

Université de Montréal

Les polarons magnétiques et la phase nématique dans
l' $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$

par

Gabrielle Beaudin

Département de physique
Faculté des arts et des sciences

Thèse présentée à la Faculté des études supérieures et postdoctorales
en vue de l'obtention du grade de
Philosophiæ Doctor (Ph.D.)
en Physique

Mai 2020

Université de Montréal

Faculté des études supérieures et postdoctorales

Cette thèse intitulée

Les polarons magnétiques et la phase nématique dans

$\text{l'Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$

présentée par

Gabrielle Beaudin

a été évaluée par un jury composé des personnes suivantes :

Michel Côté

(président-rapporteur)

Andrea Bianchi

(directeur de recherche)

William Witczak-Krempa

(co-directeur)

Sjoerd Roorda

(membre du jury)

Georg Knebel

(examineur externe)

Jean-François Masson

(représentant du doyen de la FESP)

Thèse acceptée le :

28 août 2020

Sommaire

L'objectif principal de ma thèse porte sur les composés à base d'euporium, une des terres rares qui est magnétique et qui forme des semiconducteurs magnétiques. Le but premier était de mesurer les corrélations magnétiques dans l' EuB_6 à l'aide de la technique diffraction de neutrons à petits angles SANS (*small angle neutron scattering* en anglais), plus précisément de mesurer la longueur de corrélation des polarons magnétiques. La raison de sonder les polarons magnétiques dans l' EuB_6 est que leur présence pourrait expliquer la grande magnéto-résistance proche de la transition Curie associée avec l'ordre ferromagnétique. Ceci est une tâche particulièrement difficile puisque l'euporium est un très grand absorbeur de neutrons, affectant donc la durée d'acquisition. Suite à l'analyse des données, nous avons pu conclure que les polarons magnétiques sont définitivement présents. De plus, leur présence augmente de façon non négligeable les fluctuations magnétiques. Par contre, la présence de ces fluctuations magnétiques rend la tâche de mesurer la longueur de corrélation plus difficile. La plus grande découverte de mon doctorat a été la phase nématique dans le EuB_6 grâce à des mesures de magnéto-résistance en fonction de l'angle. Ceci se manifestait avec une brisure de symétrie du cristal seulement dans les propriétés électroniques. Ces données m'ont permis de mieux comprendre le rôle que jouent les polarons magnétiques dans ce système. En dopant le système au calcium, nous avons confirmé la présence d'une transition vers un ordre de verre de spins à partir d'une concentration de 30% de calcium. Ce composé semble posséder la même phase nématique que le EuB_6 . Toutefois, cette phase est bien plus concentrée autour de la transition à cause du manque de fluctuations magnétiques au-dessus de celle-ci.

Mots clés : nématicité, hexaborure, spintronique, polaron magnétique, diffraction neutronique, EuB_6 , ferromagnétisme

Summary

The main objective of my thesis is about Europium, a magnetic rare earth, based compounds which produces magnetic semiconductors. The primary goal was to measure magnetic correlations in the EuB_6 using SANS (small angle neutron scattering) technique, more precisely, to measure the correlation length of magnetic polarons. The raison for studying magnetic polarons in EuB_6 is that their presence can explain the large magnetoresistance near the Curie transition associated to a ferromagnetic order. This is a particularly difficult task since Europium (Eu^{2+}) is a very strong neutron absorber, thus affecting the acquisition time. Long exposure times were necessary to obtain adequate background. After the analysis of the data, we have finally been able to conclude that magnetic polarons are definitely present. In addition, their presence increases significantly magnetic fluctuations. On the other hand, the presence of these magnetic fluctuations makes the task of measuring the correlation length more difficult. The biggest discovery of my Ph.D. was the nematic phase in the EuB_6 using angle-based magneto-resistance measurements. The nematic phase is characterized by a breaking of symmetry only in the electronic properties. These data have allowed me to better understand the role played by magnetic polarons in this system. By doping the system with calcium, we confirmed the presence of a transition to a spin glass order from a concentration of 30% calcium. This compound seems to have the same nematic phase as its parent compound. However, this phase is much more concentrated around the spin glass transition because of lack of magnetic fluctuations above it.

Keywords: Nematicity, hexaborides, spintronics, magnetic polarons, neutron diffraction, ferromagnetisme

Table des matières

Sommaire	v
Summary	vii
Liste des tableaux	xiii
Table des figures	xv
Remerciements	xix
Introduction	1
Chapitre 1. Littérature et méthodes expérimentales	3
1.1. Littérature sur les polarons magnétiques	3
1.1.1. Les propriétés électriques de la matière sans interaction	3
1.1.2. La magnétorésistance dans les semiconducteurs	5
1.1.3. Une théorie avec interactions : les polarons magnétiques	8
1.1.4. Détection optique des polarons magnétiques dans l'EuTe	10
1.2. Littérature sur la phase nématique quantique	12
1.2.1. Le GaAs	13
1.2.2. Le $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$	14
1.2.3. Les supraconducteurs à base de fer	15
1.2.4. Supraconducteurs à haute température	18
1.3. L'EuB ₆ : croissance, propriétés électroniques et phase ferromagnétique	20
1.3.1. Croissance	20
1.3.2. Propriétés électroniques	21

1.3.3. La phase ferromagnétique dans l'EuB ₆	24
1.4. La spintronique	26
1.5. Méthodes expérimentales	28
1.5.1. Diffraction de neutrons à petits angles (SANS)	28
1.5.2. Magnéto-résistance anisotrope (AMR)	31
Bibliographie	35
Chapitre 2. L'EuB₆ dopé au calcium	41
2.1. Pourquoi doper au calcium?	41
2.2. Croissance et détermination du dopage	42
2.3. Caractérisation des échantillons	43
2.3.1. Susceptibilité magnétique	43
2.3.2. Chaleur spécifique	44
2.3.3. Oscillations de magnéto-résistance anisotrope (AMRO)	46
2.3.4. Diffraction de neutrons à petits angles	47
2.4. Vers le futur... et plus loin encore	49
Bibliographie	50
Premier article. Quantum nematic in a colossal magnetoresistance material	51
Methods	60
Supplementary Information	61
Sample characterization	61
Aluminum inclusions	61
Demagnetisation effects	62
AMRO calculations	62
Bibliography	69

Deuxième article. Strong polaron–spin fluctuations drive the insulator– semimetal transition in low-density electron gases	75
Methods	86
Supplementary Information	88
Bibliography	94
Polarons magnétiques et supraconducteurs à haut T_C	99
Bibliographie	100
Conclusion	101
Annexe 1 : Code Mathematica	103
Constantes et variables	103
Les fonctions principales	104
Programme principal	109
Exemple	111

Liste des tableaux

2.1	Échantillon de $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$ et leur composition calculé à partir des données MEB.	42
3.2	Experimental data used for AMRO calculations	63
4.3	Comparison to literature values of the various critical temperatures.....	93

Table des figures

1.1	Résistivité des métaux et semiconducteurs	5
1.2	Résistivité de l' $\text{Eu}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Se}$	6
1.3	Magnétorésistance dans le Si type-n.....	6
1.4	Schéma de la formation des polarons magnétiques dans EuB_6	9
1.5	Intensité de la photoluminescence versus énergie dans l' EuTe à 5 K en dessous de T_N . [13].....	12
1.6	Résistance du GaAs en température	14
1.7	Résistance du $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ en champ	14
1.8	Diagramme schématique de phase de la famille de supraconducteurs à base de fer BaFe_2As_2 [24].....	16
1.9	Hierarchie des états électroniques ordonnés dans les FeSCs	17
1.10	Résistivité du $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$	19
1.11	Paramètre d'ordre nématique dans le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$	19
1.12	Structure de l' EuB_6 [31].	20
1.13	Dimensions et mosaïques de cristaux de EuB_6	21
1.14	La dépendance en température de la résistivité dans l' EuB_6	22
1.15	Valeurs expérimentales de C versus la densité de porteurs.....	23
1.16	Magnétorésistance versus magnétisation dans l' EuB_6	23
1.17	STM sur l' EuB_6	24
1.18	Magnétisation de l' EuB_6	25
1.19	Chaleur spécifique de l' EuB_6	26

1.20	Schéma représentant le GMR	27
1.21	SANS	30
1.22	Diagramme des mesures de AMR	34
2.1	Microscopie électronique à balayage de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{B}_6$ (#3)	43
2.2	Susceptibilité et courbe d'hystérèse dans le $\text{Eu}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{B}_6$	44
2.3	Chaleur spécifique de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)	45
2.4	Résistivité de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)	46
2.5	ρ_{\perp} à température de 3 K et champ magnétique 0.02 T dans l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)	47
2.6	Magnétorésistance versus H dans le $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$	48
2.7	Analyse des données SANS pour $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$ avec $x < 0.4$	49
3.1	Phase diagram of EuB_6	54
3.2	AMRO experimental data	56
3.3	Angular dependence of the resistivity tensor	59
3.4	Imaginary part of the magnetic susceptibility	64
3.5	Specific heat and electrical resistivity of EuB_6	65
3.6	Demagnetisation factor	66
3.7	CMR versus AMRO	67
3.8	Calculation for ρ_{\perp} for different charge carrier densities	68
4.1	Phase Diagram of EuB_6	80
4.2	Intensity vs temperature	82
4.3	Intensity versus q	83
4.4	Correlation lengths versus temperature	85
4.5	Schematic of a small-angle neutron scattering (SANS) instrument	88
4.6	Processing of SANS data	89
4.7	Specific heat and electrical resistivity of EuB_6	90

4.8	Magnetization of EuB_6	91
4.9	AC susceptibility	92
2.10	Exemple de graphique obtenu avec le code. L'axe des x est l'angle θ en radian et l'axe des y est la résistivité en Ohm.	111

«Ça va aller»

- La vie et la FAÉCUM

Le mouvement *Ça va aller* a été introduit par la FAÉCUM le 4 février 2019. Ce mouvement m'a grandement aidé à accepter ma condition et à aussi aider la communauté à parler des enjeux de santé mentale. Beaucoup de chemin reste à faire, mais c'est un très bon début. De plus, pour une meilleure santé mentale, j'ai introduit la règle suivante : «Pas de physique après 21h du lundi au jeudi, ainsi qu'après 17h le vendredi au dimanche».

Remerciements

Les 5 dernières années passées à l'Université de Montréal ont été remplis de hauts et de bas. Mais, je peux dire que tous ces moments ont changé ma vie.

Merci à ma famille, surtout ma mère qui m'a supporté durant mes moments difficiles. Et à mon père qui sera toujours là pour moi. À mon frère, malgré la distance, j'ai eu ton support inconditionnel. Merci à toi, grand-maman, je sais que je serais toujours ta préférée et toi, tu seras toujours la mienne. Merci à toi, grand-papa, d'être le plus fort de tous.

Merci à mes Gurlz, Lucie Maude et Marie-Maude, vous êtes mes meilleures. Merci de m'avoir enduré durant mes hauts et mes bas. Un grand merci aux boys, Félix, Frank, Félix Antoine, Max, Ben, Mathieu, Vincent, pour être toujours aussi fou. À Éric, pour être l'homme le plus gentil et intelligent que j'ai rencontré. Et bien sûr, merci à Fred, malgré nos moments difficiles, tu seras toujours l'un des plus importants à mes yeux. Merci à Dude, ce cher ami et collègue de travail, je sais que ça l'a été dur de me supporter pendant plus de 2 ans. Merci à vous tous pour ces multiples soirées passées au Ptit Medley, à ces fins de semaine ensoleillées au chalet et aux multiples beer pong au 208. J'attends toujours avec impatience le Clanranald Open 2017 en 2052.

Merci à Martine et Rose de m'avoir distraite de ma vie universitaire de temps en temps. Merci aux membres des CA de la Physum et au BE de la FAÉCUM que j'ai pu croiser durant mes années d'implication. Merci aussi beaucoup à ceux et celles qui m'ont enduré durant ~~mon règne~~ ma gestion de la merveilleuse Planck.

Merci à mon groupe de recherche, Bobby, Luc, Amanda, Avner et mes stagiaires qui ont dû subir mon autorité (Désolée Alix). Merci à des anciens comme Nicolas et Alexandre, qui m'ont aidé tant qu'ici qu'à l'étranger.

Merci à mes collaborateurs, Mark, Rob et Stavos, pour leur aide durant ces longues heures passées à l'ILL ou à PSI. Merci à mon codirecteur, William, j'ai énormément appris de toi et je t'admire beaucoup.

Merci à Colette, celle qui me réchauffe toutes les nuits. Merci aussi pour ton amour inconditionnel. Merci aussi à Jam, tu es tellement beau et je t'aime.

Et bien sûr, merci à mon directeur de recherche, Andrea. Je n'aurais jamais pensé faire tout ce que j'ai fait quand j'ai accepté ma maîtrise (et par la suite mon doctorat) avec toi. Merci de m'avoir donné l'opportunité de voyager autant et de travailler avec des personnes si exceptionnelles. Merci pour tout.

Introduction

La matière condensée étudie principalement l'état solide. Cet état est spécial puisque dans un solide, les atomes sont plus rapprochés et les interactions entre eux sont plus fortes. Lorsqu'un solide possède un arrangement d'atomes périodique, il est caractérisé comme étant un cristal. Les types de cristaux peuvent être catégorisés en quatorze différentes configurations en trois dimensions dites réseau de Bravais avec une certaine symétrie. Cette symétrie est réfléchiée dans les propriétés électroniques, magnétiques ou thermodynamiques. Les corrélations magnétiques d'un système peuvent être sondées grâce à la diffraction neutronique. Le neutron n'a pas de charge ce qui le laisse facilement pénétrer la matière. De plus, il possède un moment magnétique qui peut interagir avec les spins à l'intérieur d'un matériau qui sont responsable pour le magnétisme, donnant un patron de diffraction unique à un état ordonné. D'autre part, la résistance permet de classifier le système en tant qu'isolant, semiconducteur, conducteur et dernièrement, isolant topologique. La physique des systèmes avec des faibles interactions est très bien comprise, par contre les composés avec des fortes interactions ne peuvent être expliqués par ces théories. Il faut alors pousser plus loin les mesures et tenter de répondre aux multiples questions qui en découlent. Les fortes corrélations dans ces matériaux engendrent des transitions de phase qui peuvent être utilisées par la technologie. Ainsi, toute cette recherche fondamentale est nécessaire pour faire avancer la technologie moderne.

Ma thèse est séparée en deux chapitres ainsi que deux articles. Le premier chapitre introduit la théorie et l'historique des deux principaux sujets de ma thèse, les polarons magnétiques et la phase nématique. Il y a aussi un survol de la spintronique et de son impact dans les nouvelles technologies. Par la suite, je décris les deux méthodes expérimentales utilisées durant mes études graduées, la diffraction de neutrons à petits angles et la magnétorésistance à angle résolu. S'en suit du deuxième chapitre à propos de la recherche en progrès sur l' EuB_6 dopé au calcium, les données recueillies, ainsi que les futures expériences à faire. En

dernier, on peut lire les deux articles auxquels j'ai contribué en tant que première auteure. Le premier porte sur la phase nématique de l' EuB_6 et le deuxième sur le rôle des polarons magnétiques dans ce même système.

Chapitre 1

Littérature et méthodes expérimentales

1.1. Littérature sur les polarons magnétiques

1.1.1. Les propriétés électriques de la matière sans interaction

La théorie des électrons quasi libres permet d'extraire les propriétés de certains cristaux, comme la conductivité, dans l'approximation où le cristal est un arrangement périodique infini d'atomes qui interagissent faiblement avec leurs électrons de conduction. Entre autres, cette théorie permet de calculer une structure de bandes, analogue aux niveaux atomiques des électrons dans un atome isolé. Ce calcul, avec la statistique de Fermi qui implique que les bandes n'admettent qu'au maximum deux électrons et sont remplies jusqu'à l'énergie de Fermi, classe les matériaux en trois catégories.

Dans le premier cas, les métaux, le niveau de Fermi traverse une bande de conduction et celle-ci n'est donc pas remplie au complet (voir figure 1.1a). Cela permet alors aux électrons de «bouger» dans le système : les électrons de cette bande ont accès aux états infinitésimement proche en énergie et le système peut donc «absorber» plus facilement de l'énergie. Ce phénomène se caractérise par une très bonne conduction (voir figure 1.1b). D'ailleurs, le transport des électrons dans un métal peut être caractérisé semi-classiquement par la théorie de Boltzmann : lorsqu'un potentiel électrique est appliqué à un système, les électrons se déplacent avec une vitesse de dérive de quelques mètres par heure. Particulièrement, pour un système macroscopique qui comporte un très grand nombre d'électrons, même une petite vitesse de dérive se traduit par une très grande densité de courant. Ainsi, l'énergie se déplace très rapidement entre deux points de contact. La conductance d'un métal est proportionnelle au temps moyen entre deux collisions. Les collisions sont alors plus fréquentes à haute

température puisque les vibrations du réseau, dits phonons, sont plus grandes. L'interaction entre les électrons et les phonons peut être décrite par la formule de Bloch–Grüneisen[1] :

$$\rho \propto T^5 \int_0^{\Theta/T} dx \frac{x^5}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} \quad (1.1)$$

où Θ est la température de Debye. La résistivité sera proportionnelle à la température, $\rho \propto T$ lorsque $T \gg \Theta$ et $\rho \propto T^5$ lorsque $T \approx \Theta$. Par exemple, la température de Debye de l'aluminium est de 426 K et celle de l'euporium est de 118 K. Sous la température de Debye, les interactions électrons-phonons sont négligeables dans leurs effets sur la conductivité. Ainsi, aux températures basses, la conductivité ou la résistivité est limitée par les défauts dans le cristal, $\rho \propto \rho_0 = \text{const}$

Dans le deuxième cas, les semiconducteurs, la bande de valence est remplie au complet, ne permettant pas aux électrons de bouger. Le niveau de Fermi se trouve à l'intérieur du *gap*, soit l'énergie entre la bande de valence et celle de conduction. Plus particulièrement, pour les semiconducteurs intrinsèques, on peut démontrer que le niveau de Fermi se trouve au milieu de ce *gap*. Il faut alors ajouter au système l'énergie équivalant au *gap* pour que le transport soit possible. Ce *gap* est d'autour de 0.1 à 5 eV ; c'est pourquoi les semiconducteurs sont utilisés en électronique pour construire des transistors. Ces derniers ont le rôle de «portes» qui s'ouvrent seulement lorsqu'un certain voltage est appliqué. De plus, le *gap* ajoute une décroissance exponentielle en température de la résistivité(voir figure 1.1c), comme le nombre de porteurs de charges décroît de façon exponentielle avec la température ($n \propto T^{3/2}e^{-1/T}$). Cette forte dépendance en température est dominante et surpasse tous les autres effets. La conductance devient donc très mauvaise à basse température puisque l'énergie thermique n'est pas suffisante à faire passer les électrons de la bande de valence à celle de conduction.

Lorsque le *gap* est bien plus grand ($>5\text{eV}$), le système tombe dans la dernière catégorie : les isolants. La région entre semiconducteurs et isolants n'est pas bien défini et plusieurs facteurs viennent des conditions expérimentales. Ces matériaux n'ont presque aucune conduction, puisque l'énergie nécessaire pour avoir des porteurs de charges dans la bande de conduction est trop grande. Il n'y a pas de limite claire entre les isolants et les semiconducteurs et la distinction dépend de l'usage du matériau. D'ailleurs, dans les dernières années, une nouvelle classe de matériaux a été découverte : les isolants topologiques. Ces matériaux ont la propriété d'être conducteur à leur surface et isolant dans leur volume. Ceci

est possible par l'apparition d'une bande de surface qui relie la bande de valence à celle de conduction. D'une façon analogue, les états de surface rendent, entre autres, possible l'effet Hall quantique présent notamment dans le GaAs[2, 3].

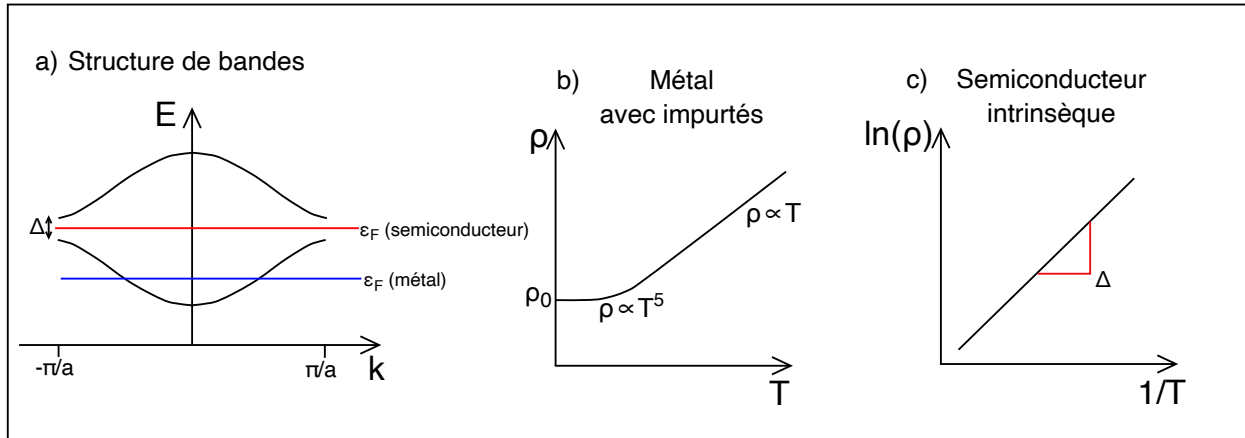


FIGURE 1.1. a) Structure de bande calculée selon la théorie des électrons libres. b) Résistivité versus température d'un métal avec impuretés. c) Résistivité versus la température réciproque d'un semiconducteur intrinsèque.

1.1.2. La magnétorésistance dans les semiconducteurs

L'un des premiers articles décrivant le polaron magnétique ressort des recherches sur la famille des chalcogènes d'euprium dans la fin des années 60. Cette famille de matériaux démontre des propriétés électriques et magnétiques insolites. L'un de ces matériaux est l' $\text{Eu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{Se}$ et on y découvre à basse température un ordre ferromagnétique. La particularité de ce matériau est la grande magnétorésistance qui ne peut être expliquée avec la théorie des électrons libres. La magnétorésistance est caractérisée par un changement de la résistivité lors de l'application d'un champ magnétique externe. Dans l' $\text{Eu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{Se}$, la résistivité à haute température le classe comme un semiconducteur (Figure 1.2), par contre à partir de 8 K, une diminution soudaine de résistance contredit la théorie des électrons libres. Cette diminution est produite par une transition de phase ferromagnétique, où les spins s'alignent tous dans une même direction. Dans un métal, au-dessus de la température critique, une partie de la résistance vient du désordre des spins. Par la suite, une transition de deuxième ordre se manifeste comme une divergence à T_C dans les données de $\partial\rho/\partial T$ versus T . Sous la température critique, il y a une diminution de la résistivité causée par l'alignement des spins.

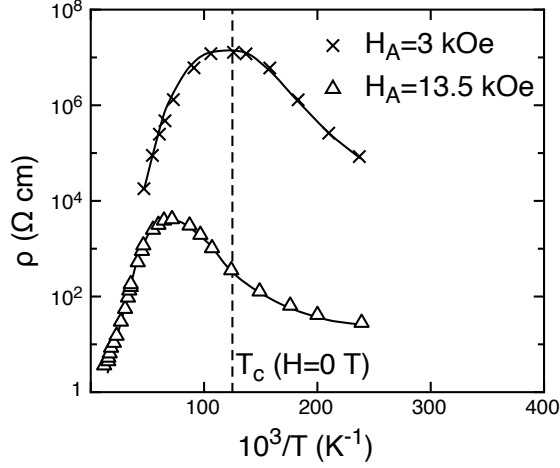


FIGURE 1.2. Résistivité de l' $\text{Eu}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Se}$ en fonction de la température réciproque en variant le champ magnétique. (Reproduction à partir de [5])

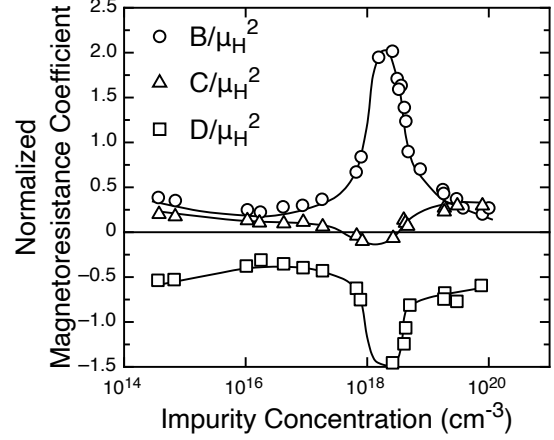


FIGURE 1.3. Variation du coefficient normalisé de la magnéto-résistance (à partir de l'équation $\frac{\Delta\rho}{\rho} = B + C\frac{(\mathbf{J}\cdot\mathbf{H})^2}{J^2H^2} + D\left[\frac{J_x^2H_x^2 + J_y^2H_y^2 + J_z^2H_z^2}{J^2H^2}\right]$ où \mathbf{J} est la densité de courant et \mathbf{H} le champ magnétique) en fonction de la concentration d'impuretés dans le silicium fortement dopé à 77 K. (Reproduction à partir de [6])

Une diminution faible est attendue comme dans le ferroaimant UTe où la résistance tombe de moitié en dessous de la transition ferromagnétique[4]. Toutefois, dans l' $\text{Eu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{Se}$, ce qui le démarque d'un ferroaimant conventionnel est la diminution d'un facteur de plus de 1000 de la résistivité sous la température critique. Ce qui veut dire que cette réduction ne peut être due seulement à une réduction de la diffusion, mais à l'augmentation du nombre de porteurs de charges. Ceci indique un fort couplage entre le magnétisme et la densité des porteurs de charges libres. On peut penser que l' $\text{Eu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{Se}$ est un semiconducteur dopé. La comparaison peut être faite avec le silicium dopé. Ce semiconducteur, utilisé dans la plupart de l'électronique moderne, peut être dopé en électrons (*n-type*) pour changer ses propriétés électroniques. Un niveau de dopage de 10^{18} met le Si à la frontière de la transition métallique (Figure 1.3). Premièrement, on peut regarder la magnéto-résistance. Comme on peut voir dans la figure 1.2, l' $\text{Eu}_x\text{Gd}_{1-x}\text{Se}$ a une grande magnéto-résistance. Mais le Si a seulement

une grande magnétorésistance à fort niveau de dopage proche de la frontière de la transition isolant-métal.

