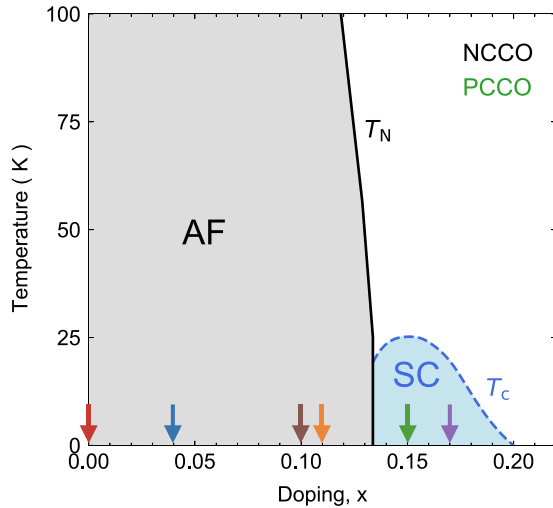


FIG. 1. Schematic temperature-doping phase diagram of the electron-doped cuprates consisting of the AF phase, bounded by the Néel temperature T_N (solid black line), and the superconducting phase (SC), bounded by its zero-field critical temperature T_c (dashed blue line). In our study, we applied a magnetic field of $H = 15$ T normal to the CuO_2 planes in order to remove the superconductivity and access the normal state down to $T \rightarrow 0$. The color-coded arrows indicate the doping values of the samples included in our study: Nd_2CuO_4 ($x = 0$), NCCO ($x = 0.04, 0.10, 0.11, 0.17$), and PCCO ($x = 0.15$; green arrow). We divide the doping range into an AF regime ($x < 0.13$) and a metallic regime ($x > 0.13$).

To shed new light on the thermal Hall effect in cuprates, we have conducted a systematic study of the thermal Hall conductivity in the electron-doped cuprates $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (NCCO) and $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (PCCO). There are two important differences between electron-doped and hole-doped cuprates: The mysterious pseudogap phase of the latter, characterized by a partial spectral weight depletion in the antinodal region of the Fermi surface [20], is not present in the former [21], and AF is stronger in the former in the sense that the phase of long-range AF order extends to much higher doping [22]—up to $x \simeq 0.13$ in NCCO (Fig. 1) vs $p \simeq 0.02$ in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO). In addition, electron-doped cuprates are convenient because the full doping range can be covered, from Mott insulator at zero doping to metal at high doping, while keeping the same crystal structure, and a modest magnetic field ($\simeq 10$ T) is sufficient to fully suppress superconductivity [23] so that the normal state can easily be accessed down to $T \rightarrow 0$ at all dopings.

In this paper, we show that there is a large negative thermal Hall conductivity in the electron-doped cuprates that persists up to the highest doping we have investigated ($x = 0.17$). Because a large thermal Hall signal is still observed when the heat current is applied normal to the CuO_2 planes, we conclude that phonons are responsible for it. Indeed, all other heat-carrying excitations (of electronic or magnetic origin) are expected to be much more mobile within the CuO_2 planes than across planes [13]. The fact that $|\kappa_{xy}|$ remains large outside the phase of long-range AF order ($p > 0.13$, Fig. 1) shows that AF order *per se* is not an important ingredient in the mechanism that confers chirality to phonons in a magnetic field. The

fact that the signal is very similar for NCCO and PCCO rules out rare-earth ions as playing a key role. The phononic κ_{xy} response in electron-doped cuprates has the same sign (negative) and a similar temperature dependence to that found in hole-doped cuprates but with a significantly larger magnitude. Indeed, the degree of chirality, measured as the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, where κ_{xx} is the longitudinal thermal conductivity, is ~ 4 times larger in the electron-doped cuprates. We infer that the same underlying mechanism is effective in all cuprates and suggest that short-range AF correlations may play a role.

II. METHODS

A. Samples

Single crystals of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.04, 0.10, 0.11$, and 0.17 were grown at Stanford University by the traveling-solvent floating-zone method in O_2 and annealed in flowing argon for 48 h at 900°C . A single crystal of $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ with $x = 0.15$ was grown at the University of Maryland using the flux growth method with flowing argon and a titanium getter at 900°C for 4 days [24]. The value of T_c , the superconducting transition temperature in zero field defined by the onset of the drop in magnetization, is $T_c = 22$ and 20 K for $x = 0.15$ and 0.17 , respectively. For these superconducting samples, a field of 15 T applied normal to the CuO_2 planes is large enough to completely suppress superconductivity down to $T \rightarrow 0$ [23].

Samples were cut into rectangular platelets and contacts were made with silver epoxy, diffused at 500°C under oxygen for 1 h. The in-plane samples have their lengths (and current direction) along the a axis ($J \parallel a \parallel x$), i.e., parallel to the CuO_2 planes of the tetragonal structure. Sample dimensions are roughly $(500 - 1000) \times (500 - 1000) \times (50 - 200)$ (length between contacts \times width \times thickness, in μm).

We also studied thermal transport for a heat current applied along the c axis ($J \parallel c \parallel z$), for NCCO at $x = 0.04$ and $x = 0.17$. To do so, we cut two samples from the same single crystal (distinct from the crystal used for the in-plane transport study): One with the longest direction along the c axis and the other along the a axis.

In addition to the annealed samples mentioned above, we also measured two as-grown (unannealed) samples with $x = 0.04$ and 0.10 , respectively, to investigate the effect of oxygen reduction on the thermal transport properties of NCCO. The dimensions are $(1320 \times 1250 \times 150) \mu\text{m}$ and $(700 \times 550 \times 670) \mu\text{m}$ for $x = 0.04$ and $x = 0.10$, respectively. For $x < 0.13$, the reduction process removes some of the nonstoichiometric excess oxygen atoms that lie naturally in apical positions of the structure in as-grown samples [25]. The effectiveness of this reduction process decreases with increasing Ce doping [26].

B. Measurements

The thermal conductivity κ_{xx} is measured by applying a heat current J_x along the x axis of the sample (longest direction), which generates a longitudinal temperature difference $\Delta T_x = T^+ - T^-$. The thermal conductivity κ_{xx} is given by

$$\kappa_{xx} = \frac{J_x}{\Delta T_x} \left(\frac{L}{wt} \right), \quad (1)$$

where J_x is the heat current, w is the sample width, t is its thickness, and L is the distance between T^+ and T^- . When a magnetic field is applied parallel to z , a transverse temperature difference ΔT_y can develop along the y axis. The thermal Hall conductivity κ_{xy} is then defined as

$$\kappa_{xy} = -\kappa_{yy} \left(\frac{\Delta T_y}{\Delta T_x} \right) \left(\frac{L}{w} \right). \quad (2)$$

In a tetragonal system (like NCCO and PCCO), we can take $\kappa_{yy} = \kappa_{xx}$. The temperature differences ΔT_x and ΔT_y were measured using type-E thermocouples (chromel-constantan) in a steady-state method at fixed magnetic field H (see Refs. [12,13,27]), since such thermocouples have a weak-field dependence in the regime of T and H values explored here, and they have a better sensitivity than resistive Cernox sensors at high temperature. (Note that in a previous test we found no difference between a κ_{xy} measurement using thermocouples and a κ_{xy} measurement on the same sample using Cernox sensors; see Appendix C in Ref. [27].) The (heat-off) voltage background of the thermocouples was carefully subtracted from the heat-on signal to give the correct ΔT_y . In order to properly measure κ_{xy} , any contamination from the thermal conductivity κ_{xx} that would result from a slight misalignment of the two opposite transverse contacts is removed by field antisymmetrization, namely, $\Delta T_y(H) = [\Delta T_y(T, H) - \Delta T_y(T, -H)]/2$. The heat current along the x axis is generated by a strain gauge heater attached to one end of the sample. The other end is glued using silver paint to a copper block that serves as a heat sink. (Note that the Hall response of copper in a field does not contaminate the Hall response coming from the sample, as was verified by measuring κ_{xy} twice on the same sample of Nd_2CuO_4 —once with the copper block and then with a block made of the insulator LiF. The same κ_{xy} curve was obtained with the two setups within error bars—see the Supplemental information in Ref. [12]. Hence using copper for the heat sink does not lead to any detectable contamination of the thermal Hall signal.)

For the measurements of κ_{zy} presented here, the heat current J was sent along the c axis of the single crystal (along z), perpendicular to the CuO_2 planes. By applying a magnetic field H along the a axis (along x), parallel to the CuO_2 planes, a transverse temperature difference is generated along y . The longitudinal thermal conductivity along the c axis is then given by $\kappa_{zz} = (J_z/\Delta T_z)(L/wt)$. The out-of-plane thermal Hall conductivity is defined as $\kappa_{zy} = -\kappa_{yy}(\Delta T_y/\Delta T_z)(L/w)$, where κ_{yy} is the longitudinal thermal conductivity along the y axis, again taken to be equal to κ_{xx} for a tetragonal system. More details can be found in Ref. [13].

III. RESULTS

The longitudinal thermal conductivity κ_{xx} and the thermal Hall conductivity κ_{xy} of our samples are displayed in Fig. 2 (for the AF regime) and Fig. 3 (for the metallic regime). Our main finding is that a large negative thermal Hall signal is present in all samples at all dopings. The minimum in κ_{xy} is located at roughly the same temperature as the maximum in the phonon-dominated κ_{xx} , namely, $T \simeq 20 - 30$ K, a first indication that the thermal Hall effect is due to phonons.

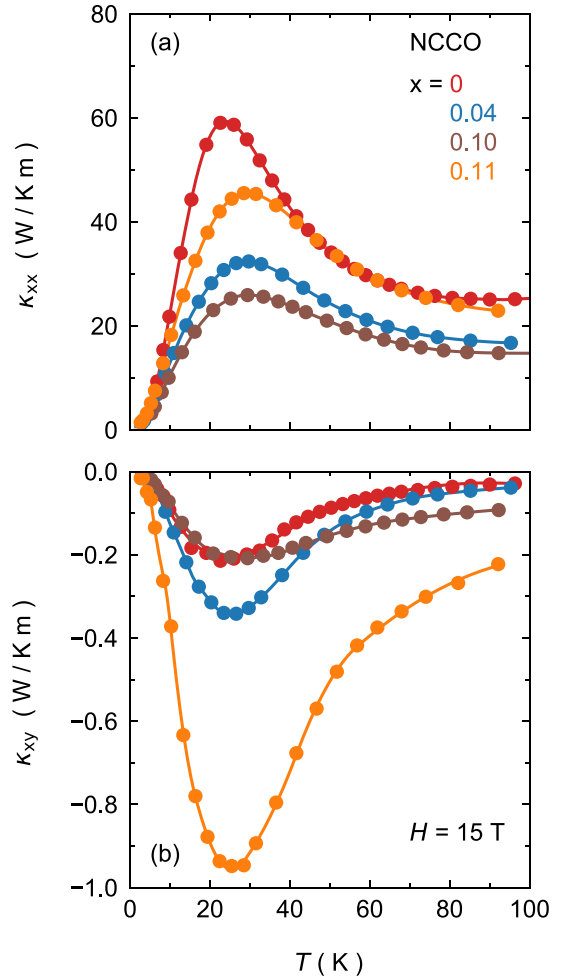


FIG. 2. Thermal transport properties of NCCO in the AF regime, at dopings $x = 0$ (red; [12]), 0.04 (blue), 0.10 (brown), and 0.11 (orange), measured in a magnetic field $H = 15$ T applied normal to the CuO_2 planes ($H \parallel c$). (a) Thermal conductivity κ_{xx} vs temperature. (b) Thermal Hall conductivity κ_{xy} vs T . All lines through the data points are a guide to the eye.

The data in Figs. 2 and 3 were all taken at $H = 15$ T. It is worth noting that although κ_{xy} is linear in H at high temperature, it develops a sublinear dependence at lower temperature, in tandem with the growth of a field dependence in κ_{xx} , as shown in Fig. 4 for $x = 0.04$.

While for $x < 0.13$ we expect to have a negligible electronic contribution to κ_{xx} and κ_{xy} (because the samples are electrically insulating), this may not be the case at the highest dopings where the samples are reasonably good metals. In Fig. 3, we plot a rough estimate of the expected contribution of electrons (dashed lines), calculated by assuming that the Wiedemann-Franz law holds at all temperatures, namely, $\kappa_{xx}^e = L_0 T \sigma_{xx}$, with $\sigma_{xx} = \rho_{xx}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$, and $\kappa_{xy}^e = L_0 T \sigma_{xy}$, with $\sigma_{xy} = \rho_{xy}/(\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2)$. For these estimates, we used published data on PCCO at $x = 0.17 - \rho_{xx}(T)$ data in Ref. [23] and $R_H(T)$ data in Ref. [28], with $\rho_{xy}(T) \equiv R_H(T) \times H$. This gives an upper bound on the electronic κ_{xx} and κ_{xy} . We see that these electronic contributions are small

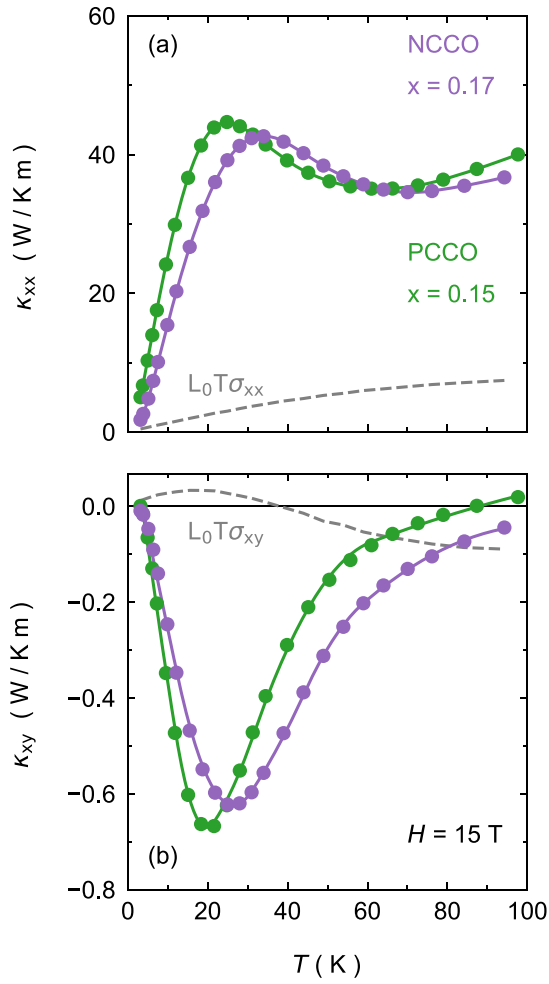


FIG. 3. Thermal transport properties of electron-doped cuprates in the metallic regime, namely, PCCO at $x = 0.15$ (green) and NCCO at $x = 0.17$ (purple), measured in a field $H = 15$ T ($H \parallel c$). (a) κ_{xx} vs T . (b) κ_{xy} vs T . The dashed gray lines are an estimate of the electronic contribution to κ_{xx} and κ_{xy} , respectively, based on applying the Wiedemann-Franz law to the electrical conductivities σ_{xx} and σ_{xy} reported for PCCO at $x = 0.17$ [23,28] (see text). All solid lines are a guide to the eye.

compared with the measured κ_{xx} and κ_{xy} , especially at low temperature, being less than 10% at $T < 40$ K.

It is instructive to look at the ratio κ_{xy}/κ_{xx} plotted as a function of temperature in Fig. 5. We see that the quantity $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, which we call the degree of chirality, peaks at $T \simeq 20$ K, the temperature where the phonon conductivity κ_{xx} also peaks. At its peak, the degree of chirality in electron-doped cuprates reaches a maximal value $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| = 0.9 - 2.7\%$, at $H = 15$ T (Table I). This degree of chirality is four times larger than that measured in the hole-doped cuprates, namely, $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| = 0.2 - 0.6\%$ at $H = 15$ T (Table I). This significant difference in the degree of chirality might provide new insight into the underlying mechanism of phonon chirality in all cuprates, as we discuss below.

In order to confirm that phonons are indeed the heat carriers responsible for the negative thermal Hall effect in NCCO and PCCO, we investigated the thermal Hall response for a heat current sent along the c axis, normal to the CuO_2 planes. In

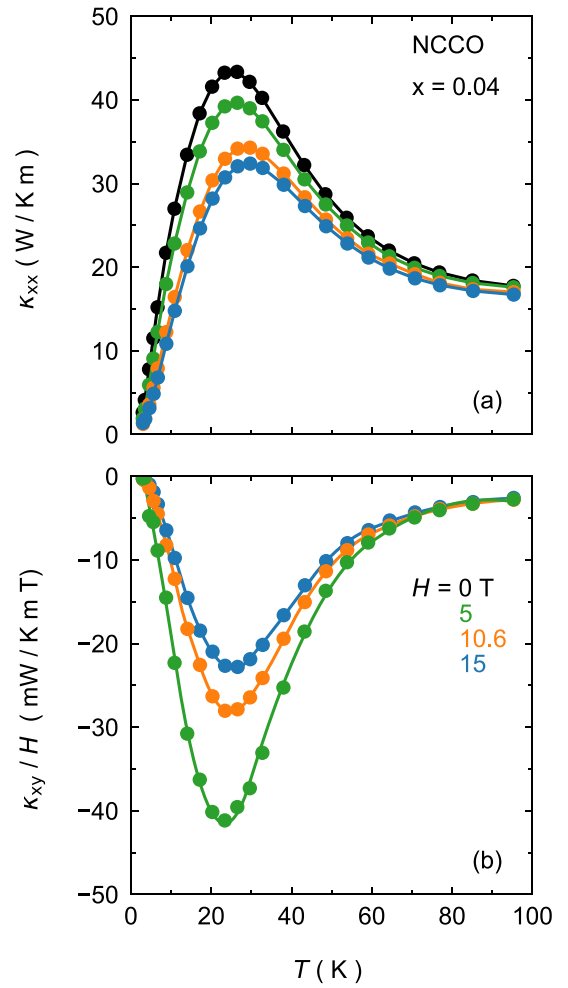


FIG. 4. Field dependence of thermal transport in NCCO at $x = 0.04$. (a) Thermal conductivity κ_{xx} vs T for $H = 0$ T (black), 5 T (green), 10.6 T (orange), and 15 T (blue). Near its peak value, κ_{xx} is seen to drop significantly with increasing field. A similar field-induced suppression of κ_{xx} is observed at all dopings. (b) Thermal Hall conductivity for $H = 5$ T (green), 10.6 T (orange), and 15 T (blue) plotted as κ_{xy}/H vs T . Although κ_{xy} is linear in H at the highest temperatures (i.e., κ_{xy}/H is independent of H), it acquires a strong sublinearity at lower temperature. A similar field-induced nonlinearity of κ_{xy} is observed at all dopings. All lines are a guide to the eye.

such a direction, the only excitations in the material that have nonnegligible mobility are the phonons, as argued in Ref. [13]. In Fig. 6(a), we plot κ_{zz} vs T for NCCO at $x = 0.04$ ($J \parallel c$). We find that κ_{zz} is smaller than κ_{xx} ($J \parallel a$) by a factor 4 or so at $T = 30-40$ K, where the two conductivities were measured on two separate samples cut from the same crystal [Fig. 6(b)]. In Fig. 6(c), the thermal Hall conductivity κ_{zy} is displayed ($J \parallel c$, $H \parallel a$). The degree of chirality for $J \parallel c$, $|\kappa_{zy}/\kappa_{zz}|$ is seen to be even larger than that for $J \parallel a$, i.e., $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ [Fig. 6(d)]. This confirms that phonons are responsible for the negative thermal Hall effect in electron-doped cuprates. Similar findings were obtained at $x = 0.17$ (see Fig. 7).

Finally, we have investigated the effect of annealing on the NCCO samples by comparing data from as-grown samples vs annealed samples at the same doping for two dopings: $x =$

TABLE I. Thermal Hall conductivity of cuprates. The magnitude of κ_{xx} and κ_{xy} at $T = 20$ K and $H = 15$ T is listed, as well as the degree of chirality, given by the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$. The first group of materials (top section) consists of cuprate Mott insulators ($x = p = 0$). The second group (middle section) consists of hole-doped cuprates for doping values p as indicated (second column). At high doping ($p > 0.1$), the samples are metallic and so we quote here the thermal transport coefficients for a heat current normal to the CuO_2 planes ($J \parallel c$), which contain only the phonon contribution to heat transport. The last group is electron-doped cuprates (bottom section) for doping values x as indicated.

Material	Doping	κ_{xy} (mW/Km)	κ_{xx} (W/Km)	$ \kappa_{xy}/\kappa_{xx} $ (%)
Nd_2CuO_4 [12]	0.00	-200	56	0.4
$\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ [12]	0.00	-21	7	0.3
La_2CuO_4 [11]	0.00	-38	12	0.3
$\text{La}_2\text{CuO}_4^a$ [13]	0.00	-30	16	0.2
LSCO [11]	$p = 0.06$	-33	6	0.6
Eu-LSCO [11]	0.08	-11	5	0.2
Nd-LSCO ^a [13]	0.21	-14	2.9	0.5
Nd-LSCO ^a [13]	0.24	0	1.2	0
Eu-LSCO ^a [13]	0.24	0	1.2	0
NCCO	$x = 0.04$	-314	28	1.1
NCCO ^b	0.04	-1400	51	2.7
NCCO ^a	0.04	-227	14	1.6
NCCO	0.10	-194	22	0.9
NCCO ^b	0.10	-360	25	1.4
NCCO	0.11	-898	39	2.3
PCCO	0.15	-676	43	1.6
NCCO	0.17	-568	34	1.7

^a($J \parallel c$).

^b(As grown).

0.04 and $x = 0.10$. In its ideal structure, there is no oxygen atom in the apical position of the crystal lattice of NCCO. However, in as-grown crystals there is an oxygen atom in approximately 10% of apical positions [29]. The reduction annealing treatment removes some of those excess oxygens in apical positions, especially when $x \leq 0.10$ [25,30]. Annealing crystals also reduces built-in tension and disorder.

The thermal transport data for this comparative study are displayed in Fig. 8. Let us first focus on the data for the sample with $x = 0.04$ (left panels). In Fig. 8(a), we see that the removal of excess oxygens by annealing has little effect on κ_{xx} at the lowest temperatures ($T < 10$ K), a regime where the sample boundaries dominate the scattering of phonons, but it leads to a significant increase in the phonon mean-free path at higher temperatures, seen as an enhanced conductivity κ_{xx} .

Surprisingly, this enhanced conductivity is accompanied by a decrease of $|\kappa_{xy}|$ [Fig. 8(c)], a behavior opposite to the usual trend that the magnitude of κ_{xy} tends to grow in tandem with κ_{xx} (Table I). As a result, the degree of chirality, $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, is seen to be significantly larger in the as-grown sample [Fig. 8(e)]. We discuss the possible implications of this observation in the next section.

Corresponding data for the sample with $x = 0.10$ (Fig. 8, right panels) do not lead to as clear cut a conclusion, because the effect of annealing is different at higher doping; indeed, apical oxygens are no longer affected, but in-plane oxygens are removed [31]. Consistent with the resulting in-plane disorder, a prior study found reduction annealing of NCCO at $x = 0.22$ to decrease κ_{xx} [32]. Nonetheless, at its peak vs temperature, $|\kappa_{xy}|$ is again larger in the as-grown sample [Fig. 8(d)], as is $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ [Fig. 8(f)].

IV. DISCUSSION

We observe a large negative thermal Hall conductivity κ_{xy} in the electron-doped cuprates NCCO and PCCO, for all dopings from the insulator at $x = 0$ to the metal at $x = 0.17$. After summarizing the arguments for why phonons are the heat carriers responsible for this κ_{xy} signal, we discuss the implications of our findings regarding the underlying mechanism that makes phonons chiral in cuprates—by which we simply mean that they produce a thermal Hall effect in the presence of a magnetic field perpendicular to the heat current.

A. Phonon Hall effect

The similarity of κ_{xy} data at the various dopings strongly suggests a single unified scenario—the same heat carriers and the same microscopic mechanism at all dopings. The negative κ_{xy} signal we detect is certainly not due to electrons at low doping, for our sample with $x = 0.04$ is electrically insulating. Nor is it due to magnons at high doping, for our samples at $x = 0.15$ and $x = 0.17$ are outside the phase of long-range AF order. So we can rule out electrons and magnons as the heat carriers responsible for the thermal Hall effect in electron-doped cuprates across the full doping range. This leaves phonons as the only obvious candidate. The fact that the curve of κ_{xy} vs T peaks at the same temperature as the phonon-dominated κ_{xx} vs T certainly suggests that phonons are responsible for κ_{xy} . {Note that in hole-doped cuprates (LSCO, Eu-LSCO), κ_{xy} vs T also peaks at $T \sim 20$ K, which is typically the temperature at which the phonon thermal conductivity κ_{xx} peaks [11].}

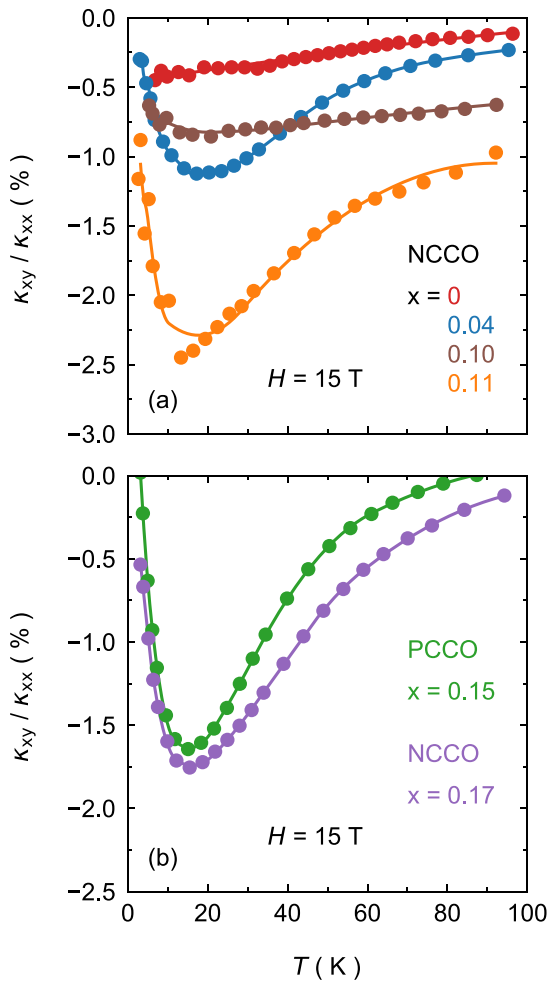


FIG. 5. Ratio of κ_{xy} over κ_{xx} , as a function of temperature measured at $H = 15$ T. (a) For samples in the AF regime (data from Fig. 2). (b) For samples in the metallic regime (data from Fig. 3). The ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, a dimensionless quantity we call the degree of chirality, is seen to peak at $T \simeq 20$ K, roughly the same temperature at which the phonon conductivity κ_{xx} peaks. Its maximal value in the electron-doped samples ($x > 0$) is approximately 1–3% (see Table I for precise values), a factor 4 larger than in hole-doped cuprates (Table I). All lines are a guide to the eye.

What essentially proves that it is phonons that carry the thermal Hall effect is our study of heat transport along the c axis, a direction in which only phonons can carry heat with significant mobility, where we also observe a large degree of chirality [Figs. 6(d) and 7(d)].

B. Scattering processes

It is likely that the phonon thermal Hall effect in cuprates is due to the skew scattering of phonons off some impurities or defects. The original observation of a phonon Hall effect, in the insulator $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [4], was attributed to skew scattering off superstoichiometric Tb^{3+} ions [6]. In SrTiO_3 , the large κ_{xy} signal was linked to the presence of structural domains, resulting from a structural transition at $T \simeq 105$ K [8,9], thereby accounting for the very weak κ_{xy} signal seen in the closely related material KTaO_3 , which does not undergo any such

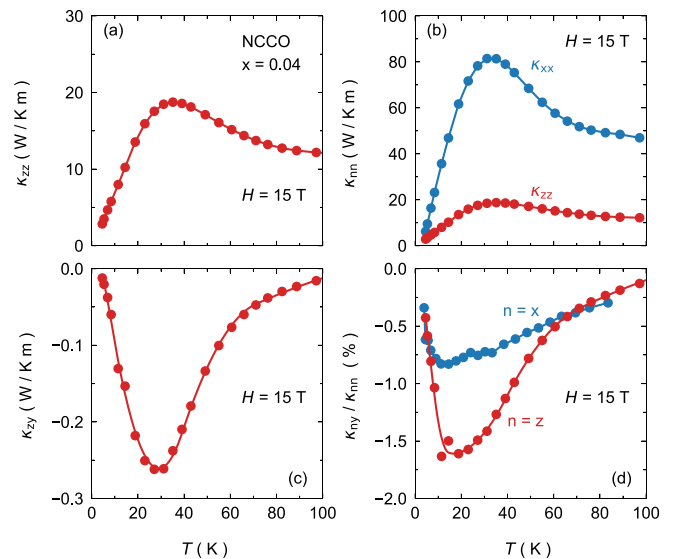


FIG. 6. Heat transport properties of NCCO at $x = 0.04$, for ($J \parallel c$) ($n = z$, red) and for ($J \parallel a$) ($n = x$, blue), at $H = 15$ T (where $H \perp J$). (a) The c -axis thermal conductivity, plotted as κ_{zz} vs T . (b) Comparison of the longitudinal thermal conductivities for a heat current in plane (κ_{xx} , blue) and out of plane (κ_{zz} , red). The two data sets come from two samples cut from the same crystal. (c) Thermal Hall conductivity for a heat current along the c axis and a field $H = 15$ T applied parallel to the CuO_2 planes, plotted as κ_{zy} vs T . (d) Ratio of κ_{zy} over κ_{zz} ($n = z$, red; data from panels (a) and (c)) compared with the ratio of κ_{zy} over κ_{xx} ($n = x$, blue; data taken on a separate sample cut from the same crystal).

transition. Let us therefore explore what scattering processes might be relevant for electron-doped cuprates.