La magnétorésistance est décrite comme étant une variation de la résistivité d'un matériau lors de l'application d'un champ magnétique. Le tenseur de conductivité proposé par Chambers peut être calculé de façon suivante[7, 8] :

$$\sigma_{ij} = -\frac{e^2}{4\pi^3 h^3} \int v_i \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} d^3 p \int_{-\infty}^0 dt v_j(t) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (1.2)$$

où v_i est la composante i de la vitesse à temps zéro, $v_j(t)$ est la composante j de la vitesse au temps t , $\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon}$ représente la distribution d'énergie où f_0 est la fonction statistique de Fermi-Dirac, τ est le temps de vie des quasiparticules et l'intégration est faite sur tout l'espace d'impulsion p . Avec cette formule et l'approximation de la trajectoire d'une particule sur la surface de Fermi, la dépendance en champ magnétique de la résistivité peut être calculée. Premièrement, l'équation de mouvement d'un électron dans un champ magnétique est :

$$\dot{\mathbf{p}} = -\frac{e}{c}(\mathbf{v} \times \mathbf{H}), \quad (1.3)$$

ainsi que la formule de sa vitesse :

$$\mathbf{v} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial \mathbf{p}}. \quad (1.4)$$

Par la suite, avec l'approximation de forts champs magnétiques dans la direction z et de trajectoires fermées projetées sur le plan xy , on obtient que σ_{xx} , $\sigma_{yy} \approx H^{-2}$ et $\sigma_{ij} \approx H^{-1}$ ($i \neq j$). Si les densités de porteurs de charges, électrons et trous, sont identiques, on a la dépendance suivante :

$$\rho_{\alpha\beta} \sim H^2, \quad \rho_{\alpha z} \sim H, \quad \rho_{zz} \sim \text{const} \quad (\alpha, \beta = x, y). \quad (1.5)$$

Alors, une grande magnétorésistance à bas niveau d'impuretés est proportionnelle au carré du champ appliqué. Cependant, cette dépendance change lorsque le système est de plus en plus dopé, signifiant un manque dans la théorie. La présence à basse température de magnétorésistance négative dans le silicium fortement dopé est similaire à ce qui est observé dans le germanium dopé négativement, l'GaAs type-n et d'autres semiconducteurs similaires[6]. Une grande magnétorésistance négative est aussi observée dans l'Eu_xGd_{1-x}Se. Dans tous ces cas, il faut considérer l'ajout d'interactions dans la description de la théorie. Un élément commun dans tous ces matériaux est le fort dopage qui ajoute à la complexité du problème.

1.1.3. Une théorie avec interactions : les polarons magnétiques

Pour tenter d'expliquer les phénomènes précédents, Von Molnar *et al.*[5] introduisent un nouveau concept, le polaron magnétique pour expliquer le comportement dans la résistivité et la magnétorésistance. Ils le décrivent comme étant un regroupement d'électrons de conduction confinés magnétiquement. Ce phénomène est analogue au polaron diélectrique dans les semiconducteurs polarisés. Un polaron diélectrique est décrit comme un électron se déplaçant dans un cristal diélectrique où les atomes se déplacent de leur position d'équilibre pour écranter sa charge. Cela réduit la mobilité électronique et augmente la masse efficace de l'électron. Ensuite, Von Molnar *et al.* démontrent qu'il est plus favorable énergiquement d'avoir une fonction d'onde électronique confinée dans un groupe de spins polarisés lorsque la température est près de celle de Curie dans le cas des interactions ferromagnétiques. Ils décrivent le processus de la façon suivante (voir la figure 1.4) :

- À température élevée ($k_B T \gg E$ où E est l'énergie de sauts dans un cristal non ordonné), l'influence de la phase magnétique sur la mobilité des électrons est négligeable.
- À des températures plus basses, mais plus hautes que T_C , les électrons deviennent de plus en plus liés avec les atomes magnétiques. Ils forment des polarons magnétiques qui sont entourés d'atomes avec des spins parallèles. Ce qui fait augmenter la résistivité de façon exponentielle.
- En se rapprochant de plus en plus de la température critique, il est de plus en plus favorable de créer des polarons magnétiques. Ceux-ci se multiplient, grossissent et finissent par se superposer. La superposition des polarons magnétiques se caractérise par une diminution très prononcée de la résistivité.
- À T_C , le système devient ferromagnétique et la résistivité tant vers une constante lorsque la température tant vers zéro.

Il faut prendre en compte ici que ces polarons magnétiques ne sont pas statiques sur la maille, mais bien dynamiques. De plus, ce type de polaron magnétique n'est pas accompagné par une déformation statique de la maille cristalline. Une révision de plusieurs de ces matériaux est apportée dans l'article de Kasuya *et al.*[9] qui tente de trouver un modèle théorique pour les différents phénomènes se produisant dans ces matériaux. Une piste de solution est illustrée dans l'équation suivante, où des interactions entre spins de différentes bandes jouent

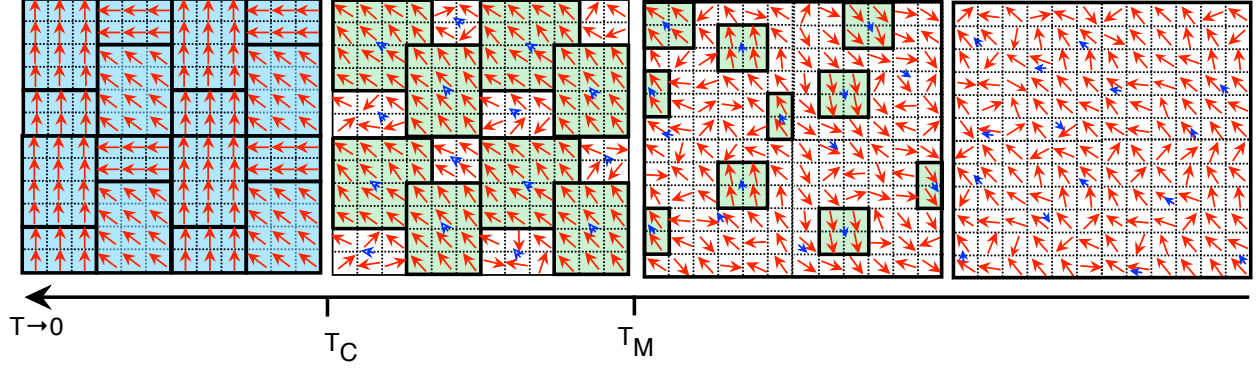


FIGURE 1.4. Schéma de la formation des polarons magnétiques dans EuB_6 . Les grosses flèches rouges représentent les spins localisés de 10 ions Eu^{2+} et les petites flèches bleues sont les spins des porteurs de charge. À haute température, il n'y a ni ordre magnétique ni localisation. Juste au-dessus de T_M , les porteurs de charge commencent à se localiser autour des ions Eu^{2+} et forment des polarons magnétiques atteignant leur taille maximale à T_M . En dessous de T_C , les porteurs de charges deviennent libres et les moments magnétiques localisés sur les ions Eu^{2+} forment des domaines ferromagnétiques.

un rôle important :

$$H = - \sum_{n,m,\nu} E_{nm} a_{n\nu}^\dagger a_{m\nu} - I \sum_{n,\nu,\mu} \vec{S}_n \cdot a_{n\nu}^\dagger \vec{\sigma}_{\nu\mu} a_{n\mu} - \sum_{n,m} J_{nm} \vec{S}_n \cdot \vec{S}_m + H_{\text{ext}}. \quad (1.6)$$

Le premier terme est la partie sans interaction et indique l'énergie de saut d'un électron avec $a_{n\nu}^\dagger$ étant l'opérateur Wannier de création à la position R_n avec un spin ν . Le deuxième terme est le terme d'échange entre les électrons $4f$ et les électrons de conduction. Le troisième terme indique l'interaction f - f , dans le cas qui se limite au premier voisin, ce terme est décrit par l'interaction d'Heisenberg. Le terme de couplage J_{nm} est positif pour un ferroaimant et négatif pour un antiferroaimant. Ce dernier est un ordre magnétique où les spins voisins sont antiparallèles. Le dernier terme est un champ magnétique externe appliqué au système. Il est ignoré dans la suite de la dérivation de l'article. Quelques prédictions sont mises de l'avant en conclusion de l'article de Kasuya *et al.*, comme la forte possibilité de la formation de polarons magnétiques dans l'EuSe.

Plusieurs décennies plus tard, un modèle plus adapté à l'EuB₆ utilise l'interaction Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) pour expliquer les phénomènes présents dans ce système[10]. L'Hamiltonien est similaire et est décrit de façon suivante :

$$H = -t \sum_{i,j,\sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} - J \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - J'_e \sum_i c_{i\sigma e}^\dagger \vec{\tau}_{\sigma,\sigma'} c_{i\sigma' e} \cdot \vec{S}_i - J'_h \sum_i c_{i\sigma h}^\dagger \vec{\tau}_{\sigma,\sigma'} c_{i\sigma' h} \cdot \vec{S}_i \quad (1.7)$$

où t est le paramètre de saut et est estimé d'être $t = 0.1eV$ [11]. $c_{i\sigma(e,h)}^\dagger \vec{\tau}_{\sigma,\sigma'} c_{i\sigma'(e,h)}$ est l'opérateur de spin des porteurs de charges itinérantes avec les indices représentent les électrons (e) et les trous (h). Un couplage effectif (J_{eff}) de type Heisenberg peut être calculé et en utilisant la relation champ moyen entre la température de transition et J_{eff} , le couplage d'échange est estimé à être $J' \sim 0.1eV$. Quand ce couplage est assez fort, les porteurs de charges peuvent être localisés par les domaines ferromagnétiques et former des polarons magnétiques. Toutefois, cette formation est possible seulement si la densité de porteurs est très faible par rapport à l'inverse du volume magnétique corrélé. C'est-à-dire que $n\xi^3 \ll 1$. Alors, les polarons magnétiques existent quelques degrés au-dessus de T_C , avec cette marge proportionnelle au ratio de J'/t . À haute température, les fluctuations magnétiques détruisent les polarons magnétiques. Sous T_C , la condition décrite plus haut n'est plus satisfaite ce qui fait chevaucher les polarons magnétiques. Ils concluent que la magnétorésistance dans l'EuB₆ est dû au couplage sur site des trous avec les spins locaux tandis que les électrons sont responsables pour l'ordre magnétique par l'interaction RKKY. Dans les sections suivantes, je parlerai des expériences qui démontrent la présence des polarons magnétiques. Je me concentrerai sur les deux composés suivants : EuB₆ et EuTe. La sous section suivante est dédié à l'EuTe. Pour l'EuB₆ une section complète y est dédié puisque c'est le composé principal de cette thèse.

1.1.4. Détection optique des polarons magnétiques dans l'EuTe

Un des problèmes avec l'EuB₆ est sa phase ferromagnétique. Comme l'indique le deuxième article de cette thèse, il y a présence de fluctuations ferromagnétiques qui, en présence de polarons magnétiques, est accentuée. De plus, les signaux ont la même dépendance du vecteur d'onde, ce qui complique la tâche d'identification de la longueur de corrélation des polarons magnétiques. Un autre système intéressant à étudier est l'EuTe. Dans ce système, la matrice

de fond est antiferromagnétique, ce qui rend la tâche plus facile pour observer les polarons magnétiques. Ce matériau a la même structure cristalline que l'EuB₆ et les polarons magnétiques ont été observés avec des méthodes optiques. L'EuTe se distingue des autres composés dans la famille des chalcogènes d'euporium puisqu'il possède une transition antiferromagnétique à basse température. De plus, il devient isolant lorsque refroidi sous sa température de Néel, $T_N=9.6$ K, en accord avec la théorie de Calderon *et al*[10]. Alors, la présence de polarons magnétiques est-elle possible dans ce système. Et bien, oui. De multiples études en optique ont été faites par le groupe brésilien de Henriques *et al*. [12, 13, 14, 15]. Ces recherches se concentrent sur le spectre de photoluminescence(PL) et de l'absorption. Pour la PL, ils observent que l'énergie d'émission de la ligne zéro-phonon de luminescence(ZPL) varie selon la température et le champ magnétique appliqué (Figure 1.5). En particulier, le spectre est manquant à proximité de la température de Néel. Le fait intéressant est la saturation du spectre lorsqu'un champ magnétique est appliqué. Ils observent que l'énergie de ZPL dépend linéairement du champ magnétique jusqu'à saturation à 7 T.

Avec un modèle théorique décrivant le gap d'absorption et l'ajout d'un paramètre d'interaction d'échange entre les spins localisés des électrons f et l'électron photo-excité, ils peuvent en conclure que les polarons magnétiques ont une taille $R \approx 3.2a$ (a est la taille de la maille cubique). Ils en déduisent aussi que cette taille n'est pas affectée par la température jusqu'à plus de 10 fois T_N . Cependant, l'énergie d'échange est modifiée avec l'augmentation de la température, ce qui leur permet d'observer des polarons magnétiques à une température de 150 K. Ces polarons sont toutefois présents grâce à l'exposition du système à un faisceau de photons ou un faible champ magnétique. C'est avec ce principe qu'ils réussirent à induire une magnétisation à si haute température. Alors, ces polarons magnétiques sont-ils présents sans cette exposition? Des expériences SANS pourraient permettre de mesurer la présence de ces structures dans le système. Toutefois, avec un manque d'anomalie dans les données thermodynamiques et magnétiques semble contraindre la formation de polarons magnétiques par photo-émission seulement et application d'un champ magnétique.

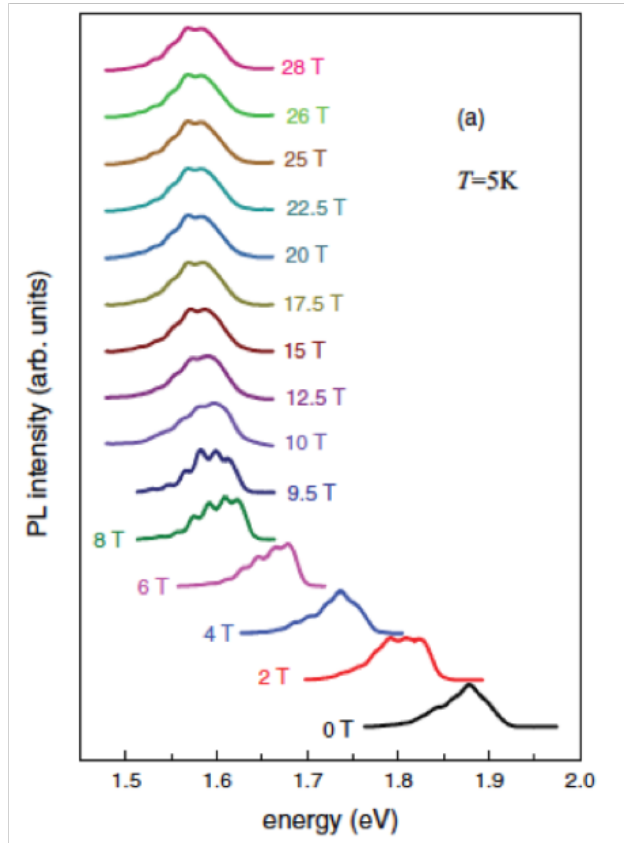


FIGURE 1.5. Intensité de la photoluminescence versus énergie dans l’EuTe à 5 K en dessous de T_N . [13]

1.2. Littérature sur la phase nématique quantique

Comme nous avons trouvé une coexistence d’une phase nématique avec les polarons magnétiques, cette section introduit le concept de phase nématique et des exemples de systèmes similaires à l’EuB₆.

La phase nématique est caractérisée par un fluide électronique qui brise spontanément une symétrie de rotation de l’Hamiltonien tout en préservant sa symétrie de translation. Par exemple, dans un système avec une symétrie de rotation d’ordre 4 (C_4) dans l’état normal, il y aura une symétrie d’ordre 2 (C_2) dans l’état nématique. Dans sa forme classique, un cristal liquide est formé de molécules organiques en forme de bâtonnets. Dans sa forme normale, chaque bâtonnet est aligné de façon aléatoire dans le liquide. La phase nématique apparaît lorsque les molécules s’alignent plus ou moins dans la même direction, formant un ordre à longue portée. Contrairement à l’ordre dans un cristal, l’ordre dans les cristaux liquides n’est pas périodique. Au contraire des cristaux liquides classiques, la phase quantique provient

d'un système fortement corrélé avec des électrons comme particules ponctuelles avec des interactions sphériques. Cette phase est alors très différente de sa contrepartie classique. Un point important de la phase nématique quantique est sa coexistence fréquente avec d'autres phases quantiques comme l'ordre magnétique ou supraconducteur. Ce chapitre met de l'avant quelques systèmes dans lesquels une phase nématique a été observée et qui sont prometteurs pour tenter d'expliquer les phénomènes dans l'EuB₆.

1.2.1. Le GaAs

L'effet Hall nématique est particulier puisque malgré la symétrie du système, il y a une anisotropie dans la résistance longitudinale. Le système est un gaz d'électrons en 2D avec une haute mobilité ($\mu \approx 10^7$ cm²/Vs) qui peut être réalisé dans le GaAs. Ce système est déjà connu pour avoir un effet Hall fractionnaire à bas niveau ν de Landau [2, 3]. Toutefois, la nématicité apparaît pour les niveaux de Landau $\nu > 2$, plus précisément pour $\nu = 9/2, 11/2, 13/2$ et $15/2$. Pour la valeur de $9/2$, la différence entre les directions $(1\bar{1}0)$ et (110) est de plus d'un facteur de 100 (voir figure 1.6). Cette différence est anormale puisque les deux directions sont équivalentes au niveau du cristal. Plusieurs théories ont été mises de l'avant pour tenter d'expliquer ce phénomène. Koulakov et al [16, 17] et Moessner & Chalker [18] ont démontré avec l'analyse Hartree-Fock des électrons en 2D dans les hauts niveaux de Landau que l'état fondamental du système était un ordre avec rayures. Donc, à cause des interactions coulombiennes, un système homogène devient électroniquement inhomogène. Cet ordre est considéré comme un état d'onde de densité de charges (CDW) unidirectionnelle et il apparaît à cause du changement dans la force de Coulomb à courte portée. L'ordre CDW n'est pas un état nématique en général, ce qui rend ce système plus intéressant. L'analyse faite démontre que cet ordre devrait apparaître vers le milieu du troisième niveau de Landau et dans un niveau fractionnaire. C'est ce qui se passe dans le GaAs. De plus, le manque d'anisotropie aux niveaux plus bas vient du fait que les fluctuations quantiques détruisent l'état CDW. Les différentes expériences sur le système mettent de l'avant le fait que la conductivité le long des rayures est bien plus élevée que celle pour traverser vers une autre rayure. Cela indique que le transport électronique se fait selon $(1\bar{1}0)$ et que les rayures sont selon (110) . C'est pourquoi la résistance est bien plus grande dans la direction perpendiculaire aux rayures. Toutefois, après de multiples recherches sur ce système [19], le paramètre d'ordre n'a pas encore été identifié.

Par contre, un calcul de l'aimantation du système 2D XY démontre une forte ressemblance à la dépendance de la résistivité en $(1\bar{1}0)$ dans le système Hall nématique[20].

1.2.2. Le $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ est un oxyde intermétallique fortement corrélé. Dans la même famille, on y retrouve le supraconducteur, Sr_2RuO_4 et les ferroaimants itinérants, SrRuO_3 et $\text{Sr}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$. Le $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ manifeste une phase nématique avec une brisure de symétrie entre 7.8 T et 8.1 T[21]. Cette brisure de symétrie est électronique puisque des mesures de diffraction de

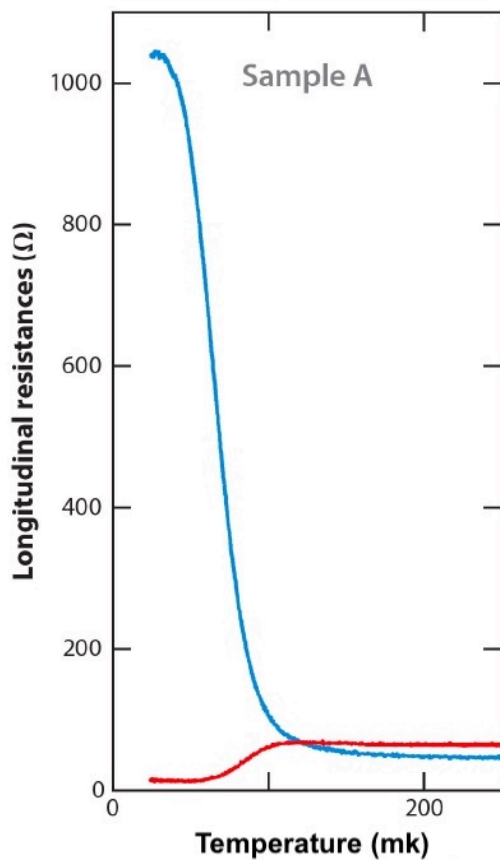


FIGURE 1.6. Résistance longitudinale du GaAs versus température pour le niveau $\nu = 9/2$ avec le courant dans la direction (110) en rouge et $(1\bar{1}0)$ en bleu.[19]

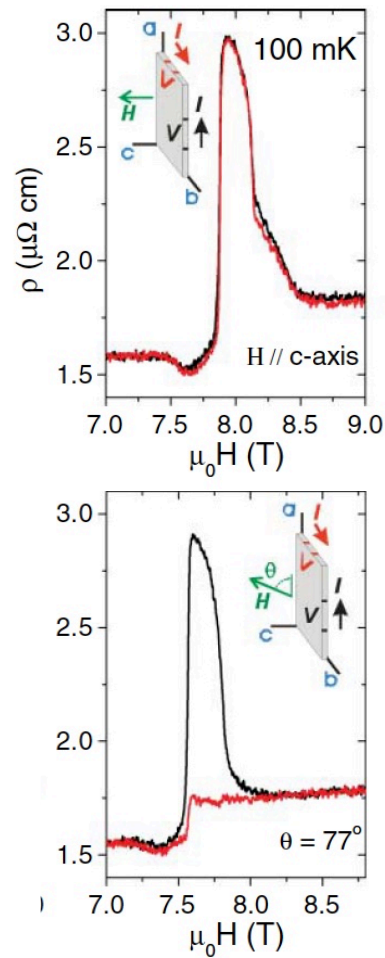


FIGURE 1.7. Résistivité du $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ versus le champ appliqué pour différentes orientations du champ à une température de 100 mK. [21]

neutrons ont été faites sur le système et aucun changement majeur dans les paramètres de maille et dans la structure n'a été observé[21]. Ce système ressemble beaucoup au précédent, ce qui porte à croire que le cas nématique dans le GaAs serait plus général qu'on le pense. Plusieurs mesures thermodynamiques ont identifié la région nématique qui serait lié à un comportement critique quantique. Le méta-aimant itinérant $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ montre des preuves d'une nouvelle classe de point critique quantique. Ce phénomène apparaît lorsque le point final critique, terminant une ligne de transitions de premier ordre, est abaissé vers la température zéro par l'application d'un champ magnétique[22]. Le $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ a une structure cristalline tétragonale, alors la direction (100) et (010) sont équivalentes. La figure 1.7 montre la différence dans la résistivité électrique lorsque le champ magnétique est dans le plan et lorsque l'angle est de 77° qui montre la plus grande différence entre les deux axes équivalents. Par contre, rien ne porte à croire que cet angle concorde avec une limite d'une phase quantique. On pourrait postuler la création des domaines magnétiques dans le système. Par contre, les données de susceptibilité démontrent une invariance dans les données lors du changement de la forme de l'échantillon. Ce qui indique une absence de démagnétisation et contredit l'hypothèse de formation de domaines. Avec des résultats de susceptibilité, de diffraction de neutrons et de résistivité, tout porte à croire que le système $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ manifeste une phase d'anisotropie d'un fluide d'électrons corrélés lorsqu'on approche un point critique quantique.

1.2.3. Les supraconducteurs à base de fer

La famille des supraconducteurs à base de fer est découverte en 2008 par le groupe d'Hosono.[23]. Un des aspects intéressants des supraconducteurs à base de fer est la proximité entre l'état supraconducteur et l'état magnétique à rayures, ce qui porte à croire que les fluctuations magnétiques jouent un rôle essentiel dans l'apparition de la supraconductivité. Dans le diagramme de phase (voir figure 1.8) pour la famille de supraconducteurs à base de fer BaFe_2As_2 , on observe une autre phase distincte que celle magnétique, la phase nématique. Cette phase nématique est observée seulement lors de la substitution de cobalt dans le système. Plusieurs données expérimentales mettent en évidence le caractère électronique de la transition entre la symétrie tétragonale et celle orthorhombique.

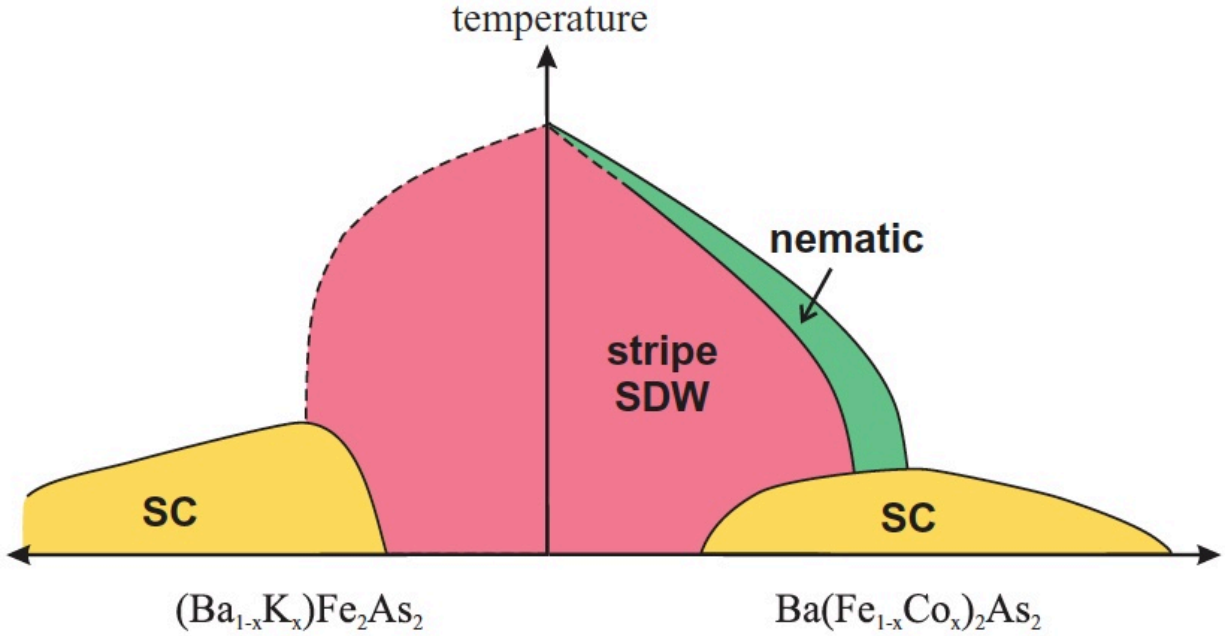


FIGURE 1.8. Diagramme schématique de phase de la famille de supraconducteurs à base de fer BaFe_2As_2 [24]

Premièrement, il y a une anisotropie dans la résistivité ($\rho_{\text{anis}} = \rho_{xx} - \rho_{yy}$) lors de l'application d'un stress à la maille(δ)[25]. Cette différence n'est pas seulement proportionnelle au paramètre de stress δ , il y a divergence dans les données $\partial\rho_{\text{anis}}/\partial\delta$ [24]. Cette anisotropie a aussi une dépendance non triviale au dopage et au désordre [26]. Ce qui est une des plus grandes évidences que la transition nématique est électronique. D'autres évidences proviennent d'expériences de spectroscopie ARPES (*angle resolved photoemission electron spectroscopy* en anglais)[27]. Dans cette expérience, l'équipe commence avec un cristal à plusieurs domaines où la structure électronique est un mixte des directions Γ -X et Γ -Y de la zone de Brillouin. Ce qui rend les deux directions interchangeable. Par la suite, en appliquant un stress unidirectionnel, ils sont capable d'observer un seul domaine. Dans ce cas, la structure électronique est distincte dans les deux directions, bisant alors la symétrie d'ordre 4. De plus, il y a aussi une anisotropie dans la dispersion des bandes entre les deux directions. Dans une autre expérience, on observe une différence dans la susceptibilité magnétique uniforme χ_{xx} et χ_{yy} mesurée à l'aide d'un magnétomètre à mesure de torsion (*torque magnetometry* en anglais)[28]. Cette technique permet de mesurer la différentielle d'énergie libre en fonction du déplacement angulaire. Les mesures enregistrées seront dépendantes de la susceptibilité dans

une direction donnée. Le moment de torsion ($\tau_{2\phi}$) sera zéro si la susceptibilité $\chi_{xx} = \chi_{yy}$ ou que $\chi_{xy} = 0$. Alors, une brisure de symétrie apparaît lorsque la mesure est non zéro. C'est ce qui est observé sous T^* . Ils constatent une oscillation d'ordre 2, ce qui indique que $\chi_{xx} = \chi_{yy}$ et que $\chi_{xy} \neq 0$, et que la nématicité est dans la direction tétragonale (110).

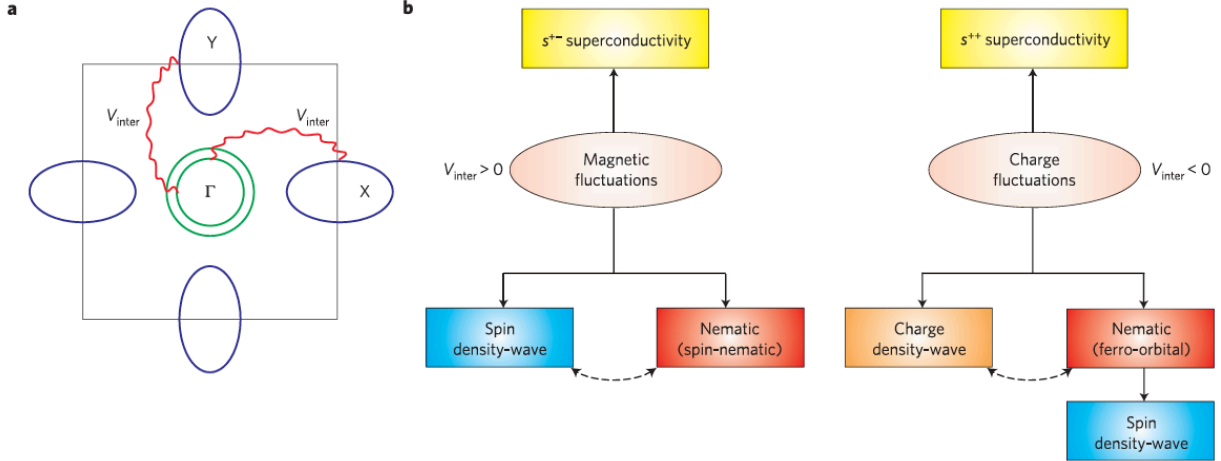


FIGURE 1.9. a) La surface de Fermi schématique est présentée avec des poches de trous (lignes vertes) au centre (Γ) de la zone de Brillouin et des poches d'électrons (lignes bleues) centrées à $X = (\pi, 0)$ et $Y = (0, \pi)$. V_{inter} est l'interaction entre les poches. b) Description schématique des deux différents scénarios discutés dans le texte. [24]

Deux scénarios possibles sont mis de l'avant pour tenter d'expliquer la provenance du caractère électronique de la transition de phase nématique[24]. De plus, ces scénarios doivent satisfaire non seulement la phase nématique, mais aussi le magnétisme et la supraconductivité. Les deux possibilités découlent de l'approximation des porteurs de charges itinérants. C'est-à-dire que les états électroniques de basse énergie se trouvent, pour les trous, au centre de la maille carré des atomes de fer et pour les électrons, à la frontière de la zone de Brillouin comme le démontre la figure 1.9a. La différence entre les deux scénarios vient du signe de l'interaction entre les poches d'énergie de Fermi et produira au final deux états supraconducteurs différents. Premièrement, dans le scénario magnétique, les fluctuations de spins causés par un potentiel répulsif ($V_{\text{inter}} > 0$) donnent lieu à la fois à la nématicité et au magnétisme. Par la suite, les fluctuations de spin cumulent à \mathbf{Q}_X et \mathbf{Q}_Y ce qui améliore fortement la répulsion inter-poche qui devient plus grande que la répulsion intra-poche. Dans cette situation, le système est connu pour développer une supraconductivité non conventionnelle s^{+-}

dans laquelle les fonctions du *gap* ont un signe différent dans les poches de trou que dans les poches d'électrons. Le deuxième scénario est analogue au premier avec la différence que le potentiel est attractif. Alors, c'est la susceptibilité des charges qui sera affectée. Toutefois, il n'est pas clair si ce scénario lie le magnétisme à la nématicité. Pour la supraconductivité, le scénario orbital implique que le l'interaction entre les poches est attractif et plus important. Une fois que l'interaction dépasse la répulsion intra-poche, le système développe une instabilité vers un état conventionnel s^{++} où les fonctions du *gap* ont le même signe dans toutes les poches.

Ces deux scénarios sont possibles et concordent avec les données expérimentales. Le point important à retenir est le lien entre la phase nématique et l'état supraconducteur, qui à ce jour, n'est pas tout à fait compris. C'est pourquoi la recherche pour tenter de relier ces deux phénomènes est requise.

1.2.4. Supraconducteurs à haute température

Un autre système intéressant est le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ puisqu'il n'y a pas de transitions structurales comme dans les autres membres de cette famille et le dopage en oxygène permet de facilement modifier la densité de porteurs de charges. De ce fait, il est possible de mieux identifier les phénomènes macroscopiques. Dans ce système, une grande anisotropie dans la résistivité de l'axe a et b est présente bien au-dessus de la température de transition de supraconductivité T_C . Cette anisotropie pourrait être considérée comme normale puisque la structure du système est orthorhombique ($a \neq b \neq c$). Toutefois, l'anisotropie est bien trop grande pour venir seulement de la structure. L'hypothèse d'une phase nématique est soulevée pour tenter d'expliquer ce surplus d'anisotropie. Plusieurs expériences ont été faites pour vérifier cette hypothèse. La première a été de faire des mesures de transport qui sont présentées dans la figure 1.10[29]. Tout d'abord, à haute température, il n'y a pas de déviation discernable de la structure orthorhombique de sorte que l'anisotropie faiblement dépendante en température peut être identifiée comme une conséquence de la structure cristalline. Tandis que le surplus d'anisotropie avec une forte dépendance en température, sous une transition bien définie, seront associées à l'ordre nématique électronique.

L'autre expérience faite sur ce système est la diffraction inélastique de neutrons[30]. Cette technique est utilisée pour mesurer la dynamique des moments magnétiques. Dans ce

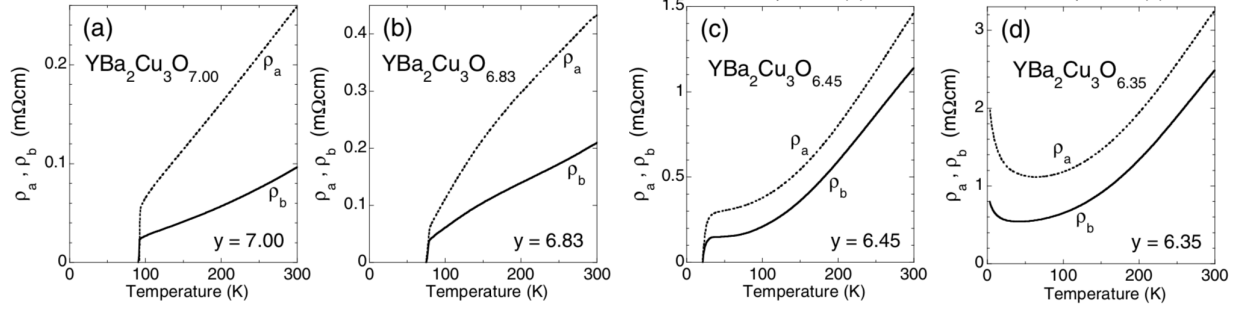


FIGURE 1.10. Résistivité du $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ dans les directions a et b versus la température pour différents dopages en oxygène. [29]

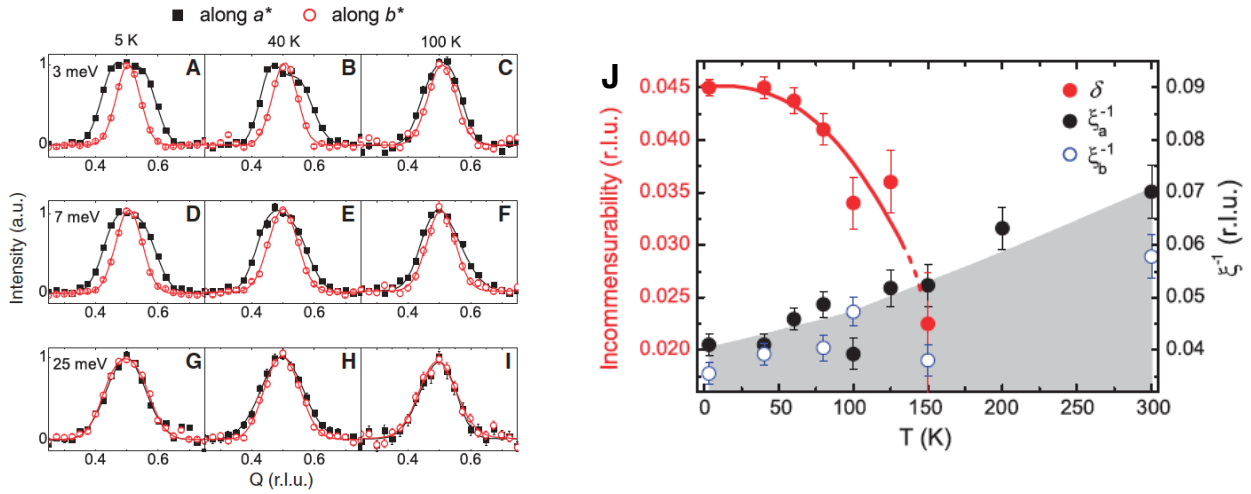


FIGURE 1.11. A-I) Diffraction de neutrons inélastiques. Évolution en température pour l'intensité (*arbitrary units*) en direction a^* en noir et en direction b^* en rouge ($Q=0.5$ relative lattice unit). Les lignes solides représentent l'ajustement d'une courbe Gaussienne pour obtenir l'incommensurabilité et les longueurs de corrélation inverse. J) Incommensurabilité (δ) en rouge qui mesure le déplacement du pic nématique par rapport au pic central versus la température. Inverse de la longueur de corrélation en noir (ξ_a^{-1}) et en bleu (ξ_b^{-1}) versus la température. La zone grise est lorsque l'incommensurabilité est plus petite que l'inverse de la corrélation, ce qui n'est pas physique dans ce contexte. [30]

cas-ci, l'intensité de la corrélation des spins est mesurée dans la direction $(h00)$ et $(0k0)$. On constate que l'ordre nématique apparaît seulement sous des énergies de transfert de 7 meV (voir figure 1.11A-I). Un ajustement de courbe à l'aide d'une distribution gaussienne centrée à $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF} \pm (\delta, 0)$ est effectuée pour chaque pic. Le facteur δ est incommensurabilité

et, comme le démontre la figure 1.11, se comporte comme un paramètre d'ordre. Ces deux expériences démontrent la présence d'une phase nématique électronique sous la majorité de la phase pseudo-gap du $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$.

1.3. L'EuB₆ : croissance, propriétés électroniques et phase ferromagnétique

Les études sur l'EuB₆ commencent dans les années 1980 avec les analyses de la structure électronique et des propriétés électriques et magnétiques du système[32]. Il est proposé que les polarons magnétiques pourraient expliquer la présence de la grande magnétorésistance dans le système. Ce n'est pas avant la fin des années 1990 qu'on commence à comprendre un peu plus la dynamique du système et son lien avec les polarons magnétiques[33, 34]. L'EuB₆ est un cristal avec une symétrie cubique simple (Pm-3m) (voir figure 1.12). Il y a une transition de phase ferromagnétique à $T_C=12.6$ K[35]. De plus, autour de $T_M \approx 15$ K, on observe une augmentation de la résistivité, suivie d'une diminution drastique comme le démontre la figure 1.14a. Cette diminution est anormale puisqu'elle fait plus qu'une magnitude. De plus, ce changement de résistivité ne se manifeste pas à T_C , comme il se devrait dans un ferroaimant conventionnel, mais quelque degrés plus hauts à T_M .

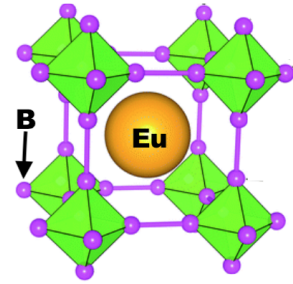


FIGURE 1.12. Structure de l'EuB₆[31].

1.3.1. Croissance

La croissance se fait par la fonte des éléments purs. Ceux-ci, dans un ratio stoechiométrique prédéterminé, ont été placés dans un creuset d'Al₂O₃ avec la quantité 50 :1 d'aluminium pur qui agit comme solvant au flux. Par la suite, le creuset est chauffé à 1450°C pendant 10h et puis refroidi de 5°C/h jusqu'à 600°C. Ensuite, l'aluminium est dissout dans une solution de NaOH pour en obtenir seulement les cristaux d'EuB₆. Les cristaux sont de l'ordre du mm³(voir figure 1.13a). Pour les expériences de diffraction de neutrons, il faut faire une mosaïque de ces cristaux pour obtenir le plus de signaux possible puisque l'euporium est un grand absorbeur de neutrons. La mosaïque utilisée pour une expérience à ILL est montrée à la figure 1.13b. Tous les morceaux sont alignés dans la même direction pour que

l'axe (100) soit parallèle au faisceau de neutrons. Les morceaux sont collés à la main avec du vernis GE 7031 sur une mince plaque d'aluminium pur. L'imagerie en transmission a été faite pour s'assurer que la transmission était la plus homogène possible. Comme le démontre la figure 1.13c, il est difficile d'obtenir des morceaux d'épaisseur égale.

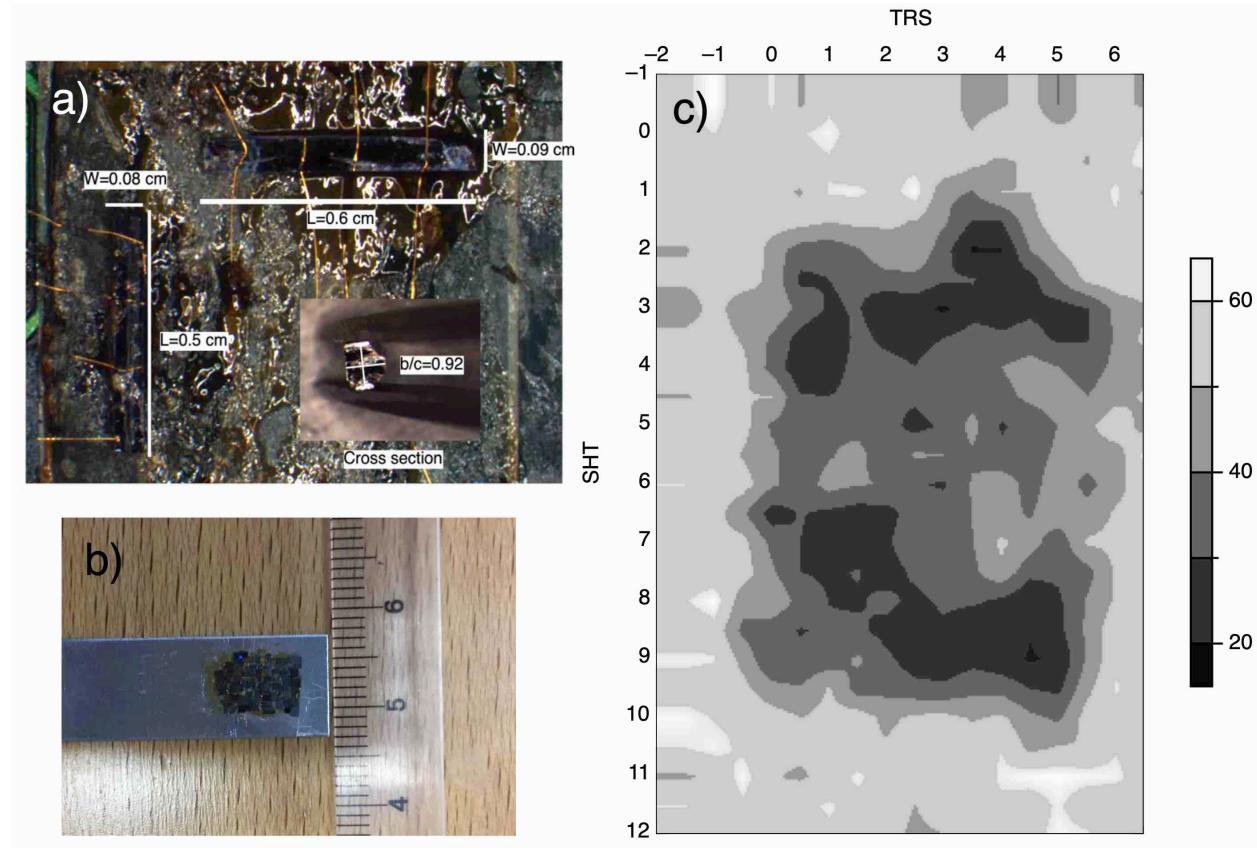


FIGURE 1.13. a) Cristaux d'EuB₆ et ses dimensions. Utilisés pour les mesures de AMRO b) Mosaïque de EuB₆ utilisée pour les études de SANS à ILL en septembre 2018. c) Imagerie en transmission sous neutrons de la mosaïque. TRS est la position horizontal et SHT la position vertical (en mm).

1.3.2. Propriétés électroniques

L'une des caractéristiques les plus fascinantes de l'EuB₆ est sa forte magnétorésistance négative. Cette magnétorésistance ne suit que la dépendance attendue pour un métal à basse température, sous la transition T_C (voir figure 1.14b). Une théorie apportée par Majumdar et Littlewood [37] relie la dépendance de la magnétorésistance de certains ferroaimants métalliques et de semiconducteurs magnétiques dopés à leur densité de porteurs de charges. Cette

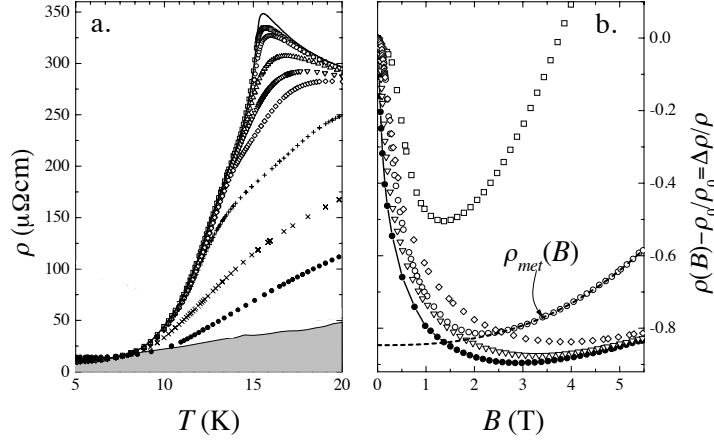


FIGURE 1.14. a.) La dépendance en température(T) de la résistivité ρ dans l'EuB₆ à zéro champ (trait solide) et en champ B de 0.021 T (\square), 0.029 T (\circ), 0.05 T (\triangle), 0.076 T (∇), 0.1 T (\diamond), 0.2 T (+), 0.5 T (\times) et 1 T (\bullet). La partie grise démontre la limite de la contribution des phonons à ρ . b.) La magnétorésistance normalisée $(\rho(B) - \rho_0)/\rho_0 = \Delta\rho/\rho$ à 10 K (\square), 13 K (\circ), 15.5 K ($-\bullet-$), 17.5 K (∇) et 20 K (\diamond). La ligne en barre (- -) démontre la dépendance en champ de la partie métallique de la magnétorésistance $\rho_{met} = \rho_{B=0} + aB^2$ pour les données à 13 K, qui ont été utilisées pour extraire la partie magnétique $\rho_{mag} = \rho(B) - \rho_{met}$. (Figures provenant de [36])

dépendance est dérivée à partir du taux de diffusion des porteurs de charges qui dépend de la section efficace de diffusion différentielle des spins magnétiques. Par la suite, avec une approximation de la susceptibilité magnétique dans la phase paramagnétique, ils obtiennent la relation suivante pour un champ appliqué non nul, considérant la contrainte vue dans la section 1.1.3 que $n\xi^3 \ll 1$ (équivalent à $k_F\xi(T) \gg 1$) :

$$\Delta\rho/\rho = C (m/m_{sat})^2 \approx (1/2k_F\xi_0)^2 (m/m_{sat})^2. \quad (1.8)$$

où C est le coefficient utilisé dans la figure 1.15, m est l'aimantation, m_{sat} est la valeur de l'aimantation à saturation, k_F est le vecteur d'onde à l'énergie de Fermi et ξ_0 est la longueur de corrélation. Pour un gaz d'électrons libres, le coefficient est de $C = (38n^{2/3}\xi_0^2)^{-1}$ et le coefficient pour les composés étudiés dans l'article de Majumdar et Littlewood [37] suit plus au moins la courbe de $n^{-2/3}$. Pour l'EuB₆ la pente obtenue est de $C=75$ (Figure 1.16). La

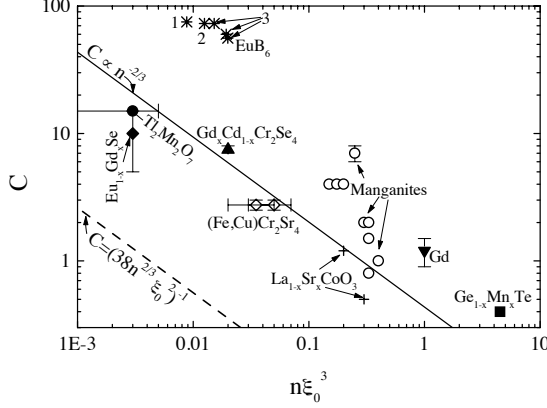


FIGURE 1.15. Valeurs expérimentales de C à partir de l'équation 1.8 versus la densité de porteurs pour des ferroaimants (symboles solide), manganites[37] et EuB_6 [36, 38, 39]. La provenance des différentes courbes est décrite dans le texte.(Figure provenant de [36]).