The first point to stress is that there are no structural domains in NCCO or PCCO, as these materials retain their tetragonal structure at all temperatures. So scattering of phonons off structural domain boundaries is ruled out (including those associated with the AF order, as there is no long-range order in our samples with $x = 0.15$ and 0.17).

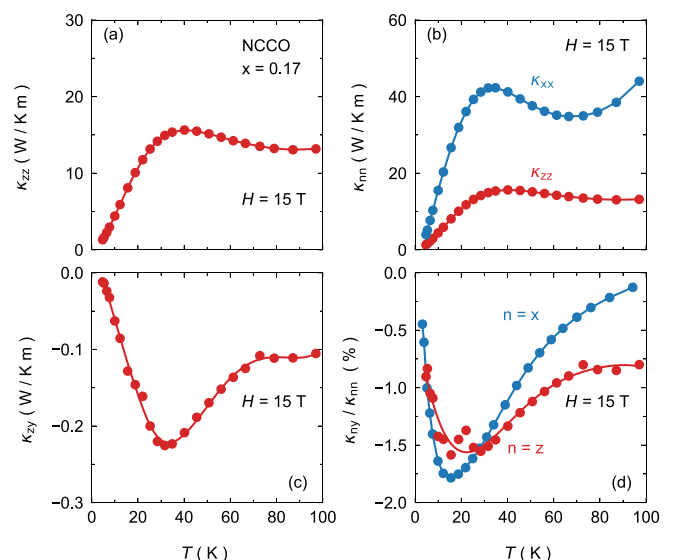


FIG. 7. Same as for Fig. 6 but for $x = 0.17$.

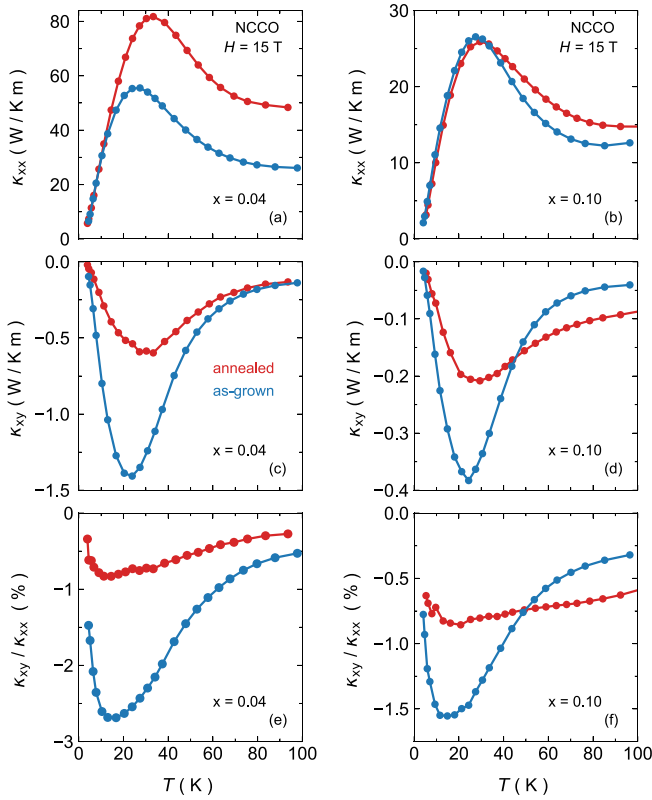


FIG. 8. Effect of annealing on the thermal transport of NCCO at $x = 0.04$ (left panels) and $x = 0.10$ (right panels). Data taken on an as-grown (not annealed) sample (blue curves) are compared with data taken on an annealed sample (red curves): (a), (b) longitudinal thermal conductivity κ_{xx} ; (c), (d) thermal Hall conductivity κ_{xy} ; (e), (f) ratio κ_{xy}/κ_{xx} .

The next observation is the striking similarity between κ_{xy} data on NCCO and PCCO [Figs. 3(b) and 5(b)]. This immediately tells us that the nature of the rare-earth ion, whether Nd^{3+} or Pr^{3+} , is irrelevant for the mechanism of phonon chirality in cuprates.

The larger degree of chirality in NCCO with $x > 0$ compared with Nd_2CuO_4 ($x = 0$) suggests that adding Ce ions into the structure favors phonon chirality. Could it be that the scattering of phonons by Ce impurities enhances the κ_{xy} signal in cuprates? This possibility—that Ce atoms are effective skew scatterers of phonons in cuprates—should be tested deliberately in future work. Note that κ_{xx} does decrease with increasing Ce content (Fig. 2), as observed in a prior study [32]. (The fact that κ_{xx} is larger at $x = 0.11$ than at $x = 0.04$ is presumably due to a lower level of other disorder in the former.)

Our study of the effect of annealing revealed that excess oxygen atoms on apical locations in the lattice scatter phonons (decrease κ_{xx}) and enhance the degree of chirality (increase $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$)—at least at $x = 0.04$ (Fig. 8). This points to another potential mechanism for skew scattering of phonons that would be worth investigating theoretically. It has been proposed that charged defects in ionic crystals can produce a skew scattering of phonons and thus yield a thermal Hall effect in such insulators [15]. However, this particular mechanism—associated with a local charge—seems unlikely

for NCCO since the degree of chirality remains large even in the metallic regime where conduction electrons would surely screen any local charge.

Of course, there are other impurities and defects in NCCO and PCCO beyond Ce ions and apical oxygens. The question is what types of defects, in what environment, will produce the necessary skew scattering. This is being explored theoretically (e.g., Refs. [14,16,17]) and empirically (e.g., Ref. [10]), as a growing number of insulators are found to exhibit a sizable phonon thermal Hall effect. Now because defects and impurities in these various materials must be widely different, there seems to be something rather general about the skew scattering of phonons in a magnetic field that needs to be understood. (This is of course not universal, since there are insulators that have $\kappa_{xy} = 0$, like $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [33] and LiF [3], for example.)

We propose that the mechanism of phonon chirality might involve the combination of local defects and local spins or short-range magnetic correlations. The defects would locally distort the spin environment and generate a local spin chirality that would result in skew scattering of phonons when a field is applied. This would imply that nonmagnetic insulators would not have a phonon Hall effect. (An immediate counterexample is SrTiO_3 , and so for this particular quantum paraelectric material, another mechanism would need to be invoked, presumably involving high electric polarizability and structural domain boundaries.)

C. Electron-doped vs hole-doped cuprates

It is instructive to compare electron-doped cuprates with hole-doped cuprates. Both exhibit a negative phonon thermal Hall effect, which is independent of whether the sample is inside or outside the regime of long-range AF order. The temperature dependence of κ_{xy} is very similar in the two families of cuprates, as illustrated in Fig. 9.

There are two important differences. First, a quantitative difference: The magnitude of $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ is significantly larger in electron-doped cuprates, by a factor of 4 or so (Table I). We see three possible ingredients that may be relevant. Electron-doped cuprates contain Ce atoms, which may act as skew scatterers. Also, they do not have apical oxygens in their pristine structure, so impurity atoms in those locations—present even in annealed samples—act as scattering centers, which, as argued above, appear to increase the degree of phonon chirality. Finally, AF is more pronounced in electron-doped cuprates in the sense that the phase of long-range AF order extends to much higher doping, up to $x \simeq 0.13$ in NCCO vs $p \simeq 0.02$ in LSCO, and short-range AF correlations in NCCO persist beyond that limit, up to $x = 0.17$ [22]. We suggest that the role of such AF correlations in causing phonon chirality is a promising avenue of investigation. In summary, a quantitative comparison between electron-doped and hole-doped cuprates points to three possible factors to account for the stronger chirality in the former: Ce impurities, excess apical oxygens, and stronger AF correlations.

Note that another difference between electron-doped and hole-doped cuprates is the field dependence of κ_{xx} and κ_{xy} , shown for NCCO in Fig. 4. In NCCO at $x = 0.04$ and also at other dopings, the field dependence of κ_{xx} is much stronger

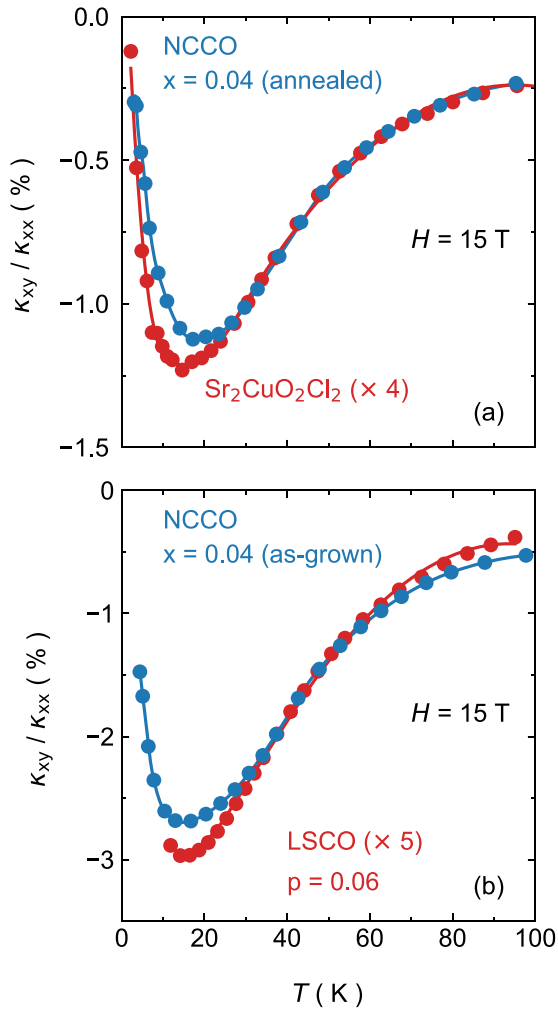


FIG. 9. (a) Comparison of the ratio κ_{xy}/κ_{xx} for NCCO $x = 0.04$ (annealed, blue; this work) and the cuprate Mott insulator $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (red [12]) in a magnetic field $H = 15$ T. The data for $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ are multiplied by a factor 4. (b) Similar comparison between NCCO $x = 0.04$ (as grown, blue; this work) and the hole-doped cuprate LSCO with doping $p = 0.06$ (red [11]). The data for LSCO are multiplied by a factor 5. Lines are a guide to the eye.

than in hole-doped cuprates [11]. The field suppresses κ_{xx} , suggesting a field-induced enhancement of phonon scattering. This contrasts with the weak dependence seen in hole-doped cuprates and the slight increase of κ_{xx} vs H seen in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ [12]. As for κ_{xy} , all cuprates show the same qualitative behavior: κ_{xy} is linear in H at high temperature and sublinear at low temperature. However, this sublinearity is particularly strong in Nd_2CuO_4 [12] and electron-doped cuprates. These effects may guide theoretical developments.

The second important difference is qualitative. In NCCO, a sizable negative κ_{xy} signal persists up to the highest doping ($x = 0.17$), but this is not the case in the hole-doped materials Nd-LSCO and Eu-LSCO; at a doping $p = 0.24$, just above the pseudogap critical point at $p^* = 0.23$ [34,35], there is no detectable phonon thermal Hall effect [11]. In other words, phonons cease to be chiral outside the pseudogap phase—a negative phonon κ_{xy} signal is only present in these materials when $p < p^*$ [11]. We infer that some intrinsic property of the

pseudogap phase, also present in the Mott insulating state (at $p = 0$), is needed to confer chirality to phonons. It remains to be seen whether the phonon thermal Hall effect in electron-doped cuprates would also disappear at dopings above $x = 0.17$ were single crystals available for measurements at such high dopings.

Considering all aspects of this discussion, we are led to propose that the mechanism of phonon chirality in cuprates, responsible for the phonon thermal Hall effect in both hole-doped and electron-doped materials, relies on the combination of scattering by defects and short-range AF correlations. In other words, the scattering of phonons by defects becomes skew scattering (in a field) when there are local spins at or near the defect location. This would imply that short-range AF correlations are present in the pseudogap phase of hole-doped cuprates but absent (or weak) outside, as indeed found in recent experimental studies of LSCO [36]. This picture is also consistent with numerical solutions of the Hubbard model that find a pseudogap phase characterized by short-range AF correlations up to a critical doping p^* [37].

V. SUMMARY

We have measured the thermal conductivity κ_{xx} and the thermal Hall conductivity κ_{xy} of the electron-doped cuprates NCCO and PCCO across their phase diagram. We observe a large negative thermal Hall conductivity over the whole doping range from $x = 0$ in the Mott insulating state up to at least $x = 0.17$ in the metallic state. We show that this negative signal is carried by phonons.

We find that the degree of chirality, measured by the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, is enhanced by the addition of Ce to Nd_2CuO_4 and by having excess oxygen atoms at apical locations of the NCCO lattice. Both of these defects therefore appear to be effective skew scatterers.

In comparison with hole-doped cuprates, electron-doped cuprates have a significantly larger ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, perhaps because neither of the two skew scattering processes just mentioned are present in the former. The fact that a sizable phonon κ_{xy} signal persists up to the highest measured doping in electron-doped NCCO ($x = 0.17$) but vanishes above the critical doping p^* in hole-doped Nd-LSCO points to an intrinsic property of the pseudogap phase in the latter, only present below p^* . We suggest that this property could be short-range AF correlations.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank L. Balents, M. Dion, P. Fournier, C. Gauvin-Ndiaye, S. A. Kivelson, S. Sachdev, and A.-M. S. Tremblay for fruitful discussions. We thank S. Fortier for his assistance with the experiments. L.T. acknowledges support from the Canadian Institute for Advanced Research (CIFAR) as a Fellow and funding from the Institut Quantique, the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (Grant No. PIN:123817), the Fonds de Recherche du Québec–Nature et Technologies, the Canada Foundation for Innovation, and a Canada Research Chair. This research was undertaken thanks in part to funding from the Canada First Research

Excellence Fund. Z.-X.S. acknowledges the support of the U.S. Department of Energy, Office of Science, Office of Basic Energy Sciences, Division of Material Sciences and

Engineering, under contract DE-AC02-76SF00515. R.L.G acknowledges the support of the National Science Foundation under award DMR 2002658.

-
- [1] H. Katsura, N. Nagaosa, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 066403 (2010).
- [2] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Science* **329**, 297 (2010).
- [3] Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, S. Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome *et al.*, *Nature (London)* **559**, 227 (2018).
- [4] C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 155901 (2005).
- [5] A. V. Inyushkin and A. N. Taldenkov, *JETP Lett.* **86**, 379 (2007).
- [6] M. Mori, A. Spencer-Smith, O. P. Sushkov, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265901 (2014).
- [7] T. Ideue, T. Kurumaji, S. Ishiwata, and Y. Tokura, *Nat. Mater.* **16**, 797 (2017).
- [8] X. Li, B. Fauqué, Z. Zhu, and K. Behnia, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 105901 (2020).
- [9] J.-Y. Chen, S. A. Kivelson, and X.-Q. Sun, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 167601 (2020).
- [10] L. Chen, M.-E. Boulanger, Z.-C. Wang, F. Tafti, and L. Taillefer, *arXiv:2110.13277* (2021).
- [11] G. Grissonnanche, A. Legros, S. Badoux, E. Lefrançois, M. L. V. Zatkan, F. Laliberté, A. Gourgout, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama *et al.*, *Nature (London)* **571**, 376 (2019).
- [12] M.-E. Boulanger, G. Grissonnanche, S. Badoux, A. Allaire, E. Lefrançois, A. Legros, A. Gourgout, M. Dion, C. H. Wang, X. H. Chen *et al.*, *Nat. Commun.* **11**, 5325 (2020).
- [13] G. Grissonnanche, S. Thériault, A. Gourgout, M.-E. Boulanger, E. Lefrançois, A. Ataei, F. Laliberté, M. Dion, J.-S. Zhou, S. Pyon *et al.*, *Nat. Phys.* **16**, 1108 (2020).
- [14] H. Guo and S. Sachdev, *Phys. Rev. B* **103**, 205115 (2021).
- [15] B. Flebus and A. H. MacDonald, *arXiv:2106.13889* (2021).
- [16] X.-Q. Sun, J.-Y. Chen, and S. A. Kivelson, *arXiv:2109.12117* (2021).
- [17] H. Guo, D. G. Joshi, and S. Sachdev, *arXiv:2201.11681* (2022).
- [18] M. Ye, L. Savary, and L. Balents, *arXiv:2103.04223* (2021).
- [19] C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **102**, 075113 (2020).
- [20] C. E. Matt, C. G. Fatuzzo, Y. Sassa, M. Månsson, S. Fatale, V. Bitetta, X. Shi, S. Pailhès, M. H. Berntsen, T. Kurosawa, M. Oda, N. Momono, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, J. Q. Yan, J. S. Zhou, J. B. Goodenough, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi *et al.*, *Phys. Rev. B* **92**, 134524 (2015).
- [21] N. P. Armitage, P. Fournier, and R. L. Greene, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2421 (2010).
- [22] E. M. Motoyama, G. Yu, I. M. Vishik, O. P. Vajk, P. K. Mang, and M. Greven, *Nature (London)* **445**, 186 (2007).
- [23] F. F. Tafti, F. Laliberté, M. Dion, J. Gaudet, P. Fournier, and L. Taillefer, *Phys. Rev. B* **90**, 024519 (2014).
- [24] J. Peng, Z. Li, and R. Greene, *Physica C* **177**, 79 (1991).
- [25] P. Richard, G. Riou, I. Hetel, S. Jandl, M. Poirier, and P. Fournier, *Phys. Rev. B* **70**, 064513 (2004).
- [26] N. P. Armitage, F. Ronning, D. H. Lu, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, D. L. Feng, H. Eisaki, Z.-X. Shen, P. K. Mang, N. Kaneko, M. Greven, Y. Onose, Y. Taguchi, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 257001 (2002).
- [27] G. Grissonnanche, F. Laliberté, S. Dufour-Beauséjour, M. Matusiak, S. Badoux, F. F. Tafti, B. Michon, A. Riopel, O. Cyr-Choinière, J. C. Baglo, B. J. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Kramer, D. LeBoeuf, D. Graf, N. Doiron-Leyraud, and L. Taillefer, *Phys. Rev. B* **93**, 064513 (2016).
- [28] S. Charpentier, G. Roberge, S. Godin-Proulx, X. Béchamp-Laganière, K. D. Truong, P. Fournier, and P. Rauwel, *Phys. Rev. B* **81**, 104509 (2010).
- [29] P. G. Radaelli, J. D. Jorgensen, A. J. Schultz, J. L. Peng, and R. L. Greene, *Phys. Rev. B* **49**, 15322 (1994).
- [30] H. J. Kang, P. Dai, B. J. Campbell, P. J. Chupas, S. Rosenkranz, P. L. Lee, Q. Huang, S. Li, S. Komiya, and Y. Ando, *Nat. Mater.* **6**, 224 (2007).
- [31] G. Riou, P. Richard, S. Jandl, M. Poirier, P. Fournier, V. Nekvasil, S. N. Barilo, and L. A. Kurnevich, *Phys. Rev. B* **69**, 024511 (2004).
- [32] J. L. Cohn, M. S. Osofsky, J. L. Peng, Z. Y. Li, and R. L. Greene, *Phys. Rev. B* **46**, 12053 (1992).
- [33] M. Hirschberger, J. W. Krizan, R. J. Cava, and N. P. Ong, *Science* **348**, 106 (2015).
- [34] R. Daou, N. Doiron-Leyraud, D. LeBoeuf, S. Y. Li, F. Laliberté, O. Cyr-Choinière, Y. J. Jo, L. Balicas, J.-Q. Yan, J.-S. Zhou *et al.*, *Nat. Phys.* **5**, 31 (2009).
- [35] C. Collignon, S. Badoux, S. A. A. Afshar, B. Michon, F. Laliberté, O. Cyr-Choinière, J.-S. Zhou, S. Licciardello, S. Wiedmann, N. Doiron-Leyraud, and L. Taillefer, *Phys. Rev. B* **95**, 224517 (2017).
- [36] M. Frachet, I. Vinograd, R. Zhou, S. Benhabib, S. Wu, H. Mayaffre, S. Krämer, S. K. Ramakrishna, A. P. Reyes, J. Debray *et al.*, *Nat. Phys.* **16**, 1064 (2020).
- [37] G. Sordi, K. Haule, and A. M. S. Tremblay, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 226402 (2010).

Chapitre 6

Effet Hall thermique dans Cu_3TeO_6 : un isolant antiferromagnétique

6.1 Mise en contexte

Les dernières études d'effet Hall thermique dans les cuprates [2, 3, 119, 127] ont mis la lumière sur une nouvelle question fondamentale du domaine des matériaux quantiques. Quel est le mécanisme responsable de la chiralité des phonons sous champ magnétique ? En effet, il semble que cette question soit beaucoup plus générale que dans les cuprates, avec les récentes découvertes d'un effet Hall thermique des phonons dans $\alpha\text{-RuCl}_3$ [53] et maintenant dans l'isolant antiferromagnétique Cu_3TeO_6 .

Le but initial de l'étude de Cu_3TeO_6 était de faire une mesure de l'effet Hall thermique simplement pour vérifier s'il y avait un signal κ_{xy} . En effet, cet isolant antiferromagnétique cubique ne présente pas certaines signatures caractéristiques particulières comme une ferroélectricité, des impuretés de terres rares ou encore des domaines structuraux retrouvés dans des études précédentes [106, 105, 20]. Ainsi, naïvement, Cu_3TeO_6 aurait pu constituer un candidat où l'effet Hall thermique était absent. Étonnamment, ce n'est pas le cas et le signal transverse observé est parmi les plus grands mesurés à ce jour. Nous attribuons encore une fois ce signal aux phonons. Bien que des bandes de magnons soient présentes dans Cu_3TeO_6 [118, 128], ces dernières sont de très hautes énergies (17.75 meV, soit ~ 200 K) et n'entrent pas en compte dans la conductivité thermique. Aux températures de l'expérience,

soit entre 3 et 100 K, la conductivité thermique longitudinale est dominée par les phonons acoustiques [129], tout comme la conductivité thermique de Hall.

Les mécanismes fondamentaux responsables de l'effet Hall thermique des phonons demeurent irrésolus, mais cette découverte met l'accent sur l'aspect beaucoup plus général de l'effet Hall thermique dans les isolants.

6.2 Article

Cet article présente les résultats de conductivité thermique longitudinale et transverse dans Cu_3TeO_6 . Lu Chen et moi-même sommes les investigatrices principales de ce projet. J'ai pris part à la préparation des échantillons, la prise et l'analyse des données expérimentales ainsi qu'à la rédaction de l'article. Les échantillons nous ont été fournis par Zhi-Cheng Wang et Fazel Tafti. Louis Taillefer a supervisé le projet et rédigé l'article avec nous.

Les données présentées dans l'article font état d'un seul échantillon, mais deux ont été mesurés. Les mesures de κ_{xy} dans ce matériau nous ont permis de vérifier que l'ordre antiferromagnétique à longue portée n'était pas responsable de la chiralité des phonons. Effectivement, le fait que $T_N = 63$ K nous a donné l'unique occasion de mesurer précisément κ_{xy} de part et d'autre de la transition magnétique. Cela constitue une étape très importante du projet.

Cet article a été soumis en octobre 2021 au journal *Physical Review Letter*.

Titre : Large Phonon Thermal Hall Conductivity in a Simple Antiferromagnetic Insulator

Auteurs et autrices : Lu Chen, Marie-Eve Boulanger, Zhi-Cheng Wang, Fazel Tafti et Louis Taillefer

Référence : [Arxiv : 2110.13277](https://arxiv.org/abs/2110.13277) (2021)

Large Phonon Thermal Hall Conductivity in a Simple Antiferromagnetic Insulator

Lu Chen^{*},¹ Marie-Eve Boulanger^{*},¹ Zhi-Cheng Wang,² Fazel Tafti,² and Louis Taillefer^{1,3}

¹*Institut quantique, Département de physique & RQMP,
Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, Canada*

²*Department of Physics, Boston College, Boston, MA, USA*

³*Canadian Institute for Advanced Research (CIFAR), Toronto, Ontario, Canada*

(Dated: October 27, 2021)

Phonons are known to generate a thermal Hall effect in certain insulators, including oxides with rare-earth impurities, quantum paraelectrics, multiferroic materials and cuprate Mott insulators. In each case, a special feature of the material is presumed relevant for the underlying mechanism that confers chirality to phonons in a magnetic field. The question is whether a phonon Hall effect is an unusual occurrence – linked to special characteristics such as skew scattering off rare-earth impurities, structural domains, ferroelectricity, ferromagnetism – or a much more common property of insulators than hitherto believed. To help answer this question, we have turned to a simple insulator, with none of the previously encountered special features: the cubic antiferromagnet Cu_3TeO_6 . We find that it has the largest thermal Hall conductivity κ_{xy} of any insulator so far. We show that this record-high κ_{xy} signal is due to phonons and it does not require the presence of magnetic order, as it persists above the ordering temperature. We conclude that the phonon Hall effect is likely to be a fairly common property of solids.

PACS numbers:

* These authors contributed equally to this work.

The thermal Hall effect is the thermal analog of the electrical Hall effect. Instead of a transverse voltage induced by a perpendicular magnetic field in the presence of an electric current, a transverse temperature difference is induced in the presence of a heat current. The thermal Hall effect is a consequence of chirality – a handedness that heat carriers have in a magnetic field. Electrons acquire chirality through the Lorentz force acting on charge carriers. However, understanding how chirality arises for electrically neutral particles – like phonons, magnons or more exotic excitations – relies on new and mostly unknown mechanisms.

The phonon thermal Hall effect was first observed in the insulator $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ [1, 2], whose small thermal Hall conductivity κ_{xy} was attributed to a special skew scattering of phonons by superstoichiometric Tb impurities [3]. Later on, a much larger κ_{xy} was measured in the multiferroic material $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, a ferrimagnetic insulator, where it was attributed to phonons in the presence of strong spin-lattice coupling [4]. More recently, an even larger κ_{xy} was reported in two other families of insulators: the cuprate Mott insulators [5–7], such as La_2CuO_4 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, and the quantum paraelectric SrTiO_3 [8]. There is little doubt that phonons are the bearers of chirality in both families, but the underlying mechanisms for the Hall effect remain unknown.

The origin of phonon chirality is an open question. There are two classes of scenarios: intrinsic scenarios based on the coupling of phonons to their environment and extrinsic scenarios based on the skew scattering of phonons by impurities or defects. For SrTiO_3 , the intrinsic effect is the flexoelectric coupling of phonons to their nearly ferroelectric environment, and the extrinsic

factor is the skew scattering of phonons from structural domains [9]. For cuprates, the intrinsic effect is the coupling of phonons to magnons [10], spinons [11], or a special magnetoelectric order parameter [12], and the extrinsic factors include the scattering of phonons by oxygen vacancies [13], by pointlike impurities in the presence of a Hall viscosity due to a coupling of phonons to their electronic environment [14], and by resonant skew scatterers [15].

In this Letter, we provide new insights on the origin of phonon chirality by turning to a completely different, and simple, material: Cu_3TeO_6 . This is an insulator with a cubic structure, which retains its structure down to low temperature, and therefore does not harbour structural domains. It also does not contain rare-earth impurities and is neither a Mott insulator nor a multiferroic or nearly ferroelectric material. It develops three-dimensional long-range collinear antiferromagnetic order below the Néel temperature $T_N = 63$ K [16, 17].