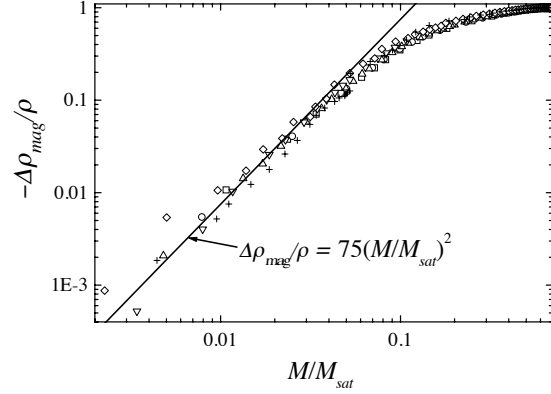


FIGURE 1.16. La partie magnétique de la magnétorésistance dans l' EuB_6 versus la magnétisation normalisée à 15.5 K (\square), 16 K (\circ), 17 K (\triangle), 18 K (∇), 19 K (\diamond) et 20 K ($+$). (Figure provenant de [36])

valeur obtenue dans la figure démontre une forte divergence avec le comportement proposé par Majumdar et Littlewood présenté dans la figure 1.15. La très grande différence entre ces coefficients et celui de l' EuB_6 indique que les phénomènes qui se produisent dans l' EuB_6 sont différents des composés indiqués dans la figure 1.15. La complexité de l'interaction du système avec les polarons magnétiques dans l' EuB_6 ajoute à l'importance de la recherche sur ce composé pour pouvoir comprendre les phénomènes des polarons magnétiques ainsi que la grande magnétorésistance.

La présence de polarons magnétiques dans l' EuB_6 mène à une inhomogénéité dans le système. En 2018, l'effet tunnel dans l' EuB_6 a démontré la présence d'une telle inhomogénéité[40] (figure 1.17). Ces mesures impliquent que les polarons magnétiques dans l' EuB_6 ont une grosseur approximative de 3-4 nm à 20 K. Comme les polarons magnétiques dans l' EuB_6 sont des zones avec des spins alignés ferromagnétiquement, leur taille peut aussi être mesurée avec une technique de diffraction de neutrons. Ces zones ne sont pas statiques ce qui donne une signature caractéristique dans le patron de diffraction. Plus de détails sont présentés dans l'article «*Strong polaron–spin fluctuations drive the insulator–semimetal transition in low-density electron gases*» pour plus de détails.

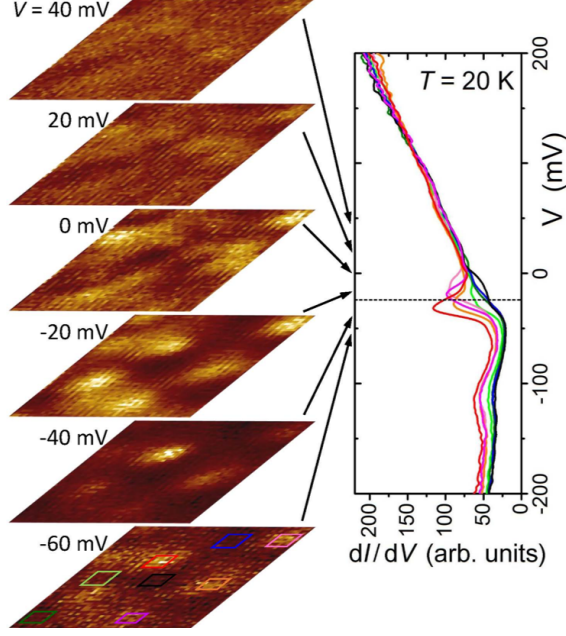


FIGURE 1.17. Microscopie à effet tunnel (STM) sur la surface de l'EuB₆ à différents voltages pour une température de 20 K à champ nul. Les couleurs des courbes correspondent aux différentes régions de la surface.[40]

1.3.3. La phase ferromagnétique dans l'EuB₆

Pour bien comprendre le rôle des polarons magnétiques dans l'EuB₆, il faut d'abord bien comprendre la phase ferromagnétique présente à basse température. Pour déterminer la frontière de la phase ferromagnétique dans l'EuB₆ nous avons mesuré la chaleur spécifique. Malheureusement, la forme du pic ne permet pas d'identifier la température critique puisque la transition s'étend sur plusieurs degrés (voir figure 1.19) .

Pour trouver celle-ci, nous avons dû affiner un modèle théorique aux données. La transition ferromagnétique du EuB₆ se laisse facilement modéliser par une transition d'un champ moyen. L'aimantation à champ moyen d'un ferroaimant est[41] :

$$M = M_0 B_S(x), \quad (1.9)$$

où M_0 est valeur de l'aimantation à la saturation et

$$B_S(x) = \frac{2S+1}{2S} \coth\left(\frac{2S+1}{2S}x\right) - \frac{1}{2S} \coth\left(\frac{1}{2S}x\right), \quad (1.10)$$

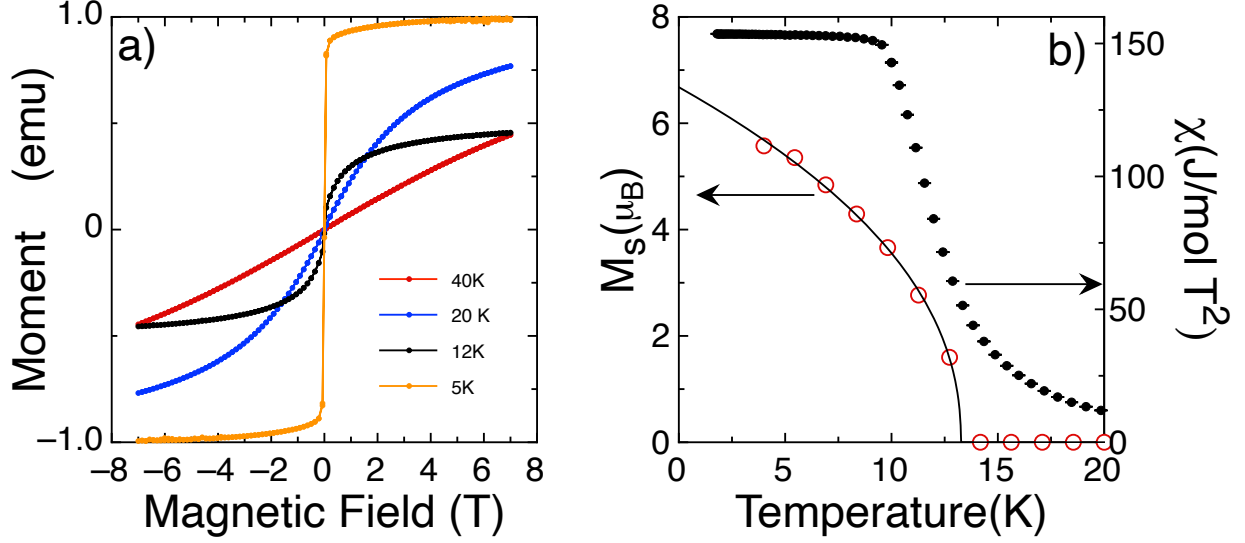


FIGURE 1.18. a) Magnétisation versus champ magnétique appliqué à différentes températures. b) Magnétisation calculé à partir du tracé d'Arrott (voir figure 4.8) et susceptibilité à 0.01 T versus température. La courbe est un ajustement de l'équation de la magnétisation 1.9.

où, S est le spin et

$$x = \frac{2\mu_B S N_W M}{k_B T}, \quad (1.11)$$

où $N_W = T_C/C$ et C est la constante de Curie. La partie magnétique de la chaleur spécifique est reliée à la dérivée de l'aimantation :

$$C_{mag} = -\frac{3R}{2} \frac{S}{(S+1)} \frac{d}{d\left(\frac{T}{T_C}\right)} \left(\frac{M}{M_0}\right)^2. \quad (1.12)$$

Cette équation auto-cohérente peut être calculée numériquement et différents paramètres comme la température de transition et la valeur de la saturation peuvent être trouvés en ajustant avec la courbe. La figure 1.18b) montre bien que la magnétisation est décrite par l'équation 1.9. Des exemples à différents champs sont présentés à la figure 1.19. Les températures de transition pour plusieurs champs magnétiques ont été utilisées pour marquer la frontière entre la phase paramagnétique et ferromagnétique dans le diagramme de phase (figure 4.1).

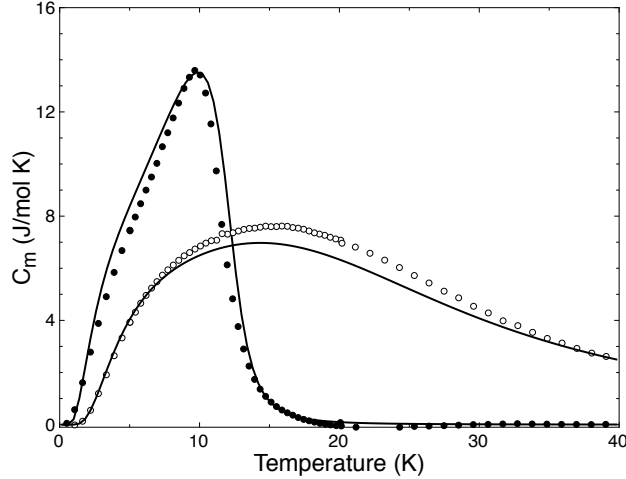


FIGURE 1.19. Chaleur spécifique de l’EuB₆ versus température dans un champ magnétique de 0.1 T (cercle fermé) et 5 T (cercle ouvert). Les lignes pleines sont les courbes ajustées de l’équation 1.12.

1.4. La spintronique

La grande magnétorésistance du l’EuB₆ associé aux polarons magnétiques ouvre des avenues pour de nouvelles applications en spintronique. La section qui suit introduit le besoin de cette nouvelle technologie et son fonctionnement.

Avec les avancées dans le domaine des ordinateurs quantiques, les mémoires internes et externes des ordinateurs doivent être repensées pour pouvoir emmagasiner le flux de données de ce nouveau type d’ordinateur. Actuellement, les principales composantes logiques des ordinateurs sont les transistors. Le transistor est inventé en 1947 par des scientifiques du Laboratoire Bell. Depuis l’invention du transistor, les domaines de l’électronique et l’informatique battent leur plein. Toutefois, la fabrication de transistors de plus en plus petits et performants ne peut plus garder le rythme d’il y a 30 ans. Une alternative qui est envisagée : la spintronique.

La spintronique est une nouvelle approche technologique qui utilise le spin de l’électron à la place de sa charge pour encoder de l’information. Cette nouvelle technique est possible grâce à l’interaction dépendante du spin des porteurs de charges avec leurs propriétés magnétiques des matériaux[42, 43]. C’est alors le spin de l’électron qui est manipulé et non sa charge comme dans l’électronique conventionnelle. Les dispositifs utilisant la spintronique

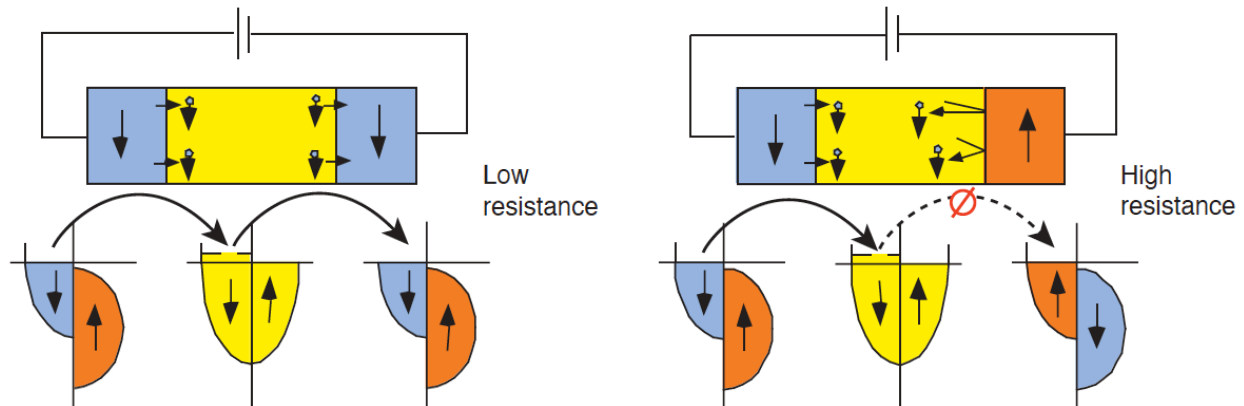


FIGURE 1.20. Représentations schématiques du transport de spins polarisés à partir d'un métal ferromagnétique, à travers un métal normal, et dans un second métal ferromagnétique pour des moments magnétiques alignés et anti-alignés. \emptyset représente un canal non autorisé.[43]

promettent plusieurs avantages en comparaison aux transistors basés sur des semi-conducteurs conventionnels; ils réduisent la consommation d'énergie électrique et possiblement, la différence entre la technologie par l'encodage des données et le traitement des données pourrait disparaître. Une des grandes révolutions en spintronique a été l'utilisation de la magnétorésistance colossale dans l'emmagasinage de mémoire. Ce principe utilise la superposition de couches minces ferromagnétiques et de couches non magnétiques comme l'illustre la figure 1.20. Lorsque les moments magnétiques des deux couches minces ferromagnétiques sont parallèles, la résistance est à son plus bas. Par contre, si les moments sont antiparallèles, la résistance est maximum. La direction des moments magnétiques est modifiable par l'application du champ magnétique externe. Ce type de dispositif est utilisé comme tête liseuse pour disques durs magnétiques.

De plus, la recherche actuelle se concentre sur les composés ferromagnétiques dans la fabrication de mémoire MRAM (*magneto-resistive random access memory* en anglais)[44]. La mémoire est emmagasinée dans des domaines magnétiques et le MRAM serait idéal par son débit, sa rapidité, sa capacité et sa consommation d'énergie moindre. Il n'y a pas de perte d'énergie en chaleur puisque les électrons ne bougent pas, ils font seulement changer d'orientation de spin. Plusieurs grandes compagnies telles que IBM et Sony s'intéressent à cette nouvelle technologie qui est présente depuis les années 90, mais celle-ci a de la difficulté

à s'imposer sur le marché dû aux avancées des mémoires flash et DRAM (mémoire vive dynamique). Les dernières années ont apporté une multitude de nouvelles recherches en spintronique, ce qui illustre bien le désir des scientifiques de perfectionner les techniques de stockage d'information.

C'est pourquoi il est important de continuer la recherche de matériaux qui combinent les propriétés d'un ferroaimant et celles des semiconducteurs. Dans les semiconducteurs magnétiques, ce sont leur magnétisme et leurs effets de magnétorésistance colossaux associés à la phase nématique qui peuvent jouer un nouveau rôle dans la spintronique. Cette nouvelle interaction entre les propriétés magnétiques et électroniques pourrait ainsi être exploitée pour des applications spintroniques.

1.5. Méthodes expérimentales

1.5.1. Diffraction de neutrons à petits angles (SANS)

C'est en 1932 que l'histoire commence : dans les laboratoires Cavendish à Cambridge, James Chadwick y découvre le neutron. Cette découverte entraînera plusieurs avancées dans le domaine des hautes énergies, de la physique des particules et des technologies nucléaires. Chadwick s'est vu remettre le prix Nobel de physique pour sa découverte en 1935[45]. Cette découverte mènera par la suite à la découverte de la fission nucléaire et à la production de la bombe atomique. Le premier à proposer la possibilité de diffraction grâce aux neutrons est Elsasser, un germano-américain. La première démonstration de diffraction furent faites par Halban et Preiswerk[46], de même que par Mitchell et Powers. L'expérience de Mitchell et Powers a été faite avec des neutrons provenant d'une source de radium-béryllium[47]. Dans cette expérience, ils ont pu observer la diffusion de Bragg sur un échantillon d'oxyde de magnésium. La même année, Bloch soumit un article à Physical Review pour leur indiquer la possibilité de sonder la structure magnétique grâce à la diffraction de neutrons[48].

Plus tard, Bloch démontrera que le neutron porte un moment magnétique de -0.68 fois celui du proton[49]. La première preuve d'antiferromagnétisme de Néel a été démontrée par diffraction de neutrons. Quelques années plus tard, au réacteur de Chalk River en Ontario, le Canadien Brockhouse construisit le premier spectromètre à trois axes pour la diffraction inélastique de neutrons. Il obtient le prix Nobel en 1994 pour sa contribution.

La diffraction de neutrons lents est très utile pour comprendre la structure et la dynamique de systèmes en matière condensée. Le neutron a typiquement une longueur de de Broglie de 1.8 Å[50], ce qui est de l'ordre des distances interatomiques. De plus, l'énergie typique utilisée, celle des neutrons «*thermal and cold*», est de l'ordre des excitations élémentaires en matière condensée. Puisque le neutron ne porte pas de charge, ceci lui permet de pénétrer encore plus l'échantillon. C'est pourquoi des cristaux de l'ordre du mm sont utilisés pour la diffraction de neutrons comparés aux rayons X où il est nécessaire que le cristal soit très petit, de l'ordre du micromètre. Tel que mentionné, le neutron porte un moment magnétique, alors il peut interagir avec les spins des électrons itinérants ou le moment magnétique d'atomes. On peut même polariser un faisceau de neutrons, ce qui permet d'obtenir de l'information encore plus précise sur des structures magnétiques. De plus, il est possible de sonder la structure cristalline ainsi que la structure magnétique avec des neutrons. Un désavantage de l'utilisation des neutrons est la faible intensité des sources de neutrons. Pour les neutrons ; on obtient 10^4 neutrons par mm^2 par secondes, comparativement à 10^{18} photons par mm^2 par secondes avec des rayons X. C'est pourquoi le temps d'acquisition est toujours plus long pour ce type d'expérience qui est aussi plus coûteux et moins accessible.

La diffraction à petits angles est introduite par André Guiner[51], par la suite plusieurs autres comme Debye[52] et Porod[53] ont contribué à son avancement théorique et expérimental jusqu'aux années 1960. Le but du SANS est de mesurer les microstructures variant de 1 nm à 1000 nm[54]. Également, il s'agit d'une technique très efficace pour étudier les structures magnétiques d'une grande variété de matériaux. Le fonctionnement est illustré dans la figure 1.21. Le processus commence avec un guide de faisceau qui dirige la source de neutron vers un sélectionneur de vitesse pour sélectionner la longueur d'onde. Par la suite, le faisceau est collimaté et éventuellement diffracte par l'échantillon. Les neutrons diffractés sont détectés par un multidétecteur d'hélium-3 en 2D. Le SANS est une technique élastique, ce qui signifie que :

$$\begin{aligned}
 k_i &= k_f = \frac{2\pi}{\lambda} & (1.13) \\
 \vec{Q} &= \vec{k}_f - \vec{k}_i \\
 |\vec{Q}| &= 2k \sin \theta \\
 Q &= \left(\frac{4\pi}{\lambda} \right) \sin \theta
 \end{aligned}$$

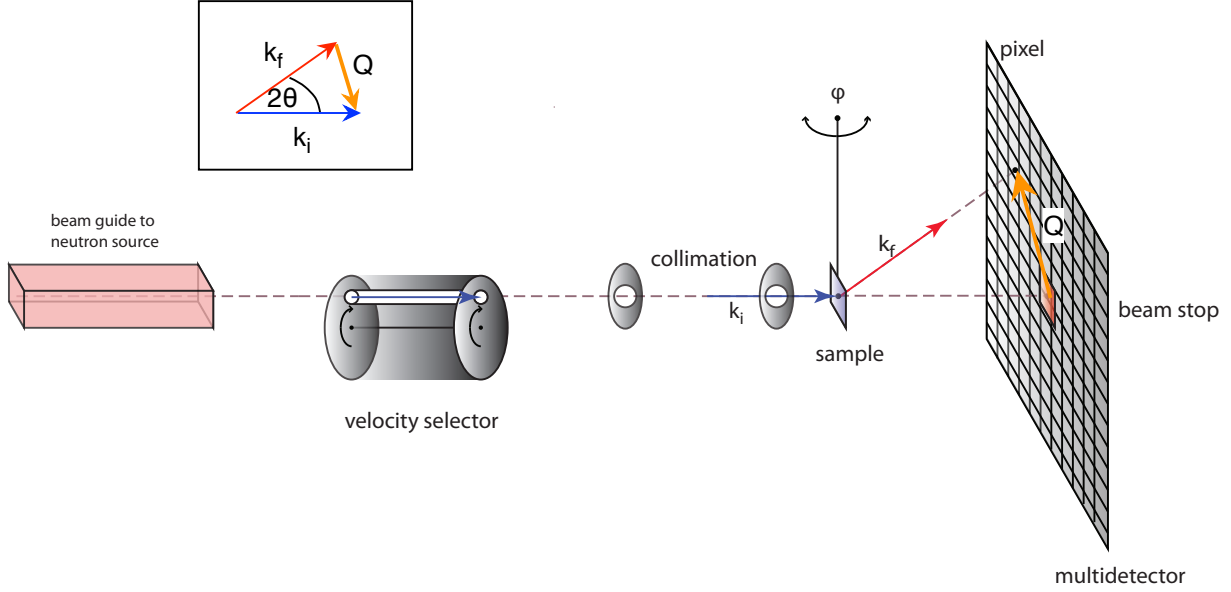


FIGURE 1.21. Schéma d'un instrument de diffusion de neutrons aux petits angles (SANS). Les neutrons sont produits (soit à l'aide d'un réacteur à l'Institut Laue Langevin ou d'une cible de spallation à l'Institut Paul Scherrer) et transportés vers l'instrument SANS via des guides de faisceaux. Un sélecteur de vitesse est utilisé pour sélectionner une longueur d'onde qui détermine la quantité de mouvement initiale \mathbf{k}_i . Le faisceau est ensuite collimaté à l'aide de deux ouvertures dans une géométrie sténopé standard. Les neutrons sont dispersés par l'échantillon, qui peut être tourné autour d'un angle ϕ , avant d'être détectés par un multi-détecteur bidimensionnel sensible à la position, fournissant des informations sur leur élan final \mathbf{k}_f . Le vecteur d'onde de diffusion est $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$. Un arrêt de faisceau est utilisé pour bloquer le faisceau de neutrons non diffusé afin d'éviter de surcharger le détecteur.

où λ est la longueur d'onde du faisceau, \vec{k}_i et \vec{k}_f sont les vecteurs d'onde incident et diffracté. Les distances sondées seront de l'ordre de $d = \frac{2\pi}{Q}$ et pour des petits angles $d \approx \frac{\lambda}{2\theta}$. Les neutrons utilisés sont alors des neutrons froids avec une longueur d'onde entre 0.5 nm et 2 nm. Ainsi les petits angles vont varier entre 0.1° et 10° et la grosseur des structures entre 1 nm et 300 nm. Pour la détection de structures mesoscopiques ($q \leq 1 \text{ nm}^{-1}$), le patron de diffraction à petits angles va suivre la loi de Porod, où $I(q) \propto q^{-4}$ [53]. L'ajout de fluctuations et de corrélations dans le système augmente la complexité du problème. La technique du SANS a été utilisée pour détecter les fluctuations magnétiques et les polarons magnétiques

dans l'EuB₆ et l'analyse est décrite dans l'article 2 «*Strong polaron–spin fluctuations drive the insulator–semimetal transition in low-density electron gases*».