We report the largest thermal Hall conductivity ever observed in an insulator yet, with $\kappa_{xy} \simeq 1$ W / K m at $T = 20$ K and $H = 15$ T. This is 50 times larger than in the cuprate $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, for example. Yet the degree of chirality, defined as the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$, where κ_{xx} is the longitudinal thermal conductivity, is the same for these two materials. This is because the phonon conductivity κ_{xx} is 50 times smaller in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, due to a much stronger scattering by impurities and defects. The fact that the ratio $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ is the same in these two very different materials, with different structures, defects and impurities, shows that phonon chirality is a much more general phenomenon than hitherto perceived. Because $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}|$ goes smoothly through T_N , we infer that antiferromagnetic order *per se* is not required, but we speculate that a coupling of phonons to the spin degrees of

Material	κ_{xy} [mW/Km]	κ_{xx} [W/Km][10 ⁻³]	κ_{xy}/κ_{xx}	T, H [K], [T]
Cu ₃ TeO ₆	- 1000	330	- 3.0	20, 15
Fe ₂ Mo ₃ O ₈ [4]	12	2.5	4.8	65, 14
Tb ₂ Ti ₂ O ₇ [19]	1.2	0.27	4.4	15, 12
Y ₂ Ti ₂ O ₇ [19, 20]	0	18	0	15, 8
La ₂ CuO ₄ [5]	- 38	12	- 3.2	20, 15
Sr ₂ CuO ₂ Cl ₂ [6]	- 21	7	- 3.0	20, 15
Nd ₂ CuO ₄ [6]	- 200	56	- 3.6	20, 15
SrTiO ₃ [8]	- 80	36	- 2.2	20, 12
KTaO ₃ [8]	2	32	0.06	30, 12
RuCl ₃ [21]	8	15.5	0.5	20, 15

TABLE I: Thermal Hall conductivity in various insulators. The values of κ_{xy} and κ_{xx} are taken at the specified temperature T and field H . Their ratio gives the degree of chirality.

freedom may nevertheless play a role.

Methods.— Single crystals of Cu₃TeO₆ were grown from CuO powder and TeO₂ flux. The starting materials were mixed in a molar ratio of 3:5 and heated to 870°C at 5°C/min, held for 24 hours, cooled to 700°C at 1.5°C/h, and cooled to room temperature at 3°C/min. Crystals of approximate dimensions 4 × 4 × 1 mm³ were harvested after washing the solvent with sodium hydroxide and deionized water. Our sample was cut and polished in the shape of a rectangular platelet, with the following dimensions (length between contacts × width × thickness) : 2.2 × 1.61 × 0.073 mm. Cu₃TeO₆ has a centro-symmetric cubic crystal structure [16]. It is not known to undergo any structural transition. The normal to each of the three faces of the sample is along each of the three equivalent high-symmetry (100) direction of the cubic lattice. Contacts were made using silver wires and silver paint. The thermal conductivity κ_{xx} and thermal Hall conductivity κ_{xy} were measured as described in refs. [5, 6, 18], by applying a heat current along the x axis (longest sample dimension) and a magnetic field along the z axis (normal to the largest face), and measuring the longitudinal (ΔT_x) and transverse (ΔT_y) temperature differences with type-E thermocouples.

Thermal conductivity and thermal Hall conductivity.— In Fig. 1(a), the thermal conductivity κ_{xx} , measured in a field of 15 T, is plotted as a function of temperature. The field dependence of κ_{xx} is weak, being at most 6% (at $T \simeq 20$ K) and negligible for $T > 30$ K (Fig. 1(a)). Our κ_{xx} data are consistent with prior zero-field data [22]. These authors have argued that although magnons below T_N can in principle carry heat, phonons dominate the thermal conductivity of Cu₃TeO₆, which is certainly the case above T_N . $\kappa_{xx}(T)$ shows a peak typical of phonons in insulators, located here at $T \simeq 20$ K (Fig. 1(a)).

In Fig. 2(a), we zoom on the data near T_N . Above T_N , κ_{xx} is flat, evidence that phonons are scattered by spin excitations associated with the proximate onset of antiferromagnetic order [22]. Upon cooling below T_N , κ_{xx} suddenly rises, presumably because that scattering

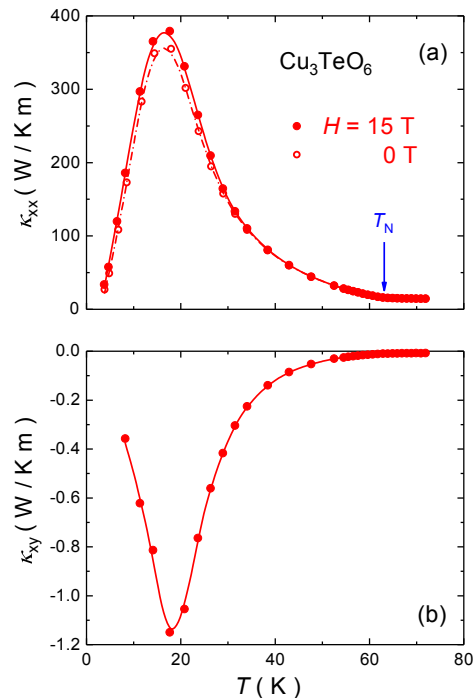


FIG. 1: (a) Thermal conductivity κ_{xx} of Cu₃TeO₆ as a function of temperature, in zero field (open circles) and in a magnetic field $H = 15$ T (full circles). The arrow marks the onset of antiferromagnetic order, at $T_N \simeq 63$ K. (b) Corresponding thermal Hall conductivity κ_{xy} (at $H = 15$ T). Lines are a guide to the eye. Both $\kappa_{xx}(T)$ and $\kappa_{xy}(T)$ peak at $T \simeq 17$ K, following a large increase relative to their values at T_N , by a factor ~ 25 and ~ 150 , respectively. The peak value, $|\kappa_{xy}| \simeq 1.0$ W/Km, is the largest thermal Hall conductivity reported to date in an insulator.

is weakened when order sets in.

In Fig. 1(b), the thermal Hall conductivity κ_{xy} , measured on the same sample in the same conditions, is displayed as a function of temperature. There is a large negative Hall effect. We see that $\kappa_{xy}(T)$ mirrors the evolution of $\kappa_{xx}(T)$, both peaking at the same temperature. This immediately suggests that κ_{xy} is carried predominantly by phonons, as is κ_{xx} . At its peak, $|\kappa_{xy}| \simeq 1.0$ W/Km, the largest value of $|\kappa_{xy}|$ reported so far in any insulator (Table I).

In Fig. 2(a), we see that $\kappa_{xy}(T)$ evolves in tandem with $\kappa_{xx}(T)$ across T_N : it is almost flat above T_N and rises below T_N . This parallel evolution is further evidence that κ_{xy} is carried by phonons. It is instructive to plot the ratio κ_{xy}/κ_{xx} vs T , as done in Fig. 2(b), a quantity that may be viewed as the *degree of chirality* – the extent to which phonons respond asymmetrically to a magnetic field. We see that the ratio goes smoothly through T_N , unaltered by the onset of antiferromagnetic order. This shows that long-range order *per se* does not play a key role in conferring chirality to phonons. Note that despite the record-high amplitude of $|\kappa_{xy}|$ in Cu₃TeO₆, the ratio κ_{xy}/κ_{xx} is similar to that found in several other insulators

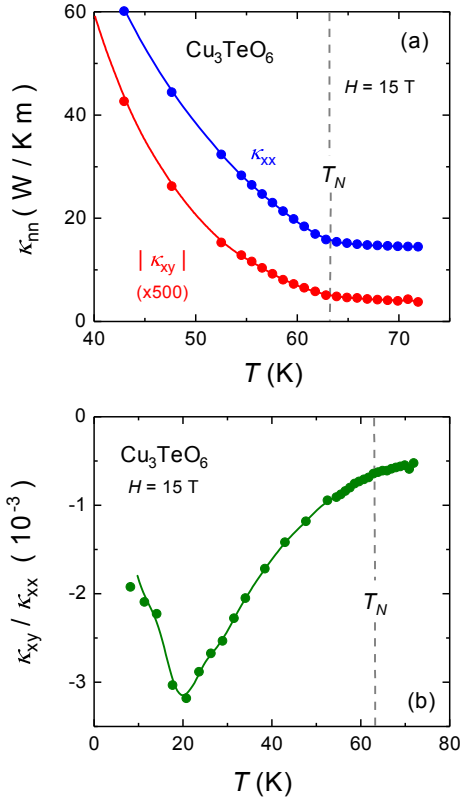


FIG. 2: (a) Comparison of $\kappa_{xx}(T)$ (blue) and $\kappa_{xy}(T)$ (red; data multiplied by a factor 500) near the antiferromagnetic transition at T_N (dashed line). Both curves are seen to rise upon cooling below T_N . (b) Ratio of $\kappa_{xy}(T)$ over $\kappa_{xx}(T)$, vs T , at $H = 15$ T. The magnitude of this ratio increases upon cooling from $T = 70$ K to $T = 20$ K. The fact that it goes smoothly through T_N (dashed line) shows that the onset of long-range magnetic order does not directly affect the thermal Hall effect. Although κ_{xy} in Cu_3TeO_6 is exceptionally large, the maximal value of the ratio, $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| \simeq 3 \times 10^{-3}$, is typical of various insulators (Table I). Lines are a guide to the eye.

(Table I), as we discuss below.

Discussion.— In the antiferromagnetic insulator Cu_3TeO_6 , two types of neutral excitations can be expected to generate a thermal Hall effect: magnons and phonons. We can rule out magnons, based on our empirical evidence and for theoretical reasons. Empirically, the fact that $\kappa_{xy}(T)$ mirrors the temperature evolution of the phonon-dominated $\kappa_{xx}(T)$ so well (Figs. 1 and 2(a)) argues against a large contribution to κ_{xy} from magnons. Moreover, the fact that the degree of chirality, measured by the ratio κ_{xy}/κ_{xx} , goes through T_N seamlessly (Fig. 2(b)), shows that long-range order, and therefore well-defined magnons, play little role in κ_{xy} . Theoretically, it has been shown that magnons can produce a thermal Hall effect in antiferromagnetic insulators, but only under certain conditions [23]. In a collinear antiferromagnet, a condition is the presence of spin canting due to the Dzyaloshinskii-Moriya (DM) interaction. Now in Cu_3TeO_6 , theoretical calculations and inelastic neutron

scattering experiments show that the collinear antiferromagnetic ground state can be well understood by considering the antiferromagnetic exchange interactions and a global single-ion anisotropy term without introducing any DM interaction [24]. Neutron powder diffraction results indicate that the possible non-collinear canting of spins is no more than 6° [16]. Under such conditions, the κ_{xy} signal expected from magnons is estimated to be much smaller than the signal reported in La_2CuO_4 [11], which is in turn much smaller than what we observe in Cu_3TeO_6 . So, the record-high thermal Hall conductivity in Cu_3TeO_6 is not generated by magnons.

The only type of heat carriers left that could generate a thermal Hall effect in Cu_3TeO_6 are phonons. Two empirical observations confirm that it is indeed the phonons that generate the huge κ_{xy} in Cu_3TeO_6 . First, $\kappa_{xy}(T)$ and $\kappa_{xx}(T)$ evolve in parallel across the antiferromagnetic transition, both increasing in tandem upon cooling below $T_N \simeq 63$ K (Fig. 2(a)). Second, while the degree of chirality in Cu_3TeO_6 is not exceptionally high, what is exceptionally high amongst the insulators for which a κ_{xy} signal has been reported is the phonon-dominated κ_{xx} (Table I). And this is why κ_{xy} is so large – because phonons conduct better. So, the record-high thermal Hall conductivity in Cu_3TeO_6 is a property of phonons.

The remaining question is: what makes phonons chiral in Cu_3TeO_6 ? Two features of our data argue against impurity scattering playing a key role, and hence favour an intrinsic scenario. The first is the major change in the dominant scattering process with temperature. At $T \simeq 20$ K, where scattering is dominated by impurities, phonon conduction peaks at $\kappa_{xx} \simeq 350$ W/Km (Fig. 1(a)), a high value that reflects the high quality of our single crystal. By $T \simeq 70$ K, where scattering is dominated by spin fluctuations and other phonons, κ_{xx} has dropped by a factor 25 (Fig. 1(a) and Fig. 2(a)). Yet despite this complete change of regime, the chirality does not change much between 20 K and 70 K (Fig. 2(b)). The ratio κ_{xy}/κ_{xx} does decrease (by a factor 6), but such a decrease is a general property of phonon chirality, unrelated to a change in the dominant scattering process. This can be seen by comparing to the cuprate Mott insulator $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ [6], an antiferromagnet with $T_N = 250$ K.

In Fig. 3(a), we see that κ_{xx} in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ is essentially constant between 20 K and 70 K, showing that impurity scattering in that material remains the dominant scattering. Yet κ_{xy} drops by a factor 5-6 (Fig. 3(b)), so that κ_{xy}/κ_{xx} drops by the same factor as in Cu_3TeO_6 (Fig. 3(c)), which shows that such a decrease with temperature is a generic property of chiral phonons and not the result of a change in the scattering mechanism. This comparison therefore argues for an intrinsic mechanism in these two materials.

A second argument against an extrinsic scenario is the simple fact that these two materials have the same degree of chirality even though they have very different levels of impurity scattering. In particular at $T = 20$ K, where impurity scattering dominates, κ_{xy}/κ_{xx} has the same value

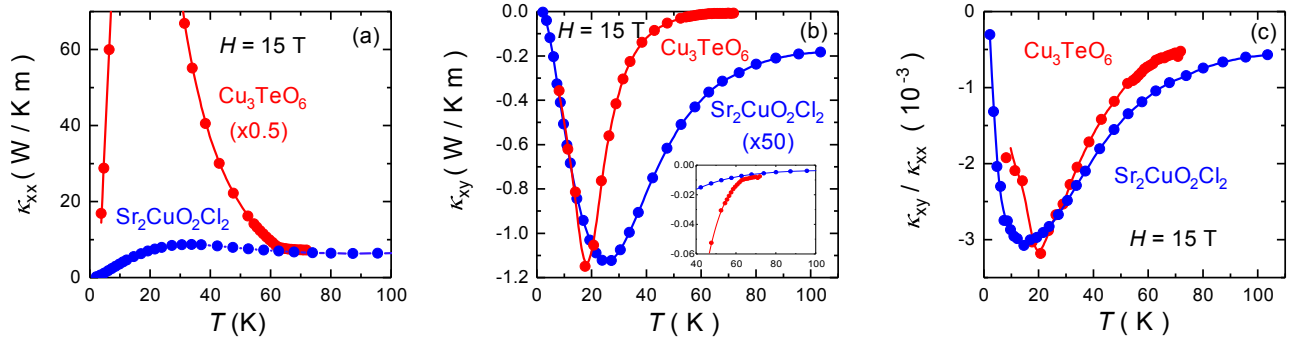


FIG. 3: Comparison of two antiferromagnetic insulators, whose thermal transport was measured in a magnetic field $H = 15$ T: Cu_3TeO_6 (red; this work) and the cuprate Mott insulator $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ (blue; [6]). (a) κ_{xx} vs T ; the data for Cu_3TeO_6 are multiplied by a factor 0.5. (b) κ_{xy} vs T ; the data for $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ are multiplied by a factor 50. Inset: zoom between 40 K and 100 K, with no multiplicative factor. (c) κ_{xy}/κ_{xx} vs T ; no multiplicative factor. All lines are a guide to the eye.

(Fig. 3(c)) even though impurity scattering is two orders of magnitude stronger in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$. Indeed, the phonon conductivity κ_{xx} is lower in $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ by a factor 50 (Table I). In fact, more generally, the degree of chirality is also the same in other insulators, with $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| = 3 - 5 \times 10^{-3}$ at $H = 15$ T in $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ [4] and $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [19], even though κ_{xx} is two and three orders of magnitude smaller, respectively (Table I).

It was recently proposed theoretically that in oxide insulators the skew scattering of phonons by charged impurities like oxygen vacancies produces a thermal Hall effect [13]. However, experimental data suggest that this mechanism yields a rather small κ_{xy} signal. Indeed, in the isostructural pyrochlore oxides $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ and $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, with nominally similar levels of oxygen vacancies, one finds dramatically different Hall responses (Table I), with $\kappa_{xy} = 0$ in $\text{Y}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [19]. A huge difference is also found in the closely related oxides SrTiO_3 and KTaO_3 , where the latter has a very small κ_{xy} signal (Table I) [8]. These two pairwise comparisons suggest that oxygen vacancies are not responsible for the large κ_{xy} signals seen in oxide insulators. (Superstoichiometric rare-earth ions and structural domains could play an extrinsic role in $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ and SrTiO_3 , respectively, but neither of these mechanisms applies to Cu_3TeO_6 or $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$.)

We conclude that the chirality of phonons detected in Cu_3TeO_6 and $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, and most likely several other insulators, comes from an intrinsic coupling to their environment. The question is what is that coupling? Why is it present in some materials and absent in others? This remains an open question, but we speculate that a promising avenue of investigation is the coupling of phonons to spins, for the simple empirical reason that we are unaware of any magnetic insulator where $\kappa_{xy} = 0$. Several authors have shown theoretically that a phonon thermal Hall effect can arise from such a coupling [10, 25–29]. The next step is to explain the large degree of chirality, with $|\kappa_{xy}/\kappa_{xx}| = 3 - 5 \times 10^{-3}$ (at $H = 15$ T).

Summary and outlook.— We have measured the thermal conductivity κ_{xx} and the thermal Hall conductivity

κ_{xy} of the antiferromagnetic insulator Cu_3TeO_6 . We report the largest value of $|\kappa_{xy}|$ ever observed in an insulator. We provide empirical and theoretical arguments for why κ_{xy} must be due to phonons, primarily. On the basis of a comparison with the cuprate material $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$, which exhibits the same ratio κ_{xy}/κ_{xx} , or degree of chirality, both in magnitude and in temperature dependence, even though its phonon conductivity is 50 times smaller, we conclude that the mechanism for phonon chirality is not primarily extrinsic, *i.e.* controlled by impurity or defect scattering. We infer that phonons become chiral by virtue of their intrinsic coupling to their environment. Although the nature of this coupling remains unclear, we propose that a likely possibility is spin-phonon coupling. Our findings suggest that a large phonon thermal Hall effect may be a common occurrence in magnetic insulators.

This puts two prior studies of the thermal Hall effect into perspective. First, it raises the question of whether the κ_{xy} signal measured in the Kitaev material $\alpha\text{-RuCl}_3$ [21], hitherto attributed entirely to Majorana fermions [30], may in part be due to phonons. Secondly, it raises the possibility that the phonon thermal Hall conductivity in cuprates that appears upon entering the pseudogap phase [5, 7], when the doping is reduced below the pseudogap critical point, may be the signature of antiferromagnetic correlations.

Acknowledgements.— L.T. acknowledges support from the Canadian Institute for Advanced Research (CIFAR) as a CIFAR Fellow and funding from the Institut Quantique, the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC; PIN:123817), the Fonds de Recherche du Québec – Nature et Technologies (FRQNT), the Canada Foundation for Innovation (CFI), and a Canada Research Chair. F.T. acknowledges support from the National Science Foundation under award No. DMR-1708929. This research was undertaken thanks in part to funding from the Canada First Research Excellence Fund.

-
- ¹ C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 155901 (2005).
- ² A. V. Inyushkin and A. N. Taldenkov, *JETP Lett.* **86**, 379 (2007).
- ³ M. Mori, A. Spencer-Smith, O. P. Sushkov, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 265901 (2014).
- ⁴ T. Ideue, T. Kurumaji, S. Ishiwata, and Y. Tokura, *Nature Materials* **16**, 797 (2017).
- ⁵ G. Grissonnanche, A. Legros, S. Badoux, E. Lefrançois, M. L. V. Zatkan, F. Laliberté, A. Gourgout, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, et al., *Nature* **571**, 376 (2019).
- ⁶ M.-E. Boulanger, G. Grissonnanche, S. Badoux, A. Allaire, E. Lefrançois, A. Legros, A. Gourgout, M. Dion, C. H. Wang, X. H. Chen, et al., *Nat. Commun* **11**, 5325 (2020).
- ⁷ G. Grissonnanche, S. Thériault, A. Gourgout, M.-E. Boulanger, E. Lefrançois, A. Ataei, F. Laliberté, M. Dion, J.-S. Zhou, S. Pyon, et al., *Nat. Phys.* **16**, 1108 (2020).
- ⁸ X. Li, B. Fauqué, Z. Zhu, and K. Behnia, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 105901 (2020).
- ⁹ J.-Y. Chen, S. A. Kivelson, and X.-Q. Sun, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 167601 (2020).
- ¹⁰ M. Ye, L. Savary, and L. Balents, arXiv:2103.04223 (2021).
- ¹¹ R. Samajdar, S. Chatterjee, S. Sachdev, and M. S. Scheurer, *Phys. Rev. B* **99**, 165126 (2019).
- ¹² C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **102**, 075113 (2020).
- ¹³ B. Flebus and A. H. MacDonald, arXiv:2106.13889 (2021).
- ¹⁴ H. Guo and S. Sachdev, *Phys. Rev. B* **103**, 205115 (2021).
- ¹⁵ X.-Q. Sun, J.-Y. Chen, and S. A. Kivelson, arXiv:2109.12117 (2021).
- ¹⁶ M. Herak, H. Berger, M. Prester, M. Miljak, I. Živković, O. Milat, D. Drobac, S. Popović, and O. Zaharko, *Journal of Physics: Condensed Matter* **17**, 7667 (2005).
- ¹⁷ M. Månsson, K. Prša, J. Sugiyama, D. Andreica, H. Luetkens, and H. Berger, *Physics Procedia* **30**, 142 (2012).
- ¹⁸ G. Grissonnanche, F. Laliberté, S. Dufour-Beauséjour, M. Matusiak, S. Badoux, F. F. Tafti, B. Michon, A. Ripopel, O. Cyr-Choinière, J. C. Baglo, et al., *Phys. Rev. B* **93**, 064513 (2016).
- ¹⁹ M. Hirschberger, J. W. Krizan, R. J. Cava, and N. P. Ong, *Science* **348**, 106 (2015).
- ²⁰ Q. J. Li, Z. Y. Zhao, C. Fan, F. B. Zhang, H. D. Zhou, X. Zhao, and X. F. Sun, *Phys. Rev. B* **87**, 214408 (2013).
- ²¹ Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimosawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, et al., *Phys. Rev. Lett.* **120**, 217205 (2018).
- ²² S. Bao, Z. Cai, W. Si, W. Wang, X. Wang, Y. Shangguan, Z. Ma, Z.-Y. Dong, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, et al., *Phys. Rev. B* **101**, 214419 (2020).
- ²³ H. Katsura, N. Nagaosa, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 066403 (2010).
- ²⁴ W. Yao, C. Li, L. Wang, S. Xue, Y. Dan, K. Iida, K. Kamazawa, K. Li, C. Fang, and Y. Li, *Nat. Phys.* **14**, 1011 (2018).
- ²⁵ L. Sheng, D. N. Sheng, and C. S. Ting, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 155901 (2006).
- ²⁶ Y. Kagan and L. A. Maksimov, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 145902 (2008).
- ²⁷ J.-S. Wang and L. Zhang, *Phys. Rev. B* **80**, 012301 (2009).
- ²⁸ L. Zhang, J. Ren, J.-S. Wang, and B. Li, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 225901 (2010).
- ²⁹ T. Qin, J. Zhou, and J. Shi, *Phys. Rev. B* **86**, 104305 (2012).
- ³⁰ Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, S. Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, et al., *Nature* **559**, 227 (2018).

Conclusion

Cette thèse, sous le thème de l'effet Hall thermique dans les matériaux quantiques, présente les résultats de recherche de trois publications.

La première étude, portant sur l'effet Hall thermique dans trois cuprates isolants de Mott, a confirmé que les phonons sont responsables du signal dans ces matériaux. Cette étude a aussi permis d'exclure trois des principaux mécanismes connus de la chiralité des phonons, soit un ordre magnétique chiral, des diffusions asymétriques des phonons sur des impuretés de terres rares et des diffusions sur des domaines structuraux.

Par la suite, une étude complète de l'effet Hall thermique dans les cuprates dopés en électrons a été réalisée. Le signal de l'effet Hall thermique est toujours présent, et négatif, de ce côté du diagramme de phase. Les mesures avec un courant de chaleur selon l'axe c ont permis de confirmer que les phonons sont responsables du signal. Cette étude suggère un lien entre l'effet Hall thermique des phonons et les fluctuations de spins antiferromagnétiques.

Finalement, la dernière étude présentée dans cette thèse porte sur un isolant antiferromagnétique cubique, Cu_3TeO_6 . Dans ce composé, il a été possible d'exclure l'ordre antiferromagnétique à longue portée comme mécanisme de l'effet Hall thermique. En effet, la comparaison entre les mesures de conductivité thermique transverse et longitudinale autour de T_N ne révèle aucune anomalie ou transition. Néanmoins, les fluctuations antiferromagnétiques semblent être un élément à investiguer plus en détail dans une étude future. L'étude comparative de ce composé isolant avec d'autres isolants, dont RuCl_3 , suggère que l'effet Hall thermique des phonons est d'autant plus grand que κ_{xx} est grand.

Cette thèse pose maintenant de nombreuses questions à la communauté scientifique. Quel est le mécanisme derrière l'effet Hall thermique des phonons dans les isolants ? Existe-t-il

des composés isolants dans lesquels le signal est nul ? Que nous révèle le signe (négatif ou positif) de l'effet Hall thermique ?

Il s'est avéré, tout au long de cette thèse, que tout un volet de la physique que nous croyions connu, soit les phonons, nous surprend encore !

Bibliographie

- [1] Hosho Katsura, Naoto Nagaosa, and Patrick A. Lee. Theory of the Thermal Hall Effect in Quantum Magnets. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :066403, 2010.
- [2] G. Grissonnanche, A. Legros, S. Badoux, E. Lefrançois, M. Lizaire V. Zatzko, F. Laliberté, A. Gourgout, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, S. Ono, and N. Doiron-Leyraud & L. Taillefer. Giant thermal Hall conductivity in the pseudogap phase of cuprate superconductors. *Nature*, 571 :376–380, 2019.
- [3] 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, and N. Doiron-Leyraud & L. Taillefer. Chiral phonons in the pseudogap phase of cuprates. *Nat. Phys.*, 16 :1108–1111, 2020.
- [4] J. G. Bednorz and K. A. Muller. Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 108 :189–193, 1986.
- [5] Neil W. Ashcroft et N. David Mermin. *Physique des solides*. EDP Sciences, Les Ulis (France), 2002.
- [6] Raghu Mahajan, Maissam Barkeshli, and Sean A. Hartnoll. Non-fermi liquids and the Wiedemann-Franz law. *Phys. Rev. B*, 88 :125107, 2013.
- [7] Charles Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, Paris, 8 édition edition, 2007.
- [8] John Singleton. *Band Theory and Electronic Properties of Solid*. Oxford University Press Inc., New York, 2009.

- [9] William Henry Toews. *An investigation of low energy quasiparticle excitations via thermal transport measurements*. PhD thesis, University of Waterloo, Waterloo, Ontario, Canada, 2017.
- [10] C. H. Stephan and B. W. Maxfield. Righi-Leduc Effect in Indium. *Phys. Rev. B*, 6 :2893–2900, 1972.
- [11] Y. Onose, Y. Shiomi, and Y. Tokura. Lorenz Number Determination of the Dissipationless Nature of the Anomalous Hall Effect in Itinerant Ferromagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :016601, 2008.
- [12] G. Grissonnanche, F. Laliberté, S. Dufour-Beauséjour, M. Matusiak, S. Badoux, F. F. Tafti, B. Michon, A. Riopel, O. Cyr-Choinière, J. C. Baglo, B. J. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Krämer, D. LeBoeuf, D. Graf, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Wiedemann-Franz law in the underdoped cuprate superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$. *Phys. Rev. B*, 93 :064513, 2016.
- [13] Y. Onose, N. P. Ong, and C. Petrovic. The lorenz number in CeCoIn_5 inferred from the thermal and charge Hall currents. *Europhysics Letters (EPL)*, 80(3) :37005, 2007.
- [14] Steven H. Simon. *The Oxford Solid State Basic*. Oxford University Press Inc., New York, 2009.
- [15] S. Y. Li, J.-B. Bonnemaïson, A. Payeur, P. Fournier, C. H. Wang, X. H. Chen, and Louis Taillefer. Low-temperature phonon thermal conductivity of single-crystalline Nd_2CuO_4 : Effects of sample size and surface roughness. *Phys. Rev. B*, 77 :134501, 2008.
- [16] Philip D. Thacher. Effect of Boundaries and Isotopes on the Thermal Conductivity of LiF . *Phys. Rev.*, 156 :975–988, 1967.
- [17] M-E. Boulanger, F. Laliberté, M. Dion, S. Badoux, N. Doiron-Leyraud, W. A. Phelan, S. M. Koohpayeh, W. T. Fuhrman, J. R. Chamorro, T. M. McQueen, X. F. Wang, Y. Nakajima, T. Metz, J. Paglione, and L. Taillefer. Field-dependent heat transport in the Kondo insulator SmB_6 : Phonons scattered by magnetic impurities. *Phys. Rev. B*, 97 :245141, 2018.
- [18] R. O. Pohl and B. Stritzker. Phonon scattering at crystal surfaces. *Phys. Rev. B*, 25 :3608–3614, 1982.