1.5.2. Magnéto-résistance anisotrope (AMR)

En 1856, William Thomson, mieux connu sous le nom de Lord Kelvin, fait la première découverte de la magnéto-résistance ordinaire dans le nickel et le fer. Durant ces expériences sur le nickel, Lord Kelvin remarqua qu'il y a une différence dans les résistances perpendiculaire et parallèle. Il observe alors de la magnéto-résistance anisotrope. Les résultats démontrent une plus grande anisotropie dans le nickel que dans le fer, ce qui vient de la différente capacité d'induction des deux métaux. Cependant, la différence de résistance, dans le nickel par exemple, était de $\frac{1}{192}$ plus petite transverse au champ magnétique et $\frac{1}{144}$ plus grand longitudinalement[55].

Dans les alliages de nickel, on peut calculer la magnéto-résistance anisotrope spontanée. Il y a deux types d'anisotropie, celle qui est dite cristalline et l'autre qui est non-cristalline. La contribution de l'AMR non-cristalline est causée par la différence des composantes de la matrices de transfert lorsque l'impulsion est parallèle ou perpendiculaire à la magnétisation. Cette différence est associé au couplage spin-orbite. Cette démonstration a été faite par I. A. Campbell, A. Fert, et O. Jaoul (CFJ), en 1969[56]. La densité d'état pour les électrons de «spin-down» et «spin-up» dans le nickel n'est pas la même. Pour les «spin-up», seulement les électrons *s* de conduction sont accessibles, tandis que pour les «spin-down», il y a aussi les états *d* d'accessible. En l'absence de couplage spin-orbite et à des températures bien plus basses que celle de Curie, on peut mesurer la résistivité résiduelle causée par les impuretés. Celle-ci nous donne le paramètre $\alpha = \frac{\rho_{\downarrow}^0}{\rho_{\uparrow}^0}$ qui est fixe pour le nombre d'impuretés et indépendant de la température ou de la concentration. L'expression générale en tenant compte de la dépendance en température s'exprime comme suit :

$$\rho(T) = \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow} + \rho_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow})}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow} + 4\rho_{\uparrow\downarrow}}. \quad (1.14)$$

Par la suite, l'ajout de l'interaction du couplage spin-orbite à un modèle de liaisons fortes permet d'obtenir les coefficients de résistance suivants :

$$\begin{aligned}
\rho_{\text{sd}}^{\uparrow}(k_z) &= \frac{3}{2}\epsilon^2\rho' \\
\rho_{\text{sd}}^{\uparrow}(k_x) &= \frac{3}{4}\epsilon^2\rho' \\
\rho_{\text{sd}}^{\downarrow}(k_z) &= \left(1 - \frac{3}{2}\epsilon^2\right)\rho' \\
\rho_{\text{sd}}^{\downarrow}(k_x) &= \left(1 - \frac{3}{4}\epsilon^2\right)\rho'
\end{aligned} \tag{1.15}$$

où ρ' est la résistance causé par la diffusion des électrons «spin-down» de l'état s vers d en l'absence de couplage spin-orbite et $\epsilon = A/H_z^e$, où A est l'amplitude la perturbation spin-orbite et H_z^e est le champ d'échange. Pour obtenir l'effet de la perturbation spin-orbite sur la résistivité du matériau, il faut assumer que tous les ρ^{\downarrow} sont causés par la diffusion des états s-d, et aussi que la diffusion des magnons ne sont pas affectés par le couplage spin-orbite. De ce fait, on obtient :

$$\begin{aligned}
\rho_{\parallel}^{\uparrow} &= \rho_{\perp}^{\uparrow} + \gamma\rho_{\perp}^{\downarrow} \\
\rho_{\parallel}^{\downarrow} &= \rho_{\perp}^{\downarrow} - \gamma\rho_{\perp}^{\uparrow} \\
\rho_{\parallel}^{\uparrow\downarrow} &= \rho_{\perp}^{\uparrow\downarrow}
\end{aligned} \tag{1.16}$$

où $\gamma \simeq \frac{3}{4}\epsilon^2$, \parallel et \perp sont les directions de la magnétisation. Finalement, on peut obtenir la différence de résistivité en insérant l'équation 1.16 dans 1.14 :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) \frac{1}{\rho_{\perp}} = \frac{\gamma(\rho_{\downarrow} - \rho_{\uparrow})\rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow} + \rho_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow})} \tag{1.17}$$

et avec l'approximation à basse température, on obtient :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = (\alpha - 1)\gamma. \tag{1.18}$$

Pour des angles intermédiaires, θ , entre la direction du courant et la magnétisation, la résistivité suit la fonction suivante :

$$\rho(\theta) = \rho_{\perp} + (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) \cos^2 \theta \tag{1.19}$$

L'équation précédente est utile pour estimer l'anisotropie de la résistance en fonction des impuretés, de la température et de la concentration. Toutefois, ce modèle est très simpliste et n'explique pas complètement la physique des ferroaimants plus complexes comme ceux à demi-remplissage qui sont très primés pour la spintronique. Une théorie plus complexe

pour calculer le ratio AMR de métaux de transition 3d ferroaimant est mise de l'avant par Kokado *et al*[57]. Cette théorie s'ajoute à celle de CFJ et l'a rend plus générale. Elle examine l'anisotropie de différents ferroaimants dont le Fe, Co, Ni, Fe₄N, et les ferroaimants demi-métalliques. Le modèle inclut la diffusion d'inversion des spins. La résistivité pour une direction donnée ($\ell = \parallel$ ou \perp) est :

$$\rho_\ell = \frac{\rho_{\ell,\uparrow}\rho_{\ell,\downarrow} + \rho_{\ell,\uparrow}\rho_{\ell,\downarrow\uparrow} + \rho_{\ell,\downarrow}\rho_{\ell,\uparrow\downarrow}}{\rho_{\ell,\uparrow} + \rho_{\ell,\downarrow} + (1+a)\rho_{\ell,\uparrow\downarrow} + (1+a^{-1})\rho_{\ell,\downarrow\uparrow}} \quad (1.20)$$

avec

$$\rho_{\ell,\sigma} = \frac{m_\sigma^*}{n_\sigma e^2 \tau_{\ell,\sigma}}, \quad (1.21)$$

$$\rho_{\ell,\sigma\sigma'} = \frac{m_\sigma^*}{n_\sigma e^2 \tau_{\ell,\sigma\sigma'}}, \quad (1.22)$$

$$a = \frac{m_\downarrow^* n_\uparrow}{m_\uparrow^* n_\downarrow}, \quad (1.23)$$

où $\rho_{\ell,\sigma}$ est la résistivité de l'état de spin σ pour la configuration l , $\rho_{\ell,\sigma\sigma'}$ ($\sigma \neq \sigma'$) est la résistivité causée par le procédé d'inversion des spins de l'état de spin σ à celle de σ' pour la configuration l , n_σ (m_σ^*) est la densité d'état (la masse effective), $\tau_{\ell,\sigma}$ est le temps de relaxation de l'état σ dans la configuration l et $\tau_{\ell,\sigma\sigma'}$ est le temps de relaxation causé par le procédé d'inversion des spins de l'état de spin σ à celle de σ' dans la configuration l . La théorie permet de calculer l'anisotropie pour les métaux de transition 3d ferroaimant et obtient des quantités comparables à celles expérimentales.

Dans le cas de l'AMR cristalline, c'est la densité d'état ainsi que la structure cristalline qui déterminera la dépendance en angle de la résistivité[58]. Dans le cadre de ma recherche, la magnétorésistance anisotrope cristalline de l'EuB₆ peut être décrite par la formule de Chamber's[8] qui calcule la trajectoire des porteurs de charges autour de la surface de Fermi. Cette technique est décrite dans l'article «*Quantum nematic in a colossal magnetoresistance material*». La figure 1.22 illustre les deux types de mesures normalement faites en AMR. Deux expériences de AMR sur l'EuB₆ ont été faites avant la mienne. Une expérience, qui explorait l'effet du champ magnétique sur les oscillations à 50 K, regardait plus en détail les données de résonance des spins électroniques. Ils concluent que les mécanismes de relaxation des spins de l'Eu²⁺ impliquent les polarons magnétiques[59]. Ce qui démarque cette expérience à la nôtre est qu'aucune donnée à basse température n'est présentée. Un résumé

de conférence présente des données qui semblent démontrer des propriétés nématiques[60]. Toutefois, aucune conclusion dans cette direction n'est faite. Ils décrivent plutôt que la magnétorésistance est liée à la présence de polarons magnétiques. Ce qui les démarque de notre expérience est la différente orientation du courant, ils utilisent un courant dans la direction (110).

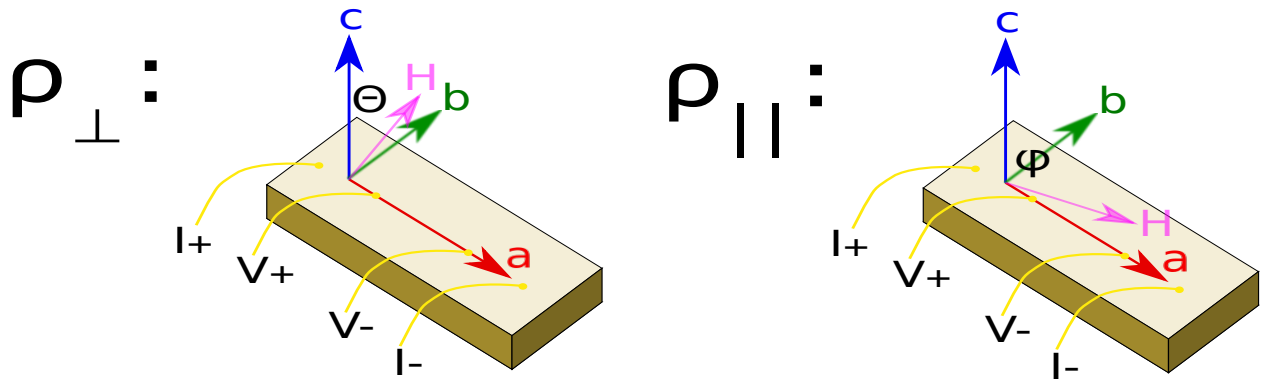


FIGURE 1.22. Diagramme des mesures de AMR. \mathbf{a} , \mathbf{b} et \mathbf{c} sont les vecteurs de la maille rectangulaire/carré. I représente le courant appliqué et V le voltage mesuré. \mathbf{H} représente le champ magnétique appliqué. θ et φ sont les angles entre l'axe \mathbf{c} et \mathbf{H} .

Bibliographie

- [1] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*. Wiley.
- [2] M. P. Lilly, K. B. Cooper, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, “Evidence for an Anisotropic State of Two-Dimensional Electrons in High Landau Levels,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, pp. 394–397, Jan 1999.
- [3] R. Du, D. Tsui, H. Stormer, L. Pfeiffer, K. Baldwin, and K. West, “Strongly anisotropic transport in higher two-dimensional Landau levels,” *Solid State Communications*, vol. 109, no. 6, pp. 389 – 394, 1999.
- [4] J. Schoenes, B. Frick, and O. Vogt, “Transport properties of uranium monochalcogenide and monpnictide single crystals,” *Phys. Rev. B*, vol. 30, pp. 6578–6585, Dec 1984.
- [5] S. Von Molnár and S. Methfessel, “Giant negative magnetoresistance in ferromagnetic $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Se}$,” *Journal of Applied Physics*, vol. 38, no. 3, pp. 959–964, 1967.
- [6] O. N. Tufte and E. L. Stelzer, “Magnetoresistance in heavily doped n -type silicon,” *Phys. Rev.*, vol. 139, pp. A265–A271, Jul 1965.
- [7] Vonsovskii, “Magnetism vol 1,”
- [8] R. G. Chambers, “The kinetic formulation of conduction problems,” *Proceedings of the Physical Society.*, vol. 65, 1952.
- [9] T. Kasuya and A. Yanase, “Anomalous transport phenomena in eu-chalcogenide alloys,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 40, no. 4, pp. 684–696, 1968.
- [10] M. J. Calderon, L. G. L. Wegener, and P. B. Littlewood, “Evaluation of evidence for magnetic polarons in EuB_6 ,” *Physical Review B*, vol. 70, p. 92408, 2004.
- [11] S. Massidda, A. Continenza, T. M. de Pascale, and R. Monnier, “Electronic structure of divalent hexaborides,” *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, vol. 102, no. 1, pp. 83–89, 1996.
- [12] a. B. Henriques, G. D. Galgano, E. Abramof, B. Diaz, and P. H. O. Rappl, “Zero-phonon emission and magnetic polaron parameters in EuTe ,” *Applied Physics Letters*, vol. 99, no. 9, pp. 16–19, 2011.
- [13] a. B. Henriques, F. C. D. Moraes, G. D. Galgano, a. J. Meaney, P. C. M. Christianen, J. C. Maan, E. Abramof, and P. H. O. Rappl, “Luminescence properties of magnetic polarons in EuTe : Theoretical description and experiments in magnetic fields up to 28 T,” *Physical Review B*, vol. 90, no. 16, 2014.

- [14] A. B. Henriques, G. D. Galgano, P. H. O. Rappl, and E. Abramof, “Light-induced polaron magnetization in EuTe at temperatures reaching 150 K,” *Physical Review B*, vol. 93, no. 20, p. 201201, 2016.
- [15] A. B. Henriques, A. R. Naupa, P. A. Usachev, V. V. Pavlov, P. H. O. Rappl, and E. Abramof, “Photoinduced giant magnetic polarons in EuTe,” vol. 95, no. 4, p. 045205.
- [16] A. A. Koulakov, M. M. Fogler, and B. I. Shklovskii, “Charge density wave in two-dimensional electron liquid in weak magnetic field,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, pp. 499–502, Jan 1996.
- [17] M. M. Fogler, A. A. Koulakov, and B. I. Shklovskii, “Ground state of a two-dimensional electron liquid in a weak magnetic field,” *Phys. Rev. B*, vol. 54, pp. 1853–1871, Jul 1996.
- [18] R. Moessner and J. T. Chalker, “Exact results for interacting electrons in high landau levels,” *Phys. Rev. B*, vol. 54, pp. 5006–5015, Aug 1996.
- [19] E. Fradkin, S. A. Kivelson, M. J. Lawler, J. P. Eisenstein, and A. P. Mackenzie, “Nematic fermi fluids in condensed matter physics,” *Annual Review of Condensed Matter Physics*, vol. 1, no. 1, pp. 153–178, 2010.
- [20] K. B. Cooper, M. P. Lilly, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, “Onset of anisotropic transport of two-dimensional electrons in high landau levels : Possible isotropic-to-nematic liquid-crystal phase transition,” *Phys. Rev. B*, vol. 65, p. 241313, Jun 2002.
- [21] R. A. Borzi, S. A. Grigera, J. Farrell, R. S. Perry, S. J. S. Lister, S. L. Lee, D. A. Tennant, Y. Maeno, and A. P. Mackenzie, “Formation of a nematic fluid at high fields in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$,” *Science*, vol. 315, no. 5809, pp. 214–217, 2007.
- [22] S. A. Grigera, R. S. Perry, A. J. Schofield, M. Chiao, S. R. Julian, G. G. Lonzarich, S. I. Ikeda, Y. Maeno, A. J. Millis, and A. P. Mackenzie, “Magnetic field-tuned quantum criticality in the metallic ruthenate $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$,” *Science*, vol. 294, no. 5541, pp. 329–332, 2001.
- [23] Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, “Iron-based layered superconductor $\text{La}[\text{O}_{1-x}\text{F}_x]\text{FeAs}$ ($x= 0.05 - 0.12$) with $T_c = 26$ K,” *Journal of the American Chemical Society*, vol. 130, no. 11, p. 3296–3297, 2008.
- [24] R. M. Fernandes, A. V. Chubukov, and J. Schmalian, “What drives nematic order in iron-based superconductors?,” *Nature Physics*, vol. 10, Jan 2014.

- [25] I. R. Fisher, L. Degiorgi, and Z. X. Shen, “In-plane electronic anisotropy of underdoped ‘122’ Fe-arsenide superconductors revealed by measurements of detwinned single crystals,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 74, no. 12, p. 124506, 2011.
- [26] M. Nakajima, S. Ishida, Y. Tomioka, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, T. Ito, T. Kakeshita, H. Eisaki, and S. Uchida, “Effect of co doping on the in-plane anisotropy in the optical spectrum of underdoped $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, p. 217003, Nov 2012.
- [27] M. Yi, D. Lu, J.-H. Chu, J. G. Analytis, A. P. Sorini, A. F. Kemper, B. Moritz, S.-K. Mo, R. G. Moore, M. Hashimoto, W.-S. Lee, Z. Hussain, T. P. Devereaux, I. R. Fisher, and Z.-X. Shen, “Symmetry-breaking orbital anisotropy observed for detwinned $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ above the spin density wave transition,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 108, no. 17, pp. 6878–6883, 2011.
- [28] S. Kasahara, H. J. Shi, K. Hashimoto, S. Tonegawa, Y. Mizukami, T. Shibauchi, K. Sugimoto, T. Fukuda, T. Terashima, A. H. Nevidomskyy, and Y. Matsuda, “Electronic nematicity above the structural and superconducting transition in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$,” *Nature*, vol. 486, no. 7403, pp. 382–385, 2012.
- [29] Y. Ando, K. Segawa, S. Komiya, and A. N. Lavrov, “Electrical resistivity anisotropy from self-organized one dimensionality in high-temperature superconductors,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, p. 137005, Mar 2002.
- [30] V. Hinkov, D. Haug, B. Fauqué, P. Bourges, Y. Sidis, A. Ivanov, C. Bernhard, C. T. Lin, and B. Keimer, “Electronic liquid crystal state in the high-temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$,” *Science*, vol. 319, no. 5863, pp. 597–600, 2008.
- [31] K. M. Schmidt, A. B. Buettner, O. A. Graeve, and V. R. Vasquez, “Interatomic pair potentials from dft and molecular dynamics for ca, ba, and sr hexaborides,” *J. Mater. Chem. C*, vol. 3, pp. 8649–8658, 2015.
- [32] T. Kasuya, K. Takegahara, M. Kasaya, Y. Isikawa, and T. Fujita, “Iv. transport electronic structure of EuB_6 , transport and magnetic properties,” *Le Journal de Physique Colloques*, vol. 41, no. C5, pp. C5–161–C165–170, 1980.
- [33] S. Süllo, I. Prasad, M. Aronson, J. Sarrao, Z. Fisk, D. Hristova, A. Lacerda, M. Hundley, A. Vigliante, and D. Gibbs, “Structure and magnetic order of EuB_6 ,” *Physical Review B*, vol. 57, no. 10, pp. 5860–5869, 1998.

- [34] S. Süllo, I. Prasad, M. Aronson, S. Bogdanovich, J. Sarrao, and Z. Fisk, “Metallization and magnetic order in EuB_6 ,” *Physical Review B*, vol. 62, no. 17, pp. 11626–11632, 2000.
- [35] W. Henggeler, H. Ott, D. P. Young, and Z. Fisk, “Magnetic ordering in EuB_6 , investigated by neutron diffraction,” *Solid State Communications*, vol. 108, no. 12, pp. 929–932, 1998.
- [36] S. Süllo, I. Prasad, S. Bogdanovich, M. C. Aronson, J. L. Sarrao, and Z. Fisk, “Magnetotransport in the low carrier density ferromagnet EuB_6 ,” *Journal of Applied Physics*, vol. 87, no. 9, pp. 5591–5593, 2000.
- [37] P. Majumdar and P. B. Littlewood, “Dependence of magnetoresistivity on charge-carrier density in metallic ferromagnets and doped magnetic semiconductors,” *Nature*, vol. 395, no. 6701, pp. 479–481, 1998.
- [38] C. Guy, S. von Molnár, J. Etourneau, and Z. Fisk, “Charge transport and pressure dependence of T_c of single crystal, ferromagnetic EuB_6 ,” *Solid State Communications*, vol. 33, no. 10, pp. 1055 – 1058, 1980.
- [39] J. C. Cooley, M. C. Aronson, J. L. Sarrao, and Z. Fisk, “High pressures and ferromagnetic order in EuB_6 ,” *Phys. Rev. B*, vol. 56, pp. 14541–14546, Dec 1997.
- [40] M. Pohlit, S. Rössler, Y. Ohno, H. Ohno, S. von Molnár, Z. Fisk, J. Müller, and S. Wirth, “Evidence for ferromagnetic clusters in the colossal-magnetoresistance material EuB_6 ,” *Physical Review Letters*, vol. 120, June 2018.
- [41] J. F. Rodríguez and J. A. Blanco, “Temperature dependence of the molar heat capacity for ferromagnets within the mean field theory,” *Physica Scripta*, vol. 71, no. 2, p. CC19, 2005.
- [42] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, “Spintronics : A spin-based electronics vision for the future,” *Science*, vol. 294, no. 5546, pp. 1488–1495, 2001.
- [43] G. A. Prinz, “Magnetoelectronics,” *Science*, vol. 282, no. 5394, pp. 1660–1663, 1998.
- [44] R. Takemura, T. Kawahara, K. Miura, H. Yamamoto, J. Hayakawa, N. Matsuzaki, K. Ono, M. Yamanouchi, K. Ito, H. Takahashi, S. Ikeda, H. Hasegawa, H. Matsuoka, and H. Ohno, “32-mb 2t1r spram with localized bi-directional write driver and ‘1’/‘0’ dual-array equalized reference cell,” in *2009 Symposium on VLSI Circuits*, pp. 84–85, June 2009.

- [45] C. Shull, “Early development of neutron scattering,” *Review Modern Physics*, vol. 67, pp. 753–757, 1995.
- [46] J. von Halban, H. and P. Preiswerk, “Comptes rendus,” *Academy of Science of Paris*, vol. 203, no. 73, 1936.
- [47] D. P. Mitchell and P. N. Powers, “Bragg reflection of slow neutrons,” *Phys. Rev.*, vol. 50, pp. 486–487, Sep 1936.
- [48] F. Bloch, “On the magnetic scattering of neutrons,” *Phys. Rev.*, vol. 50, pp. 259–260, Aug 1936.
- [49] L. W. Alvarez and F. Bloch, “A quantitative determination of the neutron moment in absolute nuclear magnetons,” *Phys. Rev.*, vol. 57, pp. 111–122, Jan 1940.
- [50] X. Yin, “Introduction to neutron scattering and oenl neutron facilities,” *Course : Solid State II, University of Tennessee*, 2010.
- [51] A. Guinier, “Dispositif permettant d’obtenir des diagrammes de diffraction de poudres cristallines tres intenses avec un rayonnement monochromatique,” *Compt Rend Hebd Seances Acad Sciences*, vol. 204, pp. 1115–1116, 1937.
- [52] P. Debye and A. M. Bueche, “Scattering by an Inhomogeneous Solid,” *Journal of Applied Physics*, vol. 20, pp. 518–525, June 1949.
- [53] G. Porod, “Die röntgenkleinwinkelstreuung von dichtgepackten kolloiden systemen,” *Kolloid-Zeitschrift*, vol. 124, pp. 83–114, Nov 1951.
- [54] H.-P. Fink, “Structure analysis by small-angle x-ray and neutron scattering,” *Acta Polymerica*, vol. 40, no. 3, pp. 224–224, 1989.
- [55] W. Thomson, “Xix. on the electro-dynamic qualities of metals : Effects of magnetization on the electric conductivity of nickel and of iron,” *Proceedings of the Royal Society of London*, vol. 8, pp. 546–550, 1857.
- [56] I. A. Campbell, A. Fert, and O. Jaoul, “The spontaneous resistivity anisotropy in ni-based alloys,” *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 3, pp. S95–S101, may 1970.
- [57] S. Kokado, M. Tsunoda, K. Harigaya, and A. Sakuma, “Anisotropic magnetoresistance effects in Fe, Co, Ni, Fe₄N, and half-metallic ferromagnet : A systematic analysis,” *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 81, no. 2, p. 024705, 2012.

- [58] A. W. Rushforth, K. Výborný, C. S. King, K. W. Edmonds, R. P. Champion, C. T. Foxon, J. Wunderlich, A. C. Irvine, P. Vašek, V. Novák, K. Olejník, J. Sinova, T. Jungwirth, and B. L. Gallagher, “Anisotropic magnetoresistance components in (Ga,Mn)As,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 147207, Oct 2007.
- [59] R. R. Urbano, P. G. Pagliuso, C. Rettori, S. B. Oseroff, J. L. Sarrao, P. Schlottmann, and Z. Fisk, “Magnetic polaron and Fermi surface effects in the spin-flip scattering of EuB₆,” *Physical Review B*, vol. 70, no. 14, p. 140401, 2004.
- [60] V. Glushkov, M. Anisimov, A. Bogach, S. Demishev, V. Ivanov, N. Samarin, A. Dukhnenko, N. Shitsevalova, K. Flachbart, and N. Sluchanko, “Crossover in the colossal magnetoresistance anisotropy in EuB₆,” *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 150, p. 022014, feb 2009.