- [19] Umklapp scattering. https://en.wikipedia.org/wiki/Umklapp_scattering. Accessed : 03-03-2022.
- [20] C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder. Phenomenological Evidence for the Phonon Hall Effect. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :155901, 2005.
- [21] A. V. Inyushkin and A. N. Taldenkov. On the phonon Hall effect in a paramagnetic dielectric. *JETP Lett.*, 86 :379–382, 2007.
- [22] Glen A. Slack and D. W. Oliver. Thermal Conductivity of Garnets and Phonon Scattering by Rare-Earth Ions. *Phys. Rev. B*, 4 :592–609, 1971.
- [23] L. Sheng, D. N. Sheng, and C. S. Ting. Theory of the Phonon Hall Effect in Paramagnetic Dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :155901, 2006.
- [24] Yu. Kagan and L. A. Maksimov. Anomalous Hall Effect for the Phonon Heat Conductivity in Paramagnetic Dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :145902, 2008.
- [25] Jian-Sheng Wang and Lifa Zhang. Phonon Hall thermal conductivity from the Green-Kubo formula. *Phys. Rev. B*, 80 :012301, 2009.
- [26] Lifa Zhang, Jie Ren, Jian-Sheng Wang, and Baowen Li. Topological Nature of the Phonon Hall Effect. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :225901, 2010.
- [27] Tao Qin, Jianhui Zhou, and Junren Shi. Berry curvature and the phonon Hall effect. *Phys. Rev. B*, 86 :104305, 2012.
- [28] Bijay K. Agarwalla, Lifa Zhang, Jian-Sheng Wang, and Baowen Li. Phonon Hall effect in ionic crystals in the presence of static magnetic field. *The European Physical Journal B*, 81 :197–202, 2011.
- [29] Michiyasu Mori, Alexander Spencer-Smith, Oleg P. Sushkov, and Sadamichi Maekawa. Origin of the Phonon Hall Effect in Rare-Earth Garnets. *Phys. Rev. Lett.*, 113 :265901, 2014.
- [30] Max Hirschberger, Jason W. Krizan, R. J. Cava, and N. P. Ong. Large thermal Hall conductivity of neutral spin excitations in a frustrated quantum magnet. *Science*, 348(6230) :106–109, 2015.

- [31] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Observation of the Magnon Hall Effect. *Science*, 329(5989) :297–299, 2010.
- [32] Ryo Matsumoto and Shuichi Murakami. Rotational motion of magnons and the thermal Hall effect. *Phys. Rev. B*, 84 :184406, 2011.
- [33] Ryo Matsumoto and Shuichi Murakami. Theoretical Prediction of a Rotating Magnon Wave Packet in Ferromagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 106 :197202, 2011.
- [34] Ryo Matsumoto, Ryuichi Shindou, and Shuichi Murakami. Thermal Hall effect of magnons in magnets with dipolar interaction. *Phys. Rev. B*, 89 :054420, 2014.
- [35] T. Ideue, Y. Onose, H. Katsura, Y. Shiomi, S. Ishiwata, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Effect of lattice geometry on magnon Hall effect in ferromagnetic insulators. *Phys. Rev. B*, 85 :134411, 2012.
- [36] N. Li, S. K. Guang, W. J. Chu, Q. Huang, J. Liu, K. Xia, X. H. Zhou, X. Y. Yue, Y. Sun, Y. Y. Wang, Q. J. Li, G. T. Lin, J. Ma, X. Zhao, H. D. Zhou, and X. F. Sun. Sign Switchable Magnon Thermal Hall Conductivity in An Antiferromagnet. *arXiv*, 2022.
- [37] Olexei I. Motrunich. Orbital magnetic field effects in spin liquid with spinon fermi sea : Possible application to κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃. *Phys. Rev. B*, 73 :155115, 2006.
- [38] Yuji Hirokane, Yoichi Nii, Yasuhide Tomioka, and Yoshinori Onose. Phononic thermal Hall effect in diluted terbium oxides. *Phys. Rev. B*, 99 :134419, 2019.
- [39] Hyunyong Lee, Jung Hoon Han, and Patrick A. Lee. Thermal Hall effect of spins in a paramagnet. *Phys. Rev. B*, 91 :125413, 2015.
- [40] Max Hirschberger, Robin Chisnell, Young S. Lee, and N. P. Ong. Thermal Hall Effect of Spin Excitations in a Kagome Magnet. *Phys. Rev. Lett.*, 115 :106603, 2015.
- [41] Daiki Watanabe, Kaori Sugii, Masaaki Shimosawa, Yoshitaka Suzuki, Takeshi Yajima, Hajime Ishikawa, Zenji Hiroi, Takasada Shibauchi, Yuji Matsuda, and Minoru Yamashita. Emergence of nontrivial magnetic excitations in a spin-liquid state of kagomé ; volborthite. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(31) :8653–8657, 2016.

- [42] Masatoshi Akazawa, Masaaki Shimozawa, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Ryutaro Okuma, Zenji Hiroi, Hyun-Yong Lee, Naoki Kawashima, Jung Hoon Han, and Minoru Yamashita. Thermal Hall Effects of Spins and Phonons in Kagome Antiferromagnet Cd-Kapellasite. *Phys. Rev. X*, 10 :041059, 2020.
- [43] Joji Nasu, Junki Yoshitake, and Yukitoshi Motome. Thermal transport in the Kitaev model. *Phys. Rev. Lett.*, 119 :127204, 2017.
- [44] Alexei Kitaev. Anyons in an exactly solved model and beyond. *Annals of Physics*, 321(1) :2–111, 2006. January Special Issue.
- [45] Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, Sixiao Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, and T. Shibauchi & Y. Matsuda. Majorana quantization and half-integer thermal quantum hall effect in a Kitaev spin liquid. *Nature*, 559 :227–231, 2018.
- [46] Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimozawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda. Unusual Thermal Hall Effect in a Kitaev Spin Liquid Candidate α -RuCl₃. *Phys. Rev. Lett.*, 120 :217205, 2018.
- [47] T. Yokoi, S. Ma, Y. Kasahara, S. Kasahara, T. Shibauchi, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, C. Hickey, S. Trebst, and Y. Matsuda. Half-integer quantized anomalous thermal hall effect in the Kitaev material candidate α -RuCl₃. *Science*, 373(6554) :568–572, 2021.
- [48] M. Yamashita, J. Gouchi, Y. Uwatoko, N. Kurita, and H. Tanaka. Sample dependence of half-integer quantized thermal Hall effect in the Kitaev spin-liquid candidate α -RuCl₃. *Phys. Rev. B*, 102 :220404, 2020.
- [49] T. Asaba S. Kasahara T. Shibauchi N. Kurita H. Tanaka Y. Matsuda Y. Kasahara, S. Suetsugu. Quantized and unquantized thermal Hall conductance of Kitaev spin-liquid candidate α -RuCl₃. *arXiv :2202.11947*, 2022.
- [50] J. A. N. Bruin, R. R. Claus, Y. Matsumoto, N. Kurita, H. Tanaka, and H. Takagi. Robustness of the thermal hall effect close to half-quantization in α -RuCl₃. *Nature Physics*, 2022.

- [51] Richard Hentrich, Maria Roslova, Anna Isaeva, Thomas Doert, Wolfram Brenig, Bernd Büchner, and Christian Hess. Large thermal Hall effect in α - RuCl_3 : Evidence for heat transport by Kitaev-Heisenberg paramagnons. *Phys. Rev. B*, 99 :085136, 2019.
- [52] Peter Czajka, Tong Gao, Max Hirschberger, Paula Lampen-Kelley, Arnab Banerjee, Nicholas Quirk, David G. Mandrus, Stephen E. Nagler, and N. P. Ong. The planar thermal hall conductivity in the Kitaev magnet α - RuCl_3 . *arXiv :2201.07873*, 2022.
- [53] É. Lefrançois, G. Grissonnanche, J. Baglo, P. Lampen-Kelley, J. Yan, C. Balz, D. Mandrus, S. E. Nagler, S. Kim, Young-June Kim, N. Doiron-Leyraud, and L. Taillefer. Evidence of a Phonon Hall Effect in the Kitaev Spin Liquid Candidate α - RuCl_3 . *arXiv :2111.05493*, 2021.
- [54] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of Superconductivity. *Phys. Rev.*, 108 :1175–1204, 1957.
- [55] N. P. Armitage, P. Fournier, and R. L. Greene. Progress and perspectives on electron-doped cuprates. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2421, 2010.
- [56] Patrick A. Lee, Naoto Nagaosa, and Xiao-Gang Wen. Doping a Mott insulator : Physics of high-temperature superconductivity. *Rev. Mod. Phys.*, 78 :17–85, 2006.
- [57] S. Uchida, T. Ido, H. Takagi, T. Arima, Y. Tokura, and S. Tajima. Optical spectra of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$: Effect of carrier doping on the electronic structure of the CuO_2 plane. *Phys. Rev. B*, 43 :7942–7954, 1991.
- [58] B. Keimer, S. A. Kivelson, M. R. Norman, S. Uchida, and J. Zaanen. From quantum matter to high-temperature superconductivity in copper oxides. *Nature*, 518 :179–186, 2015.
- [59] Stephen Blundell. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford University Press Inc., New York, 2008.
- [60] E. M. Motoyama, G. Yu, I. M. Vishik, O. P. Vajk, P. K. Mang, and M. Greven. Spin correlations in the electron-doped high-transition-temperature superconductor $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$. *Nature*, 445(1) :186–189, 2007.
- [61] H.-H. Klauss, W. Wagener, M. Hillberg, W. Kopmann, H. Walf, F. J. Litterst, M. Hücker, and B. Büchner. From antiferromagnetic order to static magnetic stripes : The phase diagram of $(\text{La},\text{Eu})_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :4590–4593, 2000.

- [62] Cyril Proust and Louis Taillefer. The Remarkable Underlying Ground States of Cuprate Superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 10(1) :409–429, 2019.
- [63] A. Schilling, M. Cantoni, J. D. Guo, and H. R. Ott. Superconductivity above 130 K in the Hg–Ba–Ca–Cu–O system. *Nature*, 363 :5658, 1993.
- [64] L. Gao, Y. Y. Xue, F. Chen, Q. Xiong, R. L. Meng, D. Ramirez, C. W. Chu, J. H. Eggert, and H. K. Mao. Superconductivity up to 164 K in $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{m-1}\text{Cu}_m\text{O}_{2m+2+\delta}$ ($m=1, 2,$ and 3) under quasihydrostatic pressures. *Phys. Rev. B*, 50 :4260–4263, 1994.
- [65] G. Grissonnanche, O. Cyr-Choinière, F. Laliberté, S. René de Cotret, A. Juneau-Fecteau, S. Dufour-Beauséjour, M.-E. Delage, D. Leboeuf, J. Chang, B. J. Ramshaw, W. N. Hardy D. A. Bonn, R. Liang, S. Adachi, N. E. Hussey, B. Vignolle, C. Proust, M. Sutherland, S. Kramer, J. H. Park, D. Graf, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Direct measurement of the upper critical field in cuprate superconductors. *Nat. Commun*, 5 :3280, 2014.
- [66] Shinji Kawasaki, Chengtian Lin, Philip L. Kuhns, Arneil P. Reyes, and Guo-qing Zheng. Carrier-Concentration Dependence of the Pseudogap Ground State of Superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6-\delta}$ Revealed by $^{63,65}\text{Cu}$ -Nuclear Magnetic Resonance in Very High Magnetic Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :137002, 2010.
- [67] H. Alloul, T. Ohno, and P. Mendels. ^{89}Y NMR evidence for a fermi-liquid behavior in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. *Phys. Rev. Lett.*, 63 :1700–1703, 1989.
- [68] C. E. Matt, C. G. Fatuzzo, Y. Sassa, M. Månsson, S. Fatale, V. Bitetta, X. Shi, S. Pailhès, M. H. Berntsen, T. Kurosawa, M. Oda, N. Momono, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, J.-Q. Yan, J.-S. Zhou, J. B. Goodenough, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, L. Patthey, A. Bendounan, E. Razzoli, M. Shi, N. C. Plumb, M. Radovic, M. Grioni, J. Mesot, O. Tjernberg, and J. Chang. 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. *Phys. Rev. B*, 92 :134524, 2015.
- [69] C. Collignon, S. Badoux, S. A. A. Afshar, B. Michon, F. Laliberté, O. Cyr-Choinière, J.-S. Zhou, S. Licciardello, S. Wiedmann, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Fermi-surface transformation across the pseudogap critical point of the cuprate superconductor $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B*, 95 :224517, 2017.

- [70] S. Nakamae, K. Behnia, N. Mangkorntong, M. Nohara, H. Takagi, S. J. C. Yates, and N. E. Hussey. Electronic ground state of heavily overdoped nonsuperconducting $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B*, 68 :100502, 2003.
- [71] R. Daou, Nicolas Doiron-Leyraud, David LeBoeuf, S. Y. Li, Francis Laliberté, Olivier Cyr-Choinière, Y. J. Jo, L. Balicas, J.-Q. Yan, J.-S. Zhou, J. B. Goodenough, and Louis Taillefer. Linear temperature dependence of resistivity and change in the Fermi surface at the pseudogap critical point of a high-Tc superconductor. *Nat. Physics*, 5 :31, 2009.
- [72] R. A. Cooper, Y. Wang, B. Vignolle, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, Y. Tanabe, T. Adachi, Y. Koike, M. Nohara, H. Takagi, Cyril Proust, and N. E. Hussey. Anomalous Criticality in the Electrical Resistivity of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Science*, 323(5914) :603–607, 2009.
- [73] A. Legros, S. Benhabib, W. Tabis, F. Laliberté, M. Dion, M. Lizaire, B. Vignolle, D. Vignolles, H. Raffy, Z. Z. Li, P. Auban-Senzier, N. Doiron-Leyraud, P. Fournier, D. Colson, L. Taillefer, and C. Proust. Universal T-linear resistivity and Planckian dissipation in overdoped cuprates. *Nat. Physics*, 15 :142, 2019.
- [74] Hilbert v. Löhneysen, Achim Rosch, Matthias Vojta, and Peter Wölfle. Fermi-liquid instabilities at magnetic quantum phase transitions. *Rev. Mod. Phys.*, 79 :1015–1075, 2007.
- [75] N. Doiron-Leyraud, S. René de Cotret, A. Sedeki, C. Bourbonnais, L. Taillefer, P. Auban-Senzier, D. Jérôme, and K. Bechgaard. Linear-t scattering and pairing from antiferromagnetic fluctuations in the (tmtsf)₂x organic superconductors. *The European Physical Journal B*, 78 :23–36, 2010.
- [76] H. v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schlager, A. Schröder, M. Sieck, and T. Trappmann. Non-Fermi-liquid behavior in a heavy-fermion alloy at a magnetic instability. *Phys. Rev. Lett.*, 72 :3262–3265, 1994.
- [77] S. Badoux, W. Tabis, F. Laliberté, G. Grissonnanche, B. Vignolle, D. Vignolles, J. Béard, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, N. Doiron-Leyraud, Louis Taillefer, and Cyril Proust. Change of carrier density at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. *Nature*, 531 :210, 2016.

- [78] G. S. Boebinger, Yoichi Ando, A. Passner, T. Kimura, M. Okuya, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Tamasaku, N. Ichikawa, and S. Uchida. Insulator-to-Metal Crossover in the Normal State of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ near optimum doping. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :5417–5420, 1996.
- [79] M. Lizaire, A. Legros, A. Gourgout, S. Benhabib, S. Badoux, F. Laliberté, M.-E. Boulanger, A. Ataei, G. Grissonnanche, D. LeBoeuf, S. Licciardello, S. Wiedmann, S. Ono, H. Raffy, S. Kawasaki, G.-Q. Zheng, N. Doiron-Leyraud, C. Proust, and L. Taillefer. Transport signatures of the pseudogap critical point in the cuprate superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 104 :014515, 2021.
- [80] B. Michon, A. Ataei, P. Bourgeois-Hope, C. Collignon, S. Y. Li, S. Badoux, A. Gourgout, F. Laliberté, J.-S. Zhou, Nicolas Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Wiedemann-Franz Law and Abrupt Change in Conductivity across the Pseudogap Critical Point of a Cuprate Superconductor. *Phys. Rev. X*, 8 :041010, 2018.
- [81] N Barišić, M K Chan, M J Veit, C J Dorow, Y Ge, Y Li, W Tabis, Y Tang, G Yu, X Zhao, and M Greven. Evidence for a universal Fermi-liquid scattering rate throughout the phase diagram of the copper-oxide superconductors. *New Journal of Physics*, 21(11) :113007, 2019.
- [82] C. M. Varma. Non-fermi-liquid states and pairing instability of a general model of copper oxide metals. *Phys. Rev. B*, 55 :14554–14580, 1997.
- [83] A. Shekhter and C. M. Varma. Considerations on the symmetry of loop order in cuprates. *Phys. Rev. B*, 80 :214501, 2009.
- [84] Sudip Chakravarty, R. B. Laughlin, Dirk K. Morr, and Chetan Nayak. Hidden order in the cuprates. *Phys. Rev. B*, 63 :094503, 2001.
- [85] G. Sordi, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay. Finite doping signatures of the mott transition in the two-dimensional hubbard model. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :226402, 2010.
- [86] G. Sordi, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay. Mott physics and first-order transition between two metals in the normal-state phase diagram of the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. B*, 84 :075161, 2011.
- [87] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay. Pseudogap temperature as a widom line in doped mott insulators. *Scientific Reports*, 2 :547, 2012.

- [88] A. Reymbaut, S. Bergeron, R. Garioud, M. Thénault, M. Charlebois, P. Sémon, and A.-M. S. Tremblay. Pseudogap, van hove singularity, maximum in entropy, and specific heat for hole-doped mott insulators. *Phys. Rev. Research*, 1 :023015, 2019.
- [89] G. G. Simeoni, T. Bryk, F. A. Gorelli, M. Krisch, G. Ruocco, M. Santoro, and T. Scopigno. The widom line as the crossover between liquid-like and gas-like behaviour in supercritical fluids. *Nature Physics*, 6 :503–507, 2010.
- [90] N. P. Armitage, F. Ronning, D. H. Lu, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, D. L. Feng, H. Eisaki, Z.-X. Shen, P. K. Mang, N. Kaneko, M. Greven, Y. Onose, Y. Taguchi, and Y. Tokura. Doping dependence of an n -Type Cuprate Superconductor Investigated by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :257001, 2002.
- [91] H. Matsui, T. Takahashi, T. Sato, K. Terashima, H. Ding, T. Uefuji, and K. Yamada. Evolution of the pseudogap across the magnet-superconductor phase boundary of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B*, 75 :224514, 2007.
- [92] B. Kyung, V. Hankevych, A.-M. Daré, and A.-M. S. Tremblay. Pseudogap and spin fluctuations in the normal state of the electron-doped cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :147004, 2004.
- [93] Bumsoo Kyung, Jean-Sébastien Landry, and A.-M. S. Tremblay. Antiferromagnetic fluctuations and d-wave superconductivity in electron-doped high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 68 :174502, 2003.
- [94] David Sénéchal and A.-M. S. Tremblay. Hot spots and pseudogaps for hole- and electron-doped high-temperature superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :126401, 2004.
- [95] B. Kyung, D. Sénéchal, and A.-M. S. Tremblay. Pairing dynamics in strongly correlated superconductivity. *Phys. Rev. B*, 80 :205109, 2009.
- [96] D. J. Scalapino. A common thread : The pairing interaction for unconventional superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 84 :1383–1417, 2012.
- [97] Qianli Ma, Evan M. Smith, Zachary W. Cronkwright, Mirela Dragomir, Gabrielle Mitchell, Alexander I. Kolesnikov, Matthew B. Stone, and Bruce D. Gaulin. Dynamic parallel spin stripes from the $1/8$ anomaly to the end of superconductivity in $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Research*, 4 :013175, 2022.

- [98] Mehdi Frachet, Igor Vinograd, Rui Zhou, Siham Benhabib, Shangfei Wu, Hadrien Mayaffre, Steffen Krämer, Sanath K. Ramakrishna, Arneil P. Reyes, Jérôme Debray, Tohru Kurosawa, Naoki Momono, Migaku Oda, Seiki Komiya, Shimpei Ono, Masafumi Horio, Johan Chang, Cyril Proust, David LeBoeuf, and Marc-Henri Julien. Hidden magnetism at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. *Nature Physics*, 16 :1064–1068, 2020.
- [99] K. Krishana, J. M. Harris, and N. P. Ong. Quasiparticle Mean Free Path in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Measured by the Thermal Hall Conductivity. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :3529–3532, 1995.
- [100] Nicolas Doiron-Leyraud, Cyril Proust, David LeBoeuf, Julien Levallois, Jean-Baptiste Bonnemaïson, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and Louis Taillefer. Quantum oscillations and the Fermi surface in an underdoped high- T_c superconductor. *Nature*, 447 :565–568, 2007.
- [101] David LeBoeuf, Nicolas Doiron-Leyraud, Julien Levallois, R. Daou, J.-B. Bonnemaïson, N. E. Hussey, L. Balicas, B. J. Ramshaw, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Adachi, Cyril Proust, and Louis Taillefer. Electron pockets in the Fermi surface of hole-doped high- T_c superconductors. *Nature*, 450 :533–5636, 2007.
- [102] Rhine Samajdar, Shubhayu Chatterjee, Subir Sachdev, and Mathias S. Scheurer. Thermal Hall effect in square-lattice spin liquids : A Schwinger boson mean-field study. *Phys. Rev. B*, 99 :165126, 2019.
- [103] Jung Hoon Han, Jin-Hong Park, and Patrick A. Lee. Consideration of thermal Hall effect in undoped cuprates. *Phys. Rev. B*, 99 :205157, 2019.
- [104] Jing-Yuan Chen, Steven A. Kivelson, and Xiao-Qi Sun. Enhanced Thermal Hall Effect in Nearly Ferroelectric Insulators. *Phys. Rev. Lett.*, 124 :167601, 2020.
- [105] T. Ideue, T. Kurumaji, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Giant thermal Hall effect in multiferroics. *Nature Materials*, 16(8) :797, 2017.
- [106] Xiaokang Li, Benoît Fauqué, Zengwei Zhu, and Kamran Behnia. Phonon Thermal Hall Effect in Strontium Titanate. *Phys. Rev. Lett.*, 124 :105901, 2020.
- [107] Qian Tao, Bastien Loret, Bin Xu, Xiaojun Yang, Carl Willem Rischau, Xiao Lin, Benoît Fauqué, Matthieu J. Verstraete, and Kamran Behnia. Nonmonotonic anisotropy in

- charge conduction induced by antiferrodistortive transition in metallic SrTiO₃. *Phys. Rev. B*, 94 :035111, 2016.
- [108] C. Hess, B. Büchner, U. Ammerahl, L. Colonescu, F. Heidrich-Meisner, W. Brenig, and A. Revcolevschi. Magnon heat transport in doped La₂CuO₄. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :197002, 2003.
- [109] Chandra M. Varma. Thermal Hall effect in the pseudogap phase of cuprates. *Phys. Rev. B*, 102 :075113, 2020.
- [110] Mengxing Ye, Lucile Savary, and Leon Balents. Phonon Hall Viscosity in Magnetic Insulators. *arXiv :2103.04223*, 2021.
- [111] B. Flebus and A. H. MacDonald. Charged Defects and Phonon Hall Effects in Ionic Crystals. *arXiv :2106.13889*, 2021.
- [112] Xiao-Qi Sun, Jing-Yuan Chen, and Steven A. Kivelson. Large extrinsic phonon thermal Hall effect from resonant scattering. *arXiv :2109.12117*, 2021.
- [113] Yanting Teng, Yunchao Zhang, Rhine Samajdar, Mathias S. Scheurer, and Subir Sachdev. Unquantized thermal Hall effect in quantum spin liquids with spinon Fermi surfaces. *Phys. Rev. Research*, 2 :033283, 2020.
- [114] Yunchao Zhang, Yanting Teng, Rhine Samajdar, Subir Sachdev, and Mathias S. Scheurer. Phonon Hall viscosity from phonon-spinon interactions. *Phys. Rev. B*, 104 :035103, 2021.
- [115] Haoyu Guo and Subir Sachdev. Extrinsic phonon thermal Hall transport from Hall viscosity. *Phys. Rev. B*, 103 :205115, 2021.
- [116] J.L. Peng, Z.Y. Li, and R.L. Greene. Growth and characterization of high-quality single crystals of R_{2-x}Ce_xCuO_{4-y} (R = Nd, Sm). *Physica C : Superconductivity*, 177(1) :79–85, 1991.
- [117] Gaël Grissonnanche. *Une fable de phases en interaction dans les cuprates supraconducteurs contée par le transport thermique*. PhD thesis, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, Canada, 2016.

- [118] Weiliang Yao, Chenyuan Li, Lichen Wang, Shangjie Xue, Yang Dan, Kazuki Iida, Kazuya Kamazawa, Kangkang Li, and Chen Fang & Yuan Li. Topological spin excitations in a three-dimensional antiferromagnet. *Nat. Phys.*, 14 :1011–1015, 2018.
- [119] Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Sven Badoux, Andréanne Allaire, Étienne Lefrançois, Anaëlle Legros, Adrien Gourgout, Maxime Dion, C. H. Wang, X. H. Chen, R. Liang, W. N. Hardy, and D. A. Bonn & Louis Taillefer. Thermal Hall conductivity in the cuprate Mott insulators Nd_2CuO_4 and $\text{SrCuO}_2\text{Cl}_2$. *Nat. Commun.*, 11 :5325, 2020.
- [120] Y. Onose, Y. Taguchi, K. Ishizaka, and Y. Tokura. Charge dynamics in underdoped $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$: Pseudogap and related phenomena. *Phys. Rev. B*, 69 :024504, 2004.
- [121] Fabio Boschini, Marta Zonno, Elia Razzoli, Ryan P. Day, Matteo Michiardi, Berend Zwartsenberg, Pascal Nigge, Michael Schneider, Eduardo H. da Silva Neto, Andreas Erb, Sergey Zhdanovich, Arthur K. Mills, Giorgio Levy, Claudio Giannetti, David J. Jones, and Andrea Damascelli. Emergence of pseudogap from short-range spin-correlations in electron-doped cuprates. *npj Quantum Materials*, 5 :6, 2020.
- [122] Richard L. Greene, Pampa R. Mandal, Nicholas R. Poniatowski, and Tarapada Sarkar. The Strange Metal State of the Electron-Doped Cuprates. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 11(1) :213–229, 2020.
- [123] F. F. Tafti, F. Laliberté, M. Dion, J. Gaudet, P. Fournier, and Louis Taillefer. Nernst effect in the electron-doped cuprate superconductor $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$: Superconducting fluctuations, upper critical field H_{c2} , and the origin of the T_c dome. *Phys. Rev. B*, 90 :024519, 2014.
- [124] Thomas Schäfer, Nils Wentzell, Fedor Šimkovic, Yuan-Yao He, Cornelia Hille, Marcel Klett, Christian J. Eckhardt, Behnam Arzhang, Viktor Harkov, François-Marie Le Régent, Alfred Kirsch, Yan Wang, Aaram J. Kim, Evgeny Kozik, Evgeny A. Stepanov, Anna Kauch, Sabine Andergassen, Philipp Hansmann, Daniel Rohe, Yuri M. Vilks, James P. F. LeBlanc, Shiwei Zhang, A.-M. S. Tremblay, Michel Ferrero, Olivier Parcollet, and Antoine Georges. Tracking the Footprints of Spin Fluctuations : A Multimethod, MultiMessenger Study of the Two-Dimensional Hubbard Model. *Phys. Rev. X*, 11 :011058, 2021.

- [125] Y.M. Vilk and A.-M.S. Tremblay. Non-Perturbative Many-Body Approach to the Hubbard Model and Single-Particle Pseudogap. *J. Phys. I France*, 7 :1309–1368, 1997.
- [126] J. Gauthier, S. Gagné, J. Renaud, M.-È. Gosselin, P. Fournier, and P. Richard. Different roles of cerium substitution and oxygen reduction in transport in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ thin films. *Phys. Rev. B*, 75 :024424, 2007.
- [127] Marie-Eve Boulanger, Gaël Grissonnanche, Étienne Lefrançois, Adrien Gourgout, Ke-Jun Xu, Zhi-Xun Shen, Richard L. Greene, and Louis Taillefer. Thermal hall conductivity of electron-doped cuprates. *Phys. Rev. B*, 105 :115101, 2022.
- [128] Song Bao, Jinghui Wang, Wei Wang, Zhengwei Cai, Shichao Li, Zhen Ma, Di Wang, Kejing Ran, Zhao-Yang Dong, D. L. Abernathy, Shun-Li Yu, Xiangang Wan, and Jian-Xin Li & Jinsheng Wen. Discovery of coexisting Dirac and triply degenerate magnons in a three-dimensional antiferromagnet. *Nat. Commun.*, 9 :2591, 2018.
- [129] Song Bao, Zhengwei Cai, Wenda Si, Wei Wang, Xiaomeng Wang, Yanyan Shangguan, Zhen Ma, Zhao-Yang Dong, Ryoichi Kajimoto, Kazuhiko Ikeuchi, Shun-Li Yu, Jian Sun, Jian-Xin Li, and Jinsheng Wen. Evidence for magnon-phonon coupling in the topological magnet Cu_3TeO_6 . *Phys. Rev. B*, 101 :214419, 2020.