Chapitre 2

L'EuB₆ dopé au calcium

2.1. Pourquoi doper au calcium ?

Doper le système d'EuB₆ au calcium permet de modifier l'interaction magnétique, puisque que l'atome d'euprium, qui est magnétique, est remplacé par un atome non magnétique, le calcium. Le système passe donc d'un ferroaimant à dopage nul à un para-aimant à dopage entier. La recherche sur ce système dopé a commencé au début des années 2000. Dans un article de Paschen *et al*[1], ils font des mesures de résistivité sur l'EuB₆ et l'Eu_{0.8}Ca_{0.2}B₆ et ils démontrent que les deux sont ferromagnétiques avec une large diminution de la résistivité après la transition. De plus, ils observent la forte augmentation de porteurs de charges dans le cas dopé. Par la suite, ce même groupe de recherche, Ott *et al*[2], a mesuré la résistance et l'aimantation du Eu_{0.6}Ca_{0.4}B₆. Ils indiquent que le système est ferromagnétique avec un T_C de 4.5 K et que la résistance semble dépendre de l'aimantation du système. Ils ajoutent également qu'avec le désordre des ions de calcium, il se peut que l'ordre ne soit pas un simple ferroaimant. Ce même groupe indique la présence d'une séparation de phase[3] dans les échantillons dopés. Ils observent aussi une chaleur spécifique similaire à celle obtenue dans nos échantillons.

Toutefois, le consensus sur le type de phase magnétique présente dans les systèmes dopés à plus de 20% n'est pas clair. Certains indiquent une phase ferromagnétique complexe, d'autres une phase antiferromagnétique[4]. Certains mettent de l'avant la possibilité que la phase soit un verre de spins. Cette possibilité sera étudiée durant mon analyse.

2.2. Croissance et détermination du dopage

La croissance s'est faite de la manière que celle décrite dans la section 1.3.1 mais en ajoutant la bonne quantité de calcium. Par contre, nous avons rencontré la difficulté d'obtenir la bonne concentration. Dans une même croissance, le même creuset, il pouvait y avoir des concentrés faibles ($\approx 20\%$) à des hautes concentrations ($>60\%$) de calcium. La croissance résultait en des échantillons qui n'étaient aucunement uniformes. Seulement une croissance (GB040 - échantillon #4p) a donné un cristal unique de plusieurs mm^3 . C'est sur cet échantillon que les mesures de AMRO ont été faites.

Échantillons	Composition en Calcium	Θ_{CW}
#1(GB035)	$\text{Eu}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{B}_6$	2.6 K
#2(GB035)	$\text{Eu}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{B}_6$	5 K
#3(GB035)	$\text{Eu}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{B}_6$	5.75 K
#4(GB035)	$\text{Eu}_{0.4}\text{Ca}_{0.6}\text{B}_6$	5.16 K
#7(GB035)	$\text{Eu}_{0.87}\text{Ca}_{0.13}\text{B}_6$	5.28 K
#10(GB035)	$\text{Eu}_{0.2}\text{Ca}_{0.8}\text{B}_6$	4.88 K
#4p(GB040)	$\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$? K

TABLE 2.1. Échantillon de $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$ et leur composition calculé à partir des données MEB.

Pour déterminer le dopage exact des échantillons, des mesures ont été prises au *Centre de caractérisation microscopique des matériaux* (CM2) de la Polytechnique de Montréal. À cet endroit, nous avons pu déterminer la composition de la surface de mes échantillons à l'aide d'un microscope à balayage électronique (MEB). La figure 2.1 montre la surface de l'échantillon # 3 ainsi que la composition à sa surface la moins contaminée. Avec un échantillon d' EuB_6 pur, les différents niveaux de calcium dans chacun de mes échantillons ont pu être comparés. Les résultats sont affichés dans le tableau 2.1. Nous avons fait de multiples mesures à différentes endroits sur la surface et une moyenne des résultats. Quelques impuretés sont trouvés comme le carbone, l'oxygène, l'aluminium et le silicium. Le carbone, l'oxygène et le silicium viennent de la contamination de la surface lors de la manipulation de l'échantillon. L'aluminium vient de la croissance fait par flux, sa concentration est minime et

négligeable. La plus belle surface a été obtenue lorsque, sur place, un morceau a été séparé pour obtenir une surface fraîche et sans défaut.

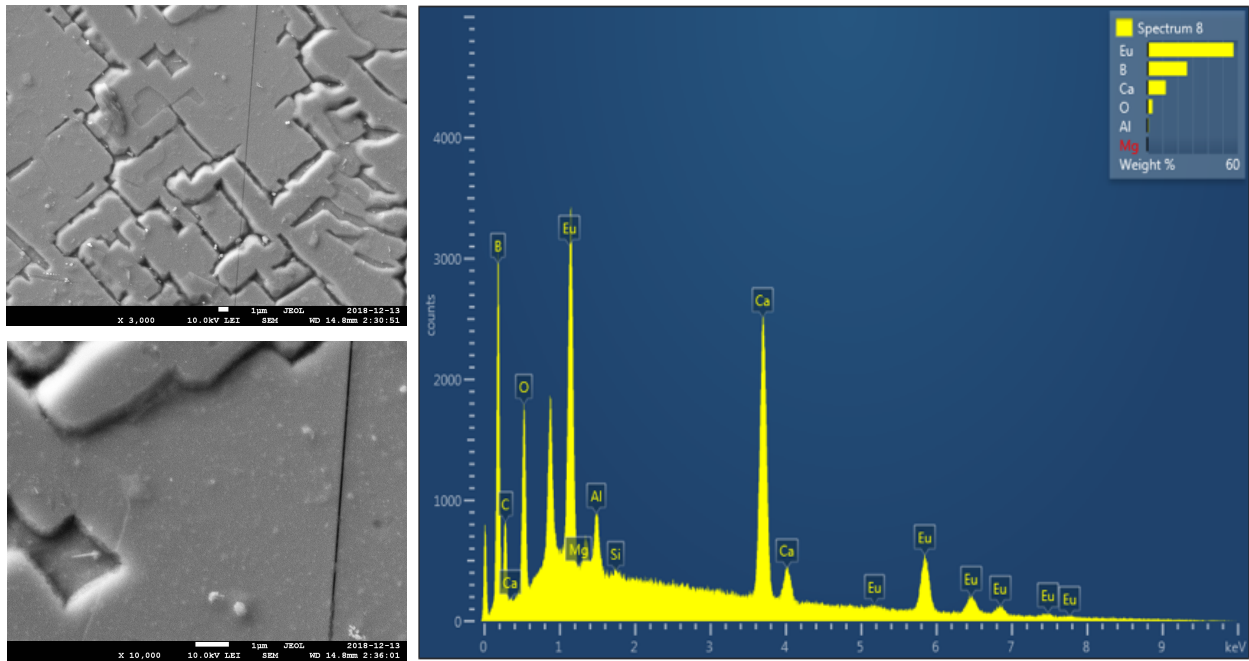


FIGURE 2.1. Microscopie électronique à balayage de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{B}_6$ (#3) (haut gauche) Imagerie de la surface pour une grossissement de $\times 3\,000$ et de (Bas gauche) $\times 10\,000$. (droite) Spectre montrant les éléments identifiés sur la surface de l'échantillon.

2.3. Caractérisation des échantillons

Les premières données obtenues sur ce système ont été celles de susceptibilité magnétique. Ce fut un vrai casse-tête d'analyser, puisque c'est à ce moment que les croissances ont été constatées comme inhomogènes. Ainsi, chaque échantillon mesuré par cette technique était également soumis au MEB. Par la suite, les échantillons les plus prometteurs ont été placés dans le PPMS (*Physical properties measurement system*) pour mesurer la chaleur spécifique ainsi que la résistivité.

2.3.1. Susceptibilité magnétique

La susceptibilité magnétique est mesurée en laboratoire avec un SQUID («superconducting quantum interference device» en anglais). Cet instrument permet de mesurer l'aimantation d'un échantillon en fonction de la température ou d'un champ magnétique appliqué.

Les interactions dans un système magnétique sont soit ferromagnétique qui tend les spins à s'aligner ou antiferromagnétique qui tend les spins à s'anti-aligner. À haute température, le système est en désordre dans la phase paramagnétique et se caractérise par un comportement Curie-Weiss. Si le système est refroidi, éventuellement, l'ordre magnétique est obtenu via une transition de phase. Dans la phase ferromagnétique, l'aimantation sature à une certaine valeur à cause de l'apparition de domaines ferromagnétiques. Cela est visible dans l'échantillon # 3 (voir figure 2.2) lorsqu'un champ magnétique supérieur à 0.04 T est appliqué au système. Sous ces valeurs, le système est dans une phase inconnue, qui reste à être déterminée. Dans cette phase, on peut mesurer la courbe d'hystérèse du système. Ce qui est intrigant est la présence d'hystérèse dans le système où le parent, EuB_6 , n'en possède pas.

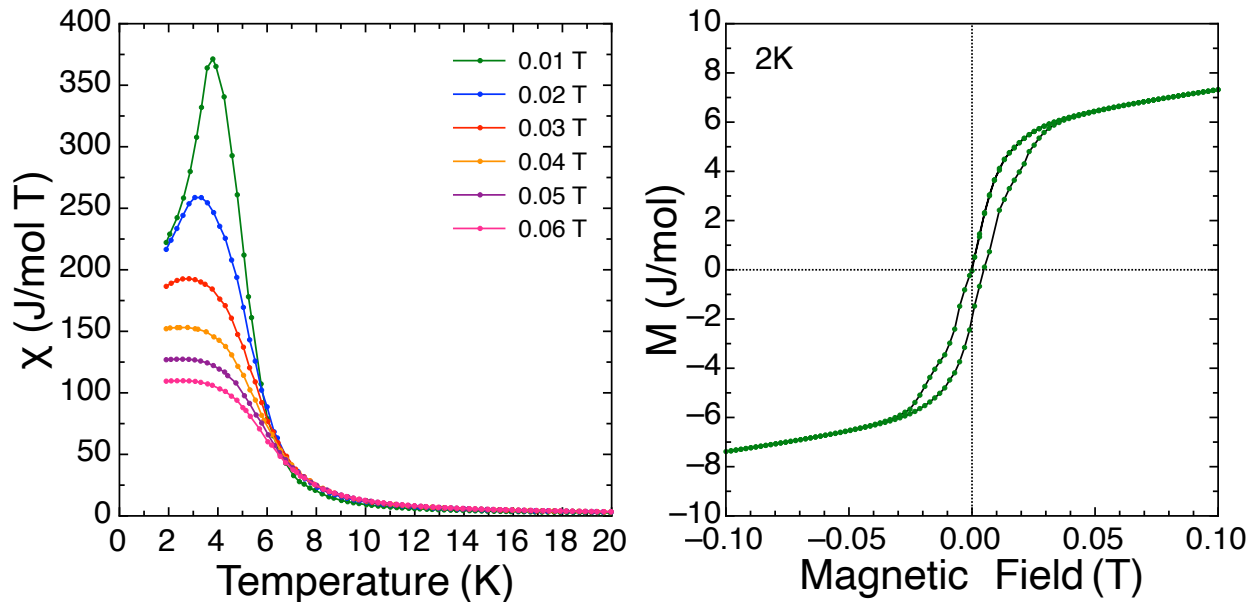


FIGURE 2.2. (gauche) Susceptibilité ($\chi = M/H$) et (droite) courbe d'hystérèse de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.6}\text{Ca}_{0.4}\text{B}_6$ (#3)

2.3.2. Chaleur spécifique

Une autre caractéristique intéressante à étudier est la chaleur spécifique. La chaleur spécifique est mesurée avec le PPMS et fonctionne de façon suivante : l'échantillon est tout d'abord placé sur une plaque carrée soutenue par des fils métalliques pour qu'il soit séparé thermiquement de son environnement ; des courtes impulsions de chaleur sont alors transmises à l'échantillon et le changement de température est mesuré, donnant ainsi la chaleur

thermique de l'échantillon suivant la formule suivante :

$$C = \lim_{\Delta T \rightarrow 0} \frac{\Delta Q}{\Delta T}. \quad (2.1)$$

La figure 2.3 illustre la partie magnétique de la chaleur spécifique. Pour l'obtenir, les parties électronique et vibratoire ont été soustraites. Celles-ci sont calculées en ajustant la courbe suivante aux points à haute température :

$$C = \gamma T + 9k_B \left(\frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx \quad (2.2)$$

où Θ_D est la température de Debye et γ est le facteur électronique. Une température de Debye $\Theta_D = 184$ K et un $\gamma = 23$ mJ/mol K² a été obtenu. Par la suite, la transition de phase a été analysée en essayant d'ajuster une courbe aux données magnétiques de la chaleur spécifique. Cette courbe correspond à une interaction champ moyen d'un ferroaiment Heisenberg[5]. L'ajustement était seulement possible à haut champ magnétique puisqu'à bas champ, la phase est de verre de spins. Les verres de spin sont différents des aimants ferromagnétiques puisque se sont des aimants "désordonnés" dans lesquels les spins de leurs atomes ne sont pas alignés de façon régulière. C'est un désordre magnétique et non positionnel comme dans un verre conventionnel. Les verres de spins peuvent être décrits par une théorie des spins[6]. Ces informations démontrent qu'il y a une transition d'une phase verre de spins vers une ferromagnétique autour de 1.5 T. C'est aussi dans cette région que le patron de la résistivité va changer d'une courbe avec une augmentation de résistance à une diminution de résistance lors de la réduction de température (voir figure 2.4).

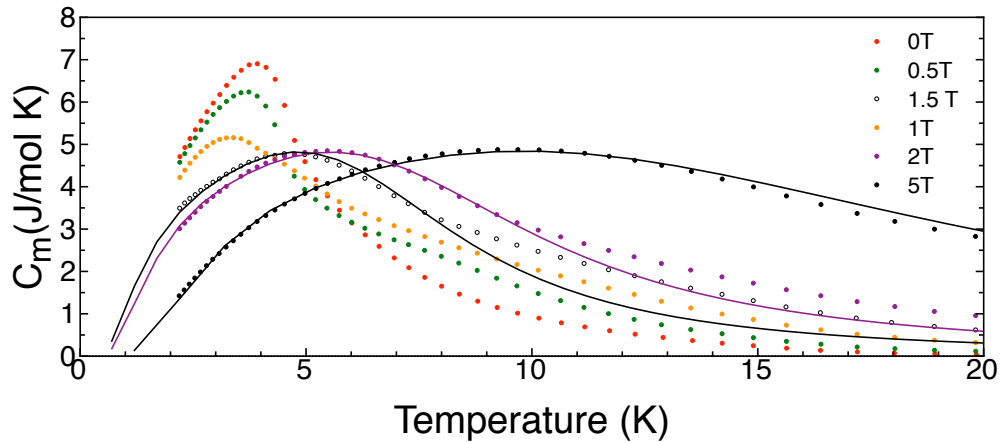


FIGURE 2.3. Chaleur spécifique de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)

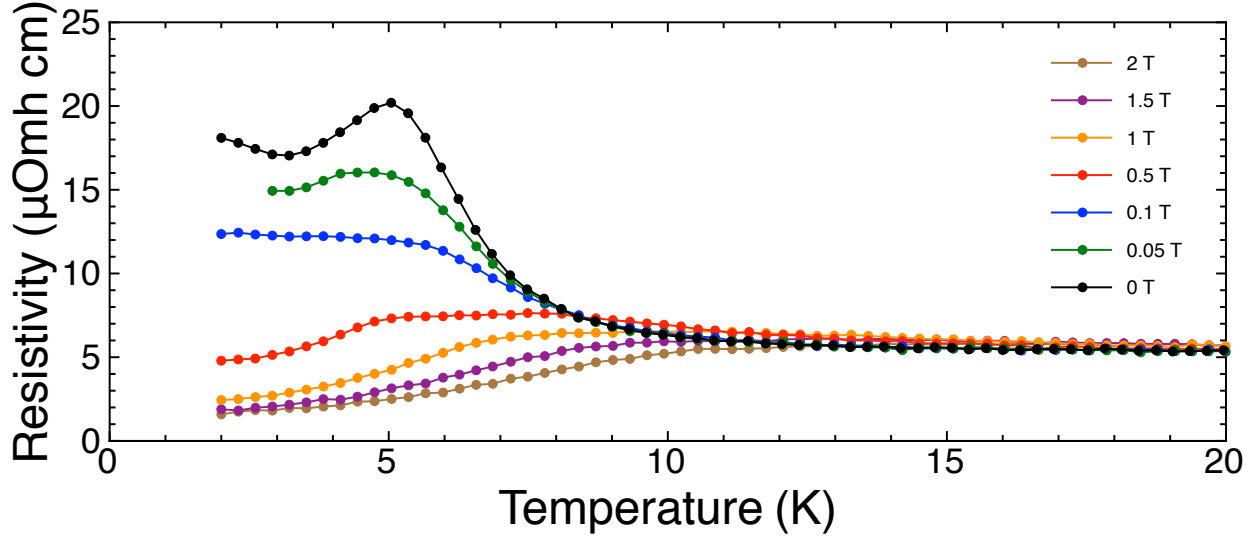


FIGURE 2.4. Résistivité de l'échantillon de l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)

2.3.3. Oscillations de magnétorésistance anisotrope (AMRO)

Une des propriétés les plus importantes pour un système potentiellement nématique est la magnétorésistance à angle résolu. Premièrement, la résistance à angle constant pour différents champs magnétiques a été mesurée (voir figure 2.4). Avec ces résultats, on constate le changement de phase entre 0.5 T et 1 T. Cette frontière de phase magnétique est importante puisque si l'on veut relier les polarons magnétiques à la phase nématique, les deux signaux devraient disparaître près de cette frontière comme dans l' EuB_6 . Alors, la prochaine étape a été de faire des mesures de AMRO sur l'échantillon le plus prometteur. Pour s'assurer d'être dans la bonne orientation, le signal loin de la phase nématique devrait avoir une symétrie de 4, puisqu'on assume que la surface de Fermi n'est pas radicalement changée par le dopage. La figure 2.5 démontre ce phénomène malgré le manque de symétrie parfaite. Il semble que cette symétrie serait encore mieux à plus basse température, ce qui n'est pas accessible avec notre équipement actuel. La ligne pleine est un ajustement d'une courbe à $\rho = A_2 \cos(2\theta) + A_4 \cos(4\theta)$. La symétrie de quatre n'est donc pas tout à fait complètement atteinte à 3 K.

Après de multiples mesures en angle, le système se comporte de façon très étrange. Un effet de mémoire est constaté à bas champ, c'est-à-dire que les mesures lorsque refroidies, avec ou sans champ, sont différentes. Cela concorde avec l'hystérèse observée dans la susceptibilité (figure 2.2). La prudence était de mise dans les procédures pour s'assurer que le système était

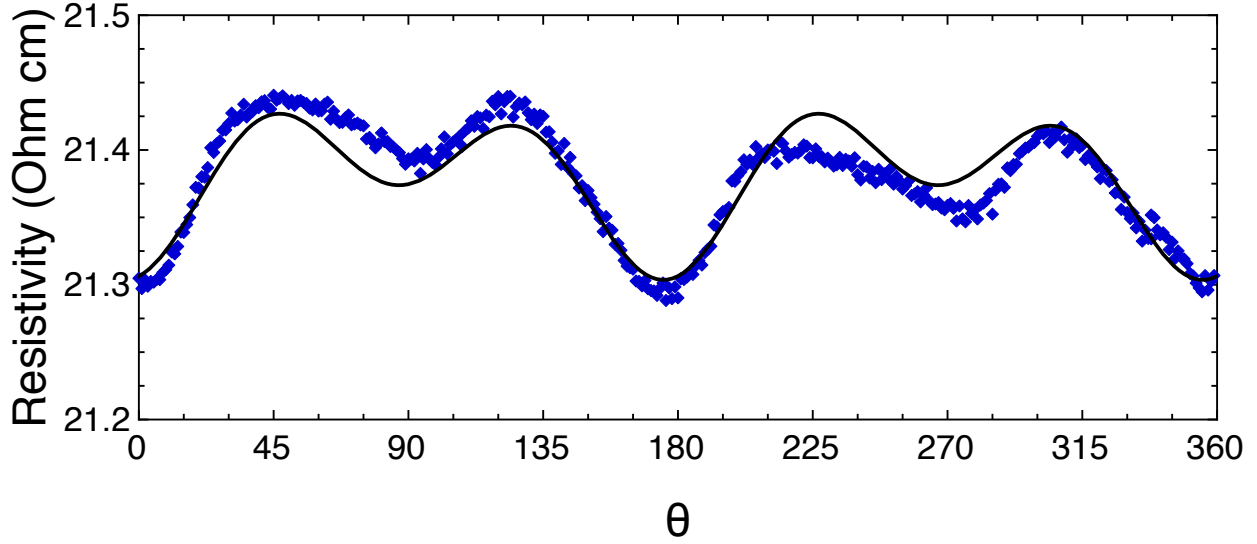


FIGURE 2.5. ρ_{\perp} à température de 3 K et champ magnétique 0.02 T dans l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p)

stable et dans le bon état. Toutefois, la figure 2.6 illustre la résistivité en fonction du champ appliqué dans différentes orientations. Pour un système C_4 , toutes les courbes devraient être zéro puisque les quatre orientations sont équivalentes. Dans notre système, la symétrie est brisée comme dans l' EuB_6 . Toutefois, à basse température, même la symétrie C_2 semble brisée puisque la résistance à 0 et 180 n'est pas la même. Cette différence est très subtile et ne dépasse pas le 1.5% de différence. Pour ce qui est des deux autres directions, la courbe bleu et rouge serait censée être égale. Cette différence est peut-être produite par un alignement non parfait de quelques degrés avec l'axe de rotation. Mais cela n'explique pas la dépendance en champ de cette différence. Aussi, il faut considérer le désordre des spins produits par l'état de verre de spins. L'orientation des spins n'est pas connue, une expérience de diffraction de neutrons sur un échantillon de poudre par exemple, pourrait répondre à cette question. Pour le moment, d'autres données avec une variation de concentration seraient nécessaires pour comprendre les phénomènes en jeu dans ces systèmes.

2.3.4. Diffraction de neutrons à petits angles

Une expérience de SANS a été faite sur des échantillons de EuB_6 dopé au calcium. La concentration utilisée pour la croissance était de 40%. Par contre, après analyse dans le SQUID de plusieurs morceaux de la mosaïque utilisée pour l'expérience, la concentration est

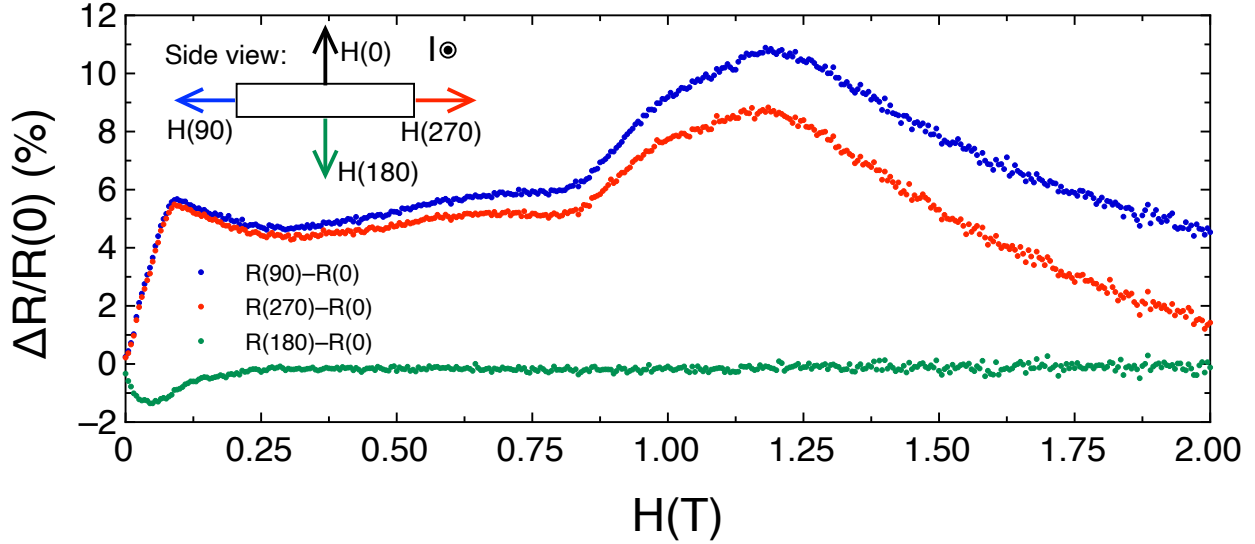


FIGURE 2.6. Magnétorésistance ($I \perp H$) versus champ magnétique à température de 3 K dans l' $\text{Eu}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{B}_6$ (#4p). Le schéma en haut à gauche explique les différentes configurations du champ magnétique. Les différentes courbes représentent la différence normalisée entre une direction donnée et celle à 0 degré.

constatée n'étant aucunement uniforme et variait entre 10% et 40%. Toutefois, les données de neutrons nous offrent un début de compréhension de ce nouveau système. Par exemple, on peut conclure que la majorité de morceaux de la mosaïque ont pour concentration $x > 20\%$ puisque la température critique observée est de 5-6 K, comparable à la transition dans les échantillons de verres de spins (GB040-#4p). La température critique est mesuré à l'amplitude maximale en fonction de la température dans la figure 2.7a. De plus dans la figure 2.7b, on observe un petit changement dans l'intensité à petit champ, comparable aux données d'AMR. Il semble que la plupart de la physique intéressante se concentre sous 10 K et sous 2 T. Dans la figure 2.7c et d, on observe aussi une anisotropie dans le signal lorsque la quantité de mouvement du neutron transmis est parallèle ou perpendiculaire au champ magnétique. Cette anisotropie est trouvée sur une grande plage de température et sous un vecteur d'onde de $q = 0.04 \text{ \AA}^{-1}$, ce qui correspond à une longueur de 25 \AA . Ceci indique la présence de domaines superparamagnétique (SPM) dans le système[7, 8]. Ces domaines SPM sont aussi relié à la présence de polarons magnétiques comme observé dans l' EuO_{1-x} [9]. Par contre, avec le fait que la concentration de calcium est inhomogène, la présence de domaines SPM ne peut être associée à une concentration exacte. Une nouvelle expérience avec une

mosaïque de concentration homogène sera nécessaire pour mieux comprendre le magnétisme dans ce système.

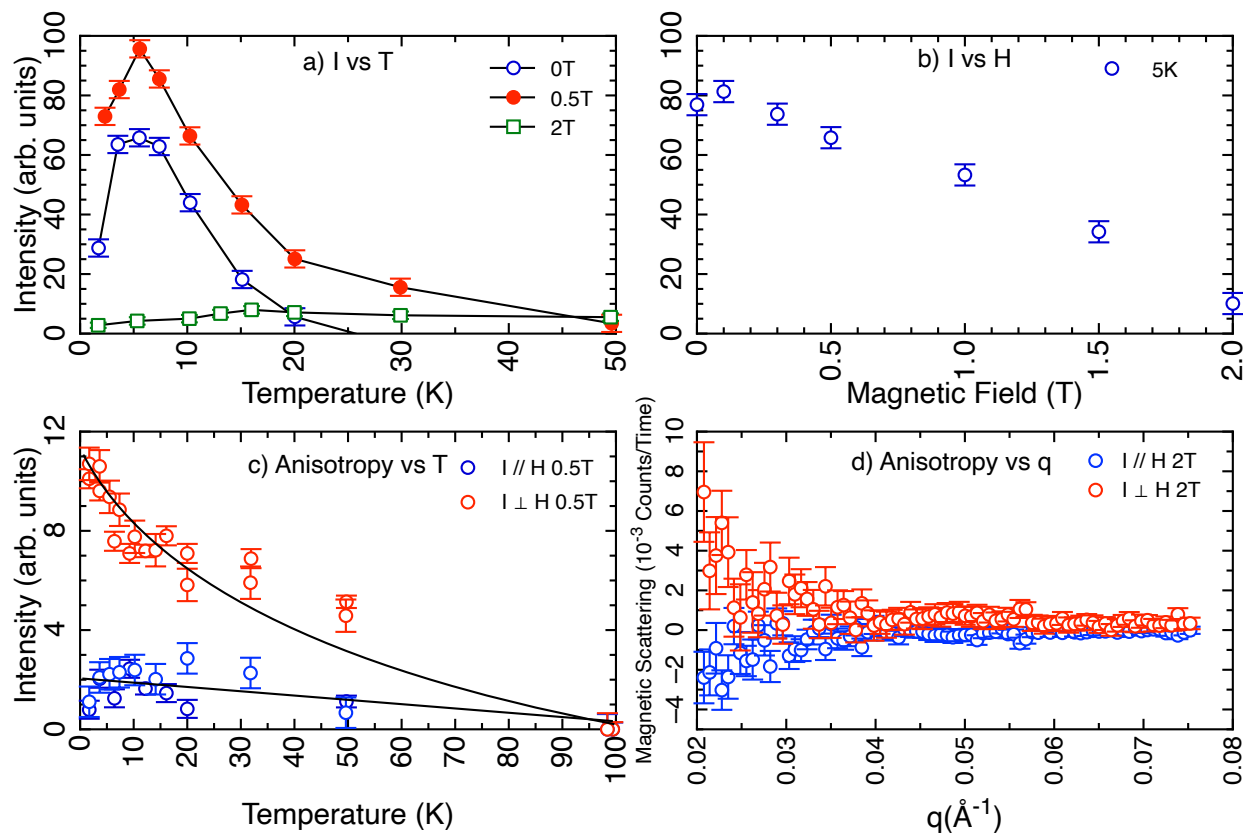


FIGURE 2.7. Analyse des données SANS pour $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$ avec $x < 0.4$. a) Intensité (I) des neutrons versus température pour plusieurs champs magnétiques. b) Intensité des neutrons versus champs magnétiques à 5 K. Les données ont été prises en refroidissant le système à champ nul (ZFC). c) Anisotropie du système en comparant la partie parallèle et perpendiculaire du signal versus température et d) versus le vecteur d'onde (Température de 2 K). Le bruit de fond à 100 K est soustrait à chaque signal analysé.

2.4. Vers le futur... et plus loin encore

Je crois bien que le futur de la recherche sur l' EuB_6 dopé au calcium est prometteur. Plusieurs de ses propriétés se distinguent de celles de l' EuB_6 non dopé, ce qui représente une possibilité pour de la nouvelle physique. De plus, la phase magnétique des verres de spin n'est pas tout à fait comprise, ainsi que sa relation avec la brisure de symétrie électronique dans ce système.

Bibliographie

- [1] S. Paschen, D. Pushin, M. Schlatter, P. Vonlanthen, H. R. Ott, D. P. Young, and Z. Fisk, “Electronic transport in $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$,” *Phys. Rev. B*, vol. 61, p. 4174, 2000.
- [2] H. R. Ott, G. Wigger, C. Wälti, H. R. Ott, A. Bianchi, and Z. Fisk, “Magnetization-dependent electronic transport in Eu-based hexaborides,” *Physical Review B*, vol. 66, no. 21, pp. 212410–+, 2002.
- [3] G. Wigger, C. Beeli, E. Felder, H. Ott, A. Bianchi, and Z. Fisk, “Percolation and the Colossal Magnetoresistance of Eu-Based Hexaboride,” *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 14, pp. 1–4, 2004.
- [4] J.-S. Rhyee, B. K. Cho, and H.-C. Ri, “Electrical transport properties and small polarons in $\text{Eu}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_6$,” *Physical Review B*, vol. 67, no. 12, 2003.
- [5] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*. Wiley.
- [6] H. Nishimori and O. U. Press, *Statistical Physics of Spin Glasses and Information Processing : An Introduction*. International series of monographs on physics, Oxford University Press.
- [7] R. Cywinski, B. D. Rainford, and J. G. Booth, “Small-angle neutron scattering from superparamagnetic assemblies in binary coga alloys,” *Journal of Physics F : Metal Physics*, vol. 7, no. 12, p. 2567, 1977.
- [8] A. Michels and J. Weissmüller, “On the influence of anisotropy on the magnetic small-angle neutron scattering of superparamagnetic particles,” vol. 26, no. 1, pp. 57–65.
- [9] P. Liu and J. Tang, “A magnetic polaron model for the enhanced curie temperature of EuO_{1-x} ,” vol. 25, no. 12, p. 125802.

Premier article.

Quantum nematic in a colossal magnetoresistance material

par

G. Beaudin^{1,2}, L. M. Fournier^{1,2}, M. Nicklas³, M. Kenzelmann⁴,
M. Laver⁵, W. Witczak-Krempa^{1,2,6}, & A. D. Bianchi^{2,1}

- (¹) Département de Physique, Université de Montréal, Montréal, Québec, H3C 3J7, Canada
- (²) Regroupement Québécois sur les Matériaux de Pointe (RQMP)
- (³) Max Planck Institute for Chemical Physics of Solids, Dresden, Germany
- (⁴) Laboratory for Neutron Scattering and Imaging, Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland
- (⁵) Department of Physics, University of Warwick, Coventry CV4 7AL, United Kingdom
- (⁶) Centre de Recherches Mathématiques, Université de Montréal, Montréal (Québec), H3C 3J7, Canada

Cet article a été soumis à la revue PRB rapid.

Les principales contributions de Gabrielle Beaudin à cet article sont présentées.

- Mesure des données expérimentales;
- Écriture de code Mathematica en collaboration avec L. M. Fournier.
- Écriture de l'article avec les autres collaborateurs

RÉSUMÉ. Les phases nématiques quantiques sont analogues aux cristaux liquides classiques. Comme les cristaux liquides, qui brisent les symétries de rotation de l'espace, leurs analogues quantiques brisent la symétrie ponctuelle du cristal en raison de fortes interactions électron-électron, comme dans les états quantiques de Hall, le $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ et les supraconducteurs à haute température. Nous présentons ici des mesures de magnéto-résistance résolue en angle (AMRO) qui révèlent une phase nématique quantique dans l'hexaborure EuB_6 . Nous identifions la région dans le diagramme de phase température-champ magnétique où la magnéto-résistance montre des oscillations de deux fois au lieu du motif de quatre fois attendu. C'est la même région où des polarons magnétiques ont été précédemment observés, ce qui suggère qu'ils induisent la nématicité dans l' EuB_6 . C'est également la région du diagramme de phase où l' EuB_6 montre une magnéto-résistance colossale (CMR). Cette nouvelle interaction entre les propriétés magnétiques et électroniques pourrait ainsi être exploitée pour des applications spintroniques.

Mots clés : nématicité, hexaborure, spintronique, polaron magnétique

ABSTRACT. Quantum nematic phases are analogous to classical liquid crystals. Like liquid crystals, which break the rotational symmetries of space, their quantum analogues break the point-group symmetry of the crystal due to strong electron-electron interactions, as in quantum Hall states, $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, and high temperature superconductors. Here, we present angle resolved magnetoresistance (AMRO) measurements that reveal a quantum nematic phase in the hexaboride EuB_6 . We identify the region in the temperature-magnetic field phase diagram where the magnetoresistance shows two-fold oscillations instead of the expected four-fold pattern. This is the same region where magnetic polarons were previously observed, suggesting that they drive the nematicity in EuB_6 . This is also the region of the phase diagram where EuB_6 shows a colossal magnetoresistance (CMR). This novel interplay between magnetic and electronic properties could thus be harnessed for spintronic applications.

Keywords: Nematicity, Hexaborides, Spintronics, Magnetic polarons

One of the great successes of the quantum theory of solids was the finding that electrons in crystals largely behave as a quantum gas of free particles. It was soon understood that the interactions between electrons can change their behaviour into that of a quantum liquid leading among other things to a modified mass of the quasiparticles. However, unlike in classical liquids, where a suspension of rod-like molecules can lead to anisotropic interactions and the occurrence of nematic phases in liquid crystals, the point like nature of electrons and their interactions seems at first not to lend itself to the formation of a quantum nematic. So, it was quite a surprise when experiments, first in ultraclean quantum Hall systems [1] and later in

$\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ [2], indicated the presence of an electronic nematic phase. Strong electronic correlations are believed to be at the source of these exotic electronic liquids, as theoretically first predicted for the case of a doped two-dimensional Mott insulator [3] and later for quantum Hall systems [4]. Quantum nematics were also discovered in the high temperature cuprate superconductors [5, 6, 7, 8, 9], as well as in the iron arsenide superconductors [10, 11, 12], where the relation between the nematic order and superconductivity, and its relation to the close-by structural instability are hotly debated. Pomeranchuk was the first to describe the mechanism by which a Fermi surface can spontaneously break the rotational symmetry [13]. This mechanism has been invoked in the case of the cuprate superconductors [14, 15], and it may also play a role in the iron arsenides [10]. Nematic order is also found in CeRhIn_5 , a heavy fermion superconductor, where it is most likely related to a spin texture [16]. Nematicity found in CeB_6 [17] suggests that a nematic state can be observed in 3D materials such as the hexaborides, and is not only linked to 2D and quasi-2D systems, opening possibilities for more complex quantum materials. Here, we describe a novel type of nematic order in the hexaboride EuB_6 , which due to CMR effects associated with the nematic phase carries the potential to play a new role in spintronics. In spintronics, the spin-degrees of freedom are used to obtain transistor action, leading to the promise of a lower energy consumption and the unification of storage and processing components.

The interplay between the electronic and magnetic properties of EuB_6 are still subject of controversy despite its simple cubic crystal structure ($Pm\bar{3}m$). EuB_6 has a very low charge carrier density [18, 19] ($\approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$), these carriers couple to localised Eu $4f$ moments which are pure spin with $S = 7/2$, but whether it should be considered as a semimetal or semiconductor is still an ongoing debate [20, 21, 22]. EuB_6 becomes ferromagnetic at $T_C = 12.6 \text{ K}$, accompanied by an order of magnitude reduction in resistivity and CMR [23] in the vicinity of T_C . The specific heat of EuB_6 shows an additional anomaly at $T_M = 15.5 \text{ K}$ [24, 23, 25]. This temperature coincides with the first anomaly in the electrical resistivity. In the literature, this anomaly in the electrical resistivity is typically associated with the percolation transition of magnetic polarons. At this temperature, the polarons begin to overlap, releasing the trapped charge carriers which consequently lowers the resistivity [26].

Magnetic polarons are expected to be important in EuB_6 due to its low carrier density and they were indirectly indicated by a number of experiments [31, 25, 32, 27, 29, 30,

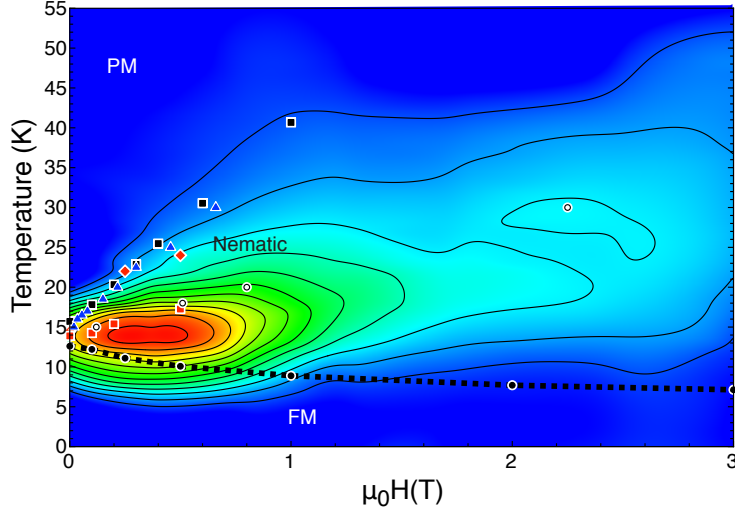


Figure 3.1. Phase diagram of EuB_6 . The colour and contour plot shows the amplitude of the $\cos(2\theta)$ coefficient obtained by fitting our angle-resolved magnetoresistance data. The maximum/minimum is shown in red/teal, and indicates strong/weak nematicity. (Full black squares) Hall effect measurements [27], (Red diamonds) small-angle neutron scattering measurements [28], (teal triangles) magnetoresistance peak [29], (Open black circles) magnetostriction [30], (Red squares) T_M taken from χ'' measurements (Supplemental Material Figure 3.1). (Black circles) T_C from heat capacity found using a fit to mean field theory (Supplemental Material Figure 3.4). Magnetic polarons are found in the region below the line which is delineated by Hall effect and SANS measurements, and above the ferromagnetic transition line. The CMR effects are observed in this region of the phase diagram.

33]. Heuristically, magnetic polarons are composite objects that form when charge carriers polarise a puddle of local moments and become trapped in that puddle [34]. This mechanism is thought to be behind the large CMR effect in EuB_6 since the merger of these polarons leads to a substantially enhanced charge mobility. Magnetic polarons in EuB_6 were directly identified through a small angle neutron scattering (SANS) experiment [28], while scanning tunnelling microscopy (STM) shows that EuB_6 is electronically inhomogeneous in the same temperature region [26]. True ferromagnetic order, however, is established only at T_C [23, 35]. This scenario with a transition in two steps is supported by various experimental techniques, such as resistivity and magnetization measurements [23, 36], nonlinear Hall effect [27], or muon-spin rotation [32]. These previous experiments all show a linear upward trend of the phase boundary for the phase diagram due to magnetic polarons, as shown in Fig. 3.1.

In particular, the SANS experiment provided clear evidence for the presence of magnetic polarons in EuB_6 [28].

In this paper, we use angle-dependent magnetoresistance oscillations (AMRO) to map out the quantum nematic phase in EuB_6 and show that it exists in the same region of the phase diagram where magnetic polarons are observed, as shown in Fig. 3.1. The samples used in this study were grown by the same method as previously used for the sample in Refs. [23, 25], for details see the section on methods. To map out the polarons we recorded AMRO in an applied magnetic field up to 9 T rotated in a plane perpendicular or parallel to the current. In an extended region of the $H - T$ phase diagram, we observe a change from the expected four-fold pattern of a cubic system to a two-fold pattern indicating electronic nematicity (see Fig. 3.2). The colors in Fig. 3.1 show the strength of the symmetry breaking determined from the size of the two-fold contribution to ρ_{\perp} varying as $\cos(2\theta)$, where θ is the angle of the applied field in the plane transverse to the current (Fig 3.2a). Such dependence gives a different resistivity along axes that should be equivalent under cubic symmetry, such as $\theta = 0^\circ$ and 90° .

At low temperatures and small fields, we observe four-fold oscillations, which change to two-fold oscillations when the temperature is increased (see Fig. 3.2b). Below 1 T, there is a superposition of ferromagnetism and the quantum nematic from 14 K to 5 K. This shows that, in this region, both magnetic polarons and ferromagnetic domains co-exist. In the paramagnetic region, for fields above 3 T, we no longer observe two-fold oscillation, only four-fold oscillations even at low temperatures (see Fig. 3.2c). This symmetry reduction, from four-fold to two-fold, could potentially explain the smaller of the two specific heat anomalies [24, 23, 25]

This finding is in agreement with the results of a previous AMRO study on EuB_6 [37], where the same rotation axis was used. Magnetic polarons are observed below the line indicated by Hall effect and SANS experiments, as determined from specific heat measurements and above the ferromagnetic phase transition (see Fig. 3.7 of the Supplemental Material). This is also the region of the phase diagram where EuB_6 shows colossal magnetoresistance (CMR). However, as can be seen in Fig. 3.7 of the Supplemental Material, the two-fold AMRO contribution is strongest in a different section of the phase diagram than where the CMR is strongest.

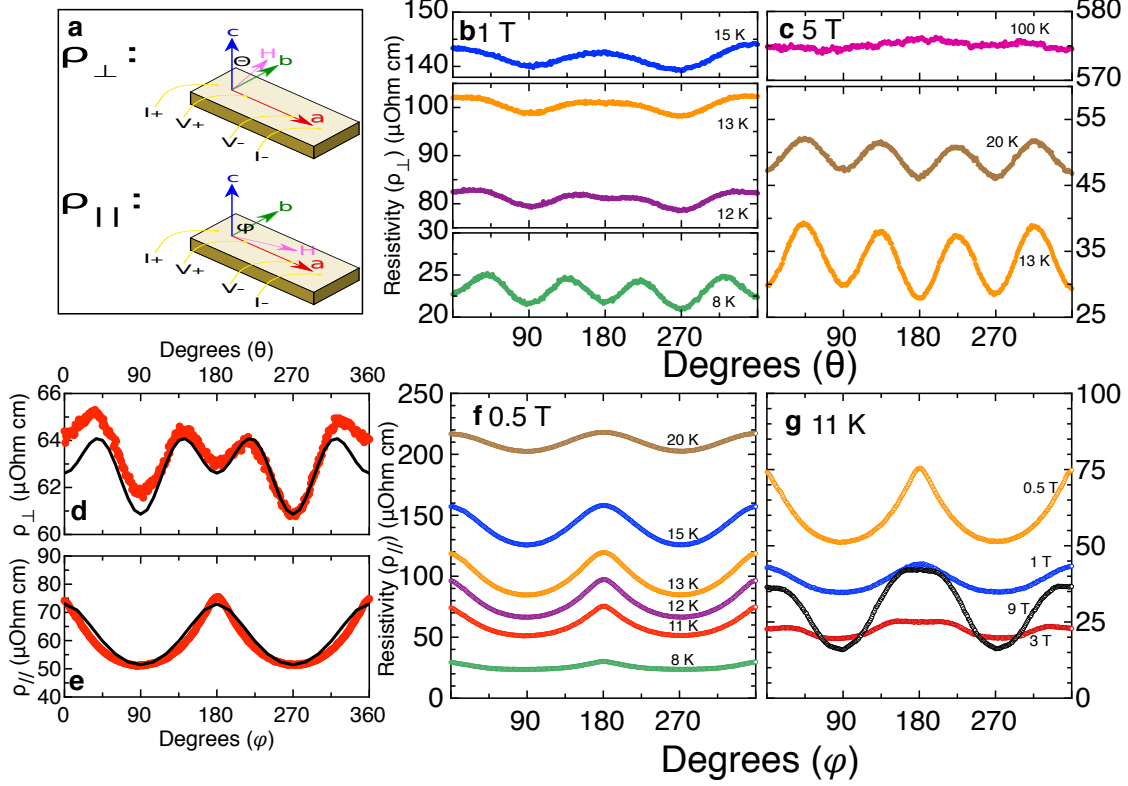


Figure 3.2. **a** Schematics of the measurement geometry: For ρ_{\perp} , the magnetic field H is rotated in the bc -plane, which is perpendicular to the current. With $\theta = 0$ we are starting from $H \parallel c$. For ρ_{\parallel} , the field is rotated in the ac -plane, which contains the direction of the current. Again, $\varphi = 0$ corresponds to $H \parallel c$. **b-c** Perpendicular magnetoresistance ρ_{\perp} versus the field angle θ . **d** Comparison of experimental results (circles) and theoretical calculations (solid line) for ρ_{\perp} at 11 K and a magnetic field of 1 T. **e** Comparison of experimental results (circles) and theoretical calculations (solid line) for ρ_{\parallel} at 11 K and a magnetic field of 0.5 T. The anisotropy for both is perpendicular to the current and correspond to a Fermi surface deformation of 1.5%. **f-g** Parallel magnetoresistance ρ_{\parallel} versus the field angle φ .

In the parallel direction (see Fig. 3.2b), where the magnetic field is rotated in a plane containing the direction of the current flowing along (100), the resistivity in non-crystalline and depends on the spin-orbit coupling. This results in a pattern which follows $\rho_{\parallel}(\varphi) = \rho_{\perp} + (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) \cos^2 \varphi$. In the nematic region of the phase diagram, the shape of the non-crystalline resistivity clearly changes as they becomes sharper near $\varphi = 0^{\circ}, 180^{\circ}, 360^{\circ}$ such as shown in Fig. 3.2e and f. Demagnetization effects can be an issue in ferromagnetic systems.

However, a calculation of the demagnetization for our samples shows that it cannot account for the observed AMRO effects (see Supplemental Material).

Other measurements like AC susceptibility (see Supplemental Material Fig. 3.4) and magnetostriction [30] show a linear trend in the middle of the polaron region. This trend matches the region of the phase diagram where the amplitude of the anisotropic resistivity starts to increase strongly, and where we observe a difference of more than 40% between ρ_{\perp} and ρ_{\parallel} . This clearly indicates where the magnetic polarons are most prominent. Similar experiments were carried out on CeB₆ [17]. They only revealed an extremely narrow region where the four-fold symmetry is broken. The symmetry breaking in CeB₆ is observed in the orbitally ordered antiferroquadrupole phase suggesting an orbital effect at the source. However, EuB₆ is a spin-only rare earth which suggests that here the nematicity is due to the spins. The interactions may be different but the observed behaviour shows comparable patterns, demonstrating that nematicity is a recurring phenomenon in the hexaborides. Our findings motivate further study of this exciting family of materials.

In the following, we shall perform theoretical modelling to gain further insight into our AMRO observations by using the relaxation time approximation for the conductivity. AMRO has been instrumental in the early understanding of the band structure of metals [38, 39]. More recently for example, it provided clear evidence for a nematic state and a symmetry-breaking of the Fermi surface in a high- T_c superconductor [9]. In the relaxation time approximation the wavevector \mathbf{k} of the electrons is taken as an almost-conserved quantity. In an applied magnetic field in the case of a spherical Fermi surface, electrons move in circular Landau orbits. During their orbital motion, electrons are scattered by random processes [40]. As the Fermi surface of most materials is not spherical, including the one of EuB₆, the electrons no longer move on circular orbits. This leads to an angular dependence of the magnetoresistance and consequently to angle-dependent oscillations in the magnetoresistance. This technique has been used with particular success in the case of metals with two dimensional Fermi surfaces such as organic conductors [41, 42] and Sr₂RuO₄ [40], where the effects are especially strong. Later, this technique was successfully used to demonstrate the presence of a Fermi surface in overdoped high temperature superconductor Tl₂Ba₂CuO_{6+ δ} [43], as well as in YBa₂Cu₃O_{6.58} [9].

The Fermi surface of EuB_6 was previously observed by de Haas-van Alphen (dHvA) measurements at 0.4 K [44]. The experimentally observed Fermi surface has a cubic symmetry with symmetric ellipsoids at the X points of the Brillouin zone (see Fig. 3.3d). A similar Fermi surface was also seen in angle resolved photoemission (ARPES) [45], which agrees well with band structure calculations [20]. As the dHvA measurements did not indicate a splitting of the Fermi surface, and tunneling experiments indicate a spin-splitting of the Fermi surface only in the ferromagnetic state, we did not take spin-splitting into consideration in our modelling. This Fermi surface has an electron pocket radius ratio of 1.8, and a ratio of 1.6 for the hole pockets. The ARPES data [45] allows us to estimate a radius of 0.1 \AA^{-1} for the ellipsoids. The temperature dependence of the amplitudes of the dHvA oscillations [18] gives an effective mass of $(0.225 \pm 0.01)m_e$ for the electrons and $(0.313 \pm 0.02)m_e$ for the holes. Here, m_e is the electron mass. Using all these parameters, we can calculate the conductivity tensor when a field is applied to the system through the Chambers formula [46, 47]:

$$\sigma_{ij} = \sum_{\alpha} \frac{e^2}{4\pi^3} \frac{m_{\alpha}^*}{\hbar^2 k_{F,\alpha}} \int_{S_{\alpha}} v_{i,\alpha}(\mathbf{k},0) d^2\mathbf{k} \int_0^{\infty} v_{j,\alpha}(\mathbf{k},t) e^{-t/\tau} dt \quad (3.3)$$

where S_{α} is the Fermi surface sheet associated with band α , $k_{F,\alpha}$ is the Fermi momentum of band α defined as $k_{F,\alpha} = \sqrt[3]{3\pi^2 n_{\alpha}}$, where n_{α} is the corresponding charge carrier density. The sum is over all occupied bands α , where $v_{i,\alpha}$ is the velocity component of band α (either electron or hole), and τ is the quasiparticle lifetime. In EuB_6 there is no anisotropy in the quasiparticle lifetime, unlike what is observed in some cuprates [9]. For EuB_6 the product of cyclotron frequency ω_c and τ is greater than one, therefore the quasiparticles on the Fermi surface complete at least one orbit before they scatter [48]. This removes some of the complexity in fitting which affects the shape of the AMRO oscillations. Furthermore, since the Fermi pockets in EuB_6 are far from the Brillouin zone boundaries, we can neglect large variation in the density of states due to a van Hove singularity [49].

From this formula, a four-fold oscillation in ρ_{\perp} is expected when the magnetic field is rotated in the $b - c$ plane (see Fig. 3.3a) due to the C_4 symmetry of the Fermi surface (see Fig. 3.3d). We were also able to reproduce the two-fold symmetry for ρ_{\parallel} when the magnetic field is rotated in the $a - c$ plane (see Fig. 3.3b). We can estimate from equation (3.3) that our sample in Fig. 3.2 has a carrier concentration of $4.38 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ below the ferromagnetic

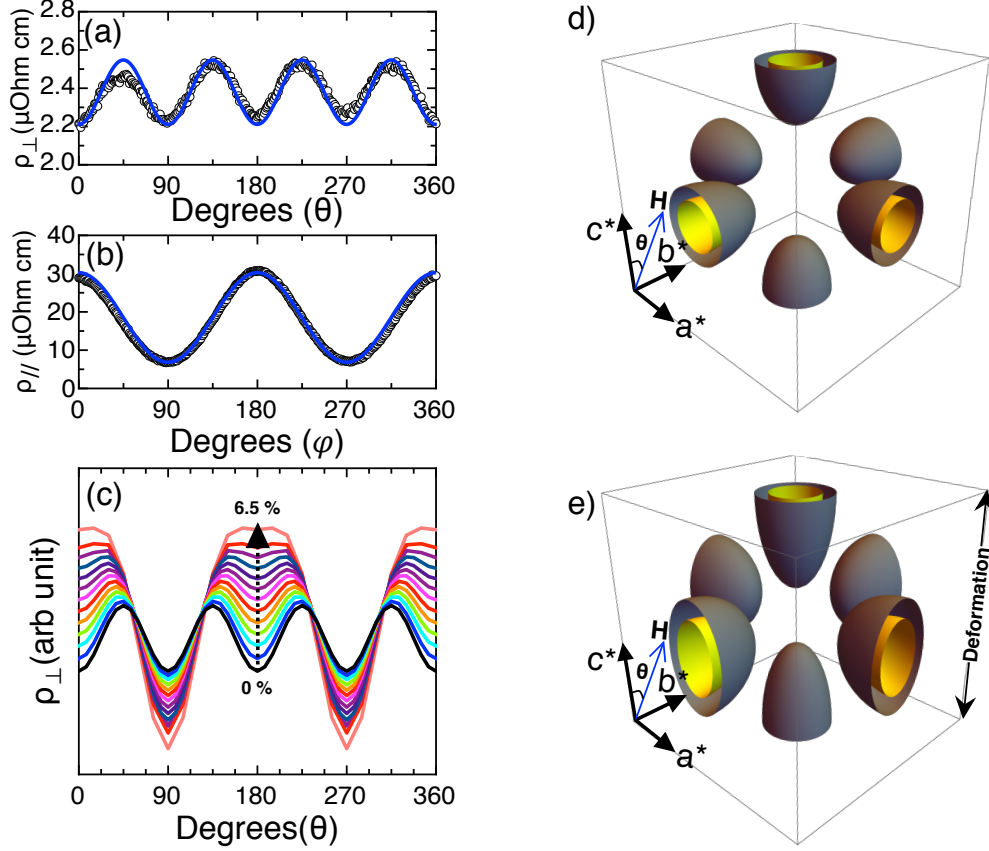


Figure 3.3. The angular dependence of the resistivity tensor in a magnetic field of 1 T as calculated from Eq. 3.3. (a) Calculated ρ_{\perp} with the field rotating in the $c - b$ plane and 0° is along the c -direction and the experimental data at 5 K (b) Calculated ρ_{\parallel} with the field rotating in the $c - a$ plane and 0° is along the c -direction and the experimental data at 20 K (c) Calculated ρ_{\perp} when a deviation of 0% (black) to 6.5% (uppermost pink line) is applied to the Fermi surface in the b or c direction. The arrow is showing the increase in the deviation from the four-fold pattern with the increasing deformation. (d) The Fermi surface of EuB_6 with no deformation, as observed by dHvA [44]. The grey outer ellipsoids show the electron pockets and the yellow inner ellipsoids the holes. There are a total of six half ellipsoids in one unit cell for both electrons and holes. (e) Exaggerated Fermi surface deformation of the ellipsoids used in the calculation of ρ_{\perp} .

transition, close to results from other experiments [19, 36] (see Supplemental Material for details). As seen in our experimental work, there is a region of the phase diagram where the resistivity changes from four-fold to two-fold. To induce this breaking of the C_4 symmetry, we

added a small parameter that modifies the Fermi surface in one direction, and looked at the changes in ρ_{\perp} and ρ_{\parallel} . Fig. 3.3e illustrates the symmetry breaking when the ellipsoids become stretched along c . We can match our experimental AMRO curves with our calculations (see Figs.3.2d-e), suggesting that the electronic phase separation breaks the symmetry of the Fermi surface. The small difference in the asymmetry between the experimental data and the calculations partly stems from a small misalignment of the sample of less than one degree.

The role electronic phase separation and magnetic polarons [3, 50] play in high temperature superconductivity clearly motivates the need for a model system for studying magnetic polarons. In EuB_6 , the regions of the $H - T$ -phase diagram where SANS indicates magnetic polarons and where AMRO displays quantum nematicity coincide, providing strong evidence that both nematicity and magnetic polarons originate from the same electronic correlations. This makes our results on EuB_6 particularly important, as unlike the high temperature superconductors, EuB_6 possesses a high degree of structural order without a nearby lattice instability [51]. EuB_6 is thus an excellent model system to study quantum nematicity. Further, the presence of both an electronic nematic and colossal magnetoresistance suggest that EuB_6 can be used as a novel platform for spintronic devices [52]. This promises a way to harness strong electronic correlations for spintronic applications, and motivates the search for other materials with magnetic polarons.

Methods

EuB_6 was flux-grown with a ratio of 14 mg of EuB_6 per gram of Al flux. The mixture was heated in a Al_2O_3 crucible using a vertical tube furnace to 1500°C at a rate of $200^{\circ}\text{C}/\text{hour}$ in a flow of high purity Ar. The mixture was held at that temperature for 10 hours and then cooled down to 1000°C at a rate of $5^{\circ}\text{C}/\text{hour}$ [53]. The crystals were separated from the Al flux in boiling sodium hydroxide.

Resistivity was measured for temperatures between 1.8 and 300 K and magnetic fields between 0 and 9 T with a Quantum Design Physical Properties Measurement System (PPMS) rotator using four-point contacts with spot-welded gold wires. Resistivity measurements versus the field angle were made in two different configurations. First, the field was applied in the plane perpendicular to the current. Secondly, the field was applied in the plane parallel to the current. At the measured temperatures, no hysteresis was observed. The experiment

was done on multiple samples with different directions and different shapes. The shape did not change the results.

Supplementary Information

Sample characterization

The magnetic susceptibility was measured with a Quantum Design PPMS AC susceptibility option with the field applied along (111). The oscillating field was 5 Oe with a frequency of 77 Hz. Fig. 3.4 shows the second order magnetic susceptibility χ'' . The peak in χ'' at the lower temperature corresponds to the ferromagnetic transition, while the peak at higher temperatures corresponds to where the signal of magnetic polarons is strongest. The positions of the high temperature peaks are shown as red squares in Fig. 3.1 of the main text.

Fig. 3.5 shows the electrical resistivity $\rho(T)$ and specific heat capacity $C_p(T)$ of EuB_6 . ρ was measured between 2 and 300 K with a Quantum Design Physical Property Measurement System (PPMS) using four-point contacts. Magnetoresistance $(\rho_0 - \rho(H))/\rho_0$, where ρ_0 is the electrical resistivity in zero field, at different magnetic fields and temperatures was used to produce the CMR phase diagram shown in Fig. 3.7 of the supplemental material. The specific heat C_p was measured in a PPMS using a ^3He insert from 0.4 to 30 K.

Aluminum inclusions

Previous interpretations of dHvA Fermi surface measurements of SmB_6 were plagued by aluminum inclusions, see Refs. [54, 55]. It was found that the aluminum inclusions are epitaxial single crystals co-oriented with the (100) direction SmB_6 . We would expect the same growth direction for aluminum inclusions in EuB_6 . Such inclusion, if present, would then lead to four-fold AMRO pattern [56], with the same angle dependence as observed at high temperatures and high magnetic fields in EuB_6 . Thus, we believe, that the lowering of the symmetry in the AMRO from four-fold to two-fold in EuB_6 cannot be explained by the presence of epitaxial aluminum inclusions.

Demagnetisation effects

In ferromagnetic materials, the demagnetisation due to the geometric effects of the sample can lead to a internal fields that are different from the applied field for different orientations. This could result in an effective anisotropic magnetoresistance oscillation (AMRO) contribution, which is only due to demagnetisation. Fig. 3.6 shows the demagnetisation factor D for samples used in the AMRO measurements. The difference between the demagnetization factor $D_{(010)}$ along the (010), and $D_{(001)}$ along (010) is smaller than 5%, as our samples are bars with an almost square cross-section. This calculation was done using uses the formulas given in Ref. [57] for a ferromagnetic rectangular prism.

AMRO calculations

Eq 1 of the manuscript was calculated over the Fermi Surface, S , illustrated in Figs 3.3d-e of the manuscript. The total Fermi energy for one closed pocket (for example the electron band at position X) is [58] :

$$E_F = \frac{V}{(2\pi)^3} \frac{\hbar^2}{2m^*} \iiint_{\left\{\frac{k_x^2}{k_a^2} + \frac{k_y^2}{k_a^2} + \frac{k_z^2}{k_b^2} \leq 1\right\}} dk_x dk_y dk_z (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \quad (3.4)$$

$$E_F/N = \frac{\hbar^2}{2m^*} k_F^2 \quad \text{where} \quad k_F^2 = \frac{4}{15}(2k_a^2 + k_b^2) \quad (3.5)$$

and k_a is the minor axis and k_b is the major axis. These axis are linked to the volume of the Fermi surface and hence, to the charge carrier density. So, we can obtain the minor axis from the ratio radii of the $R^* = k_b/k_a$ and the density of charge carriers n as:

$$k_a = \frac{\sqrt[3]{3\pi^2 n}}{\sqrt{\frac{4}{15}(2 + R^{*2})}} \quad (3.6)$$

Here, n and R^* will be different for the two bands (electrons and holes). The velocity of the charge carriers was calculated as follow:

$$\mathbf{v}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E(\mathbf{k}) \quad (3.7)$$

and

$$E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2}{2m^*} \mathbf{k}^2 \quad (3.8)$$

Values	Electron band	Hole band
R^* [18]	1.6	1.8
m^* [36]	0.24	0.29
τ [47]	8.5 cm^{-1}	8.5 cm^{-1}
n [36]	$6.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	$6.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
n [19]	$3.23 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	$3.05 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
n_{calc}	$4.38 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	$4.38 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$

Table 3.2. Experimental data used for AMRO calculations

where \mathbf{k} is a wave vector on the Fermi surface. Thus, the velocity becomes, for example for the electrons at the point X:

$$\mathbf{v}(\mathbf{k}) = \frac{\hbar}{m^*} \left(3k_x, k_y, k_z \right). \quad (3.9)$$

For the propagation of the particle along a trajectory on the Fermi surface, we use the following equation of motion:

$$\hbar \frac{d\mathbf{k}}{dt} = q\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{B}(\theta, \varphi), \quad (3.10)$$

where \mathbf{B} is the applied magnetic field at specific angles θ and φ . The integral over time was taken from 0 to 9τ , giving time for the particle to do more than one revolution around the Fermi surface and for the integral to converge. In the case of EuB_6 the scattering rate $1/\tau$ reported by Ref. [47] $1/\tau = 8.5 \text{ cm}^{-1} = 4.05 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ is smaller than the cyclotron frequency ($\omega_c = \frac{eB(1\text{T})}{2\pi m^*} = 1.2 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$). This means that in EuB_6 the electrons complete more than one revolution around the Brillouin zone before they scatter. Also, in EuB_6 the Fermi pockets are far from the Brillouin zone boundaries. As a consequence, for EuB_6 the contribution from an anisotropic scattering rate can be neglected. This is very different from the situation in $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_1\text{O}_{6+\delta}$ [59]. In order to speed up calculations, we also assumed a uniform density of the charge carriers. Fig. 3.8 shows the dependence of the resistivity on the density of charge carriers. We estimate that sample contains approximately the same concentration of $4.38 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ of holes and electrons at low fields and low temperatures.

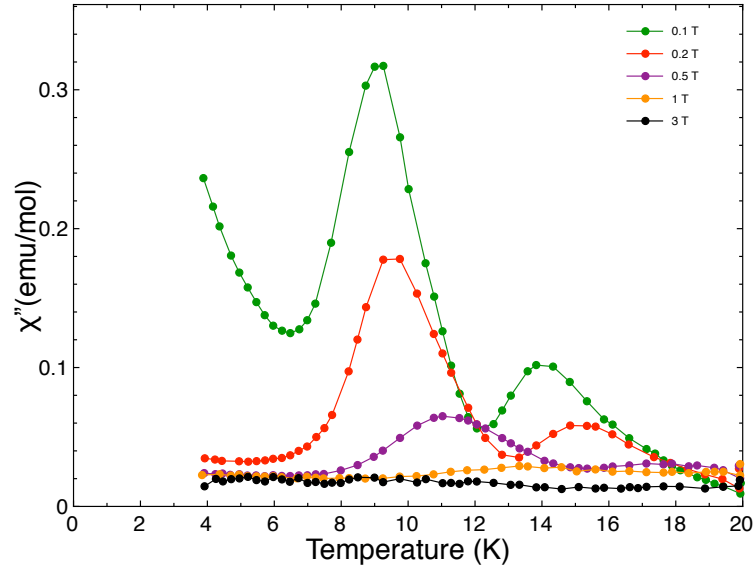


Figure 3.4. Imaginary part of the magnetic susceptibility χ'' versus temperature for different applied fields. The second maximum in χ'' coincides with where the AMRO is strongest.

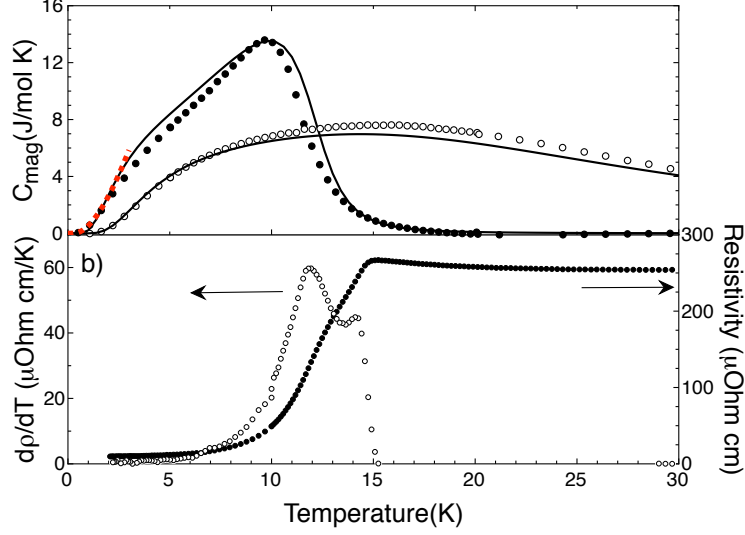


Figure 3.5. Specific heat and electrical resistivity of EuB_6 **a** Magnetic specific heat capacity $C_M = C_p - C_{\text{ph}}$ after subtraction of the phonon contribution C_{ph} of EuB_6 at zero field. The curves correspond to 0 T (full circle) and 5 T (empty circle). The black line is a fit to the mean field ferromagnet model for the heat capacity [60]. A field of 0.1 T was used for the zero field data. The red dashed line is a fit to a spin wave contribution, which is proportional to $T^{3/2}e^{-\Delta/T}$ [61]. It gives a gap of $\Delta = 1.11 \pm 0.03$ K similar to the one reported by NMR techniques[62]. Contrary to previous work[24], we only see a shoulder at the onset of T_M instead of a second peak in C_M . **b** Electrical resistivity ρ at zero field, and its temperature derivative $\partial\rho/\partial T$ versus temperature.

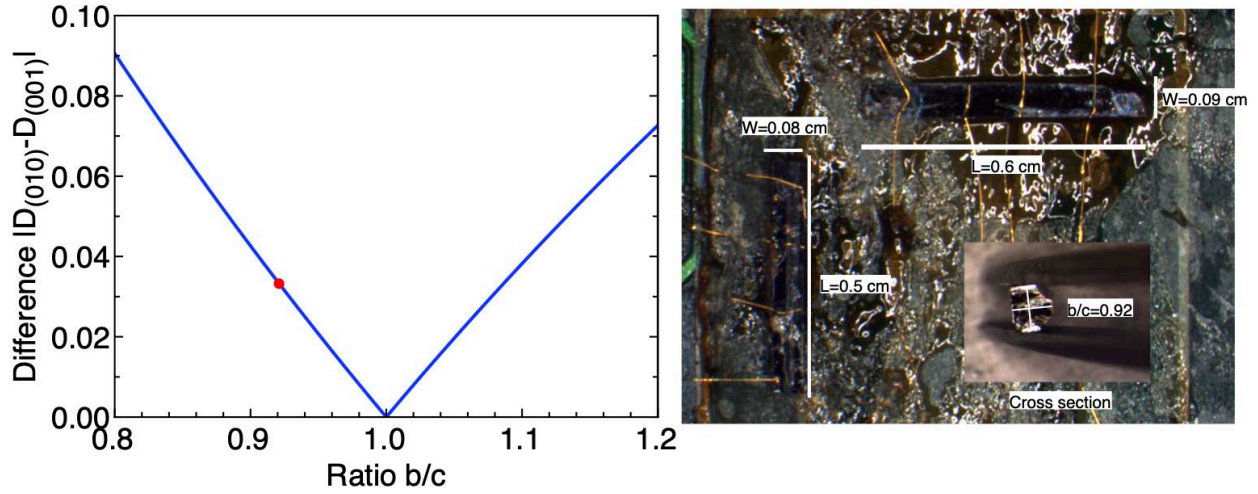


Figure 3.6. (Left) **Demagnetisation factor** Difference in demagnetisation factor ($D_{010} - D_{001}$) for a square prism evaluated using (J. Appl. Phys., **83**, 6, 3432 (1998)). For our samples, the difference between the two directions is less than 5%. (Right) **Picture of samples** The left sample was used for measurements of ρ_{\parallel} and the one on the right for ρ_{\perp} .

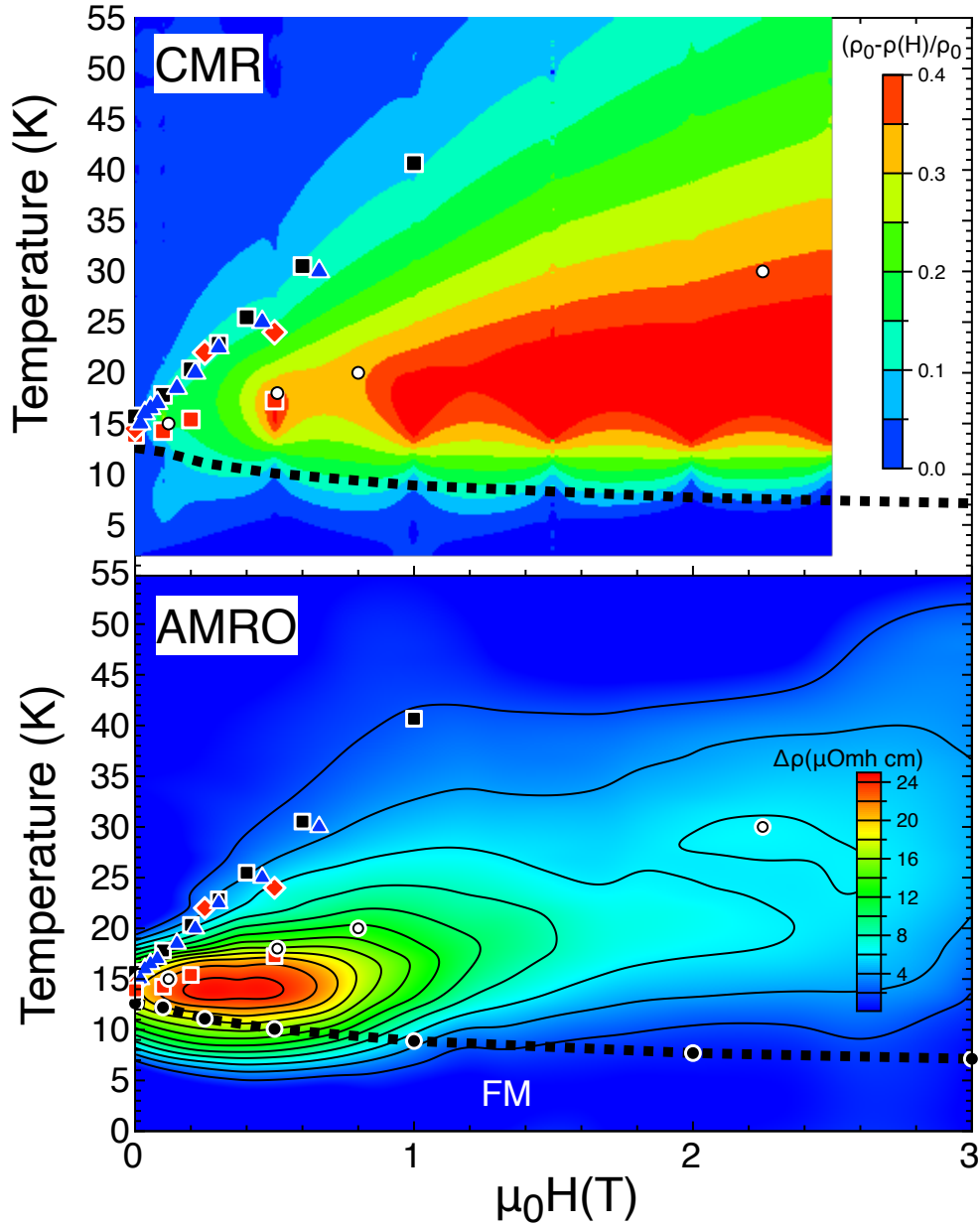


Figure 3.7. CMR versus AMRO. Bottom: (Full black squares) Hall effect measurements [27], (Red diamonds) small-angle neutron scattering measurements [28], (teal triangles) magnetoresistance peak [29], (Open black circles) magnetostriction [30], (Red squares) T_M taken from χ'' measurements (Supplemental Material Figure 3.4). (Black circles) T_C from heat capacity found using a fit to mean field theory (Supplemental Material Figure 3.5). Top: $(\rho_0 - \rho(H))/\rho_0$, where ρ_0 is the electrical resistivity in zero field.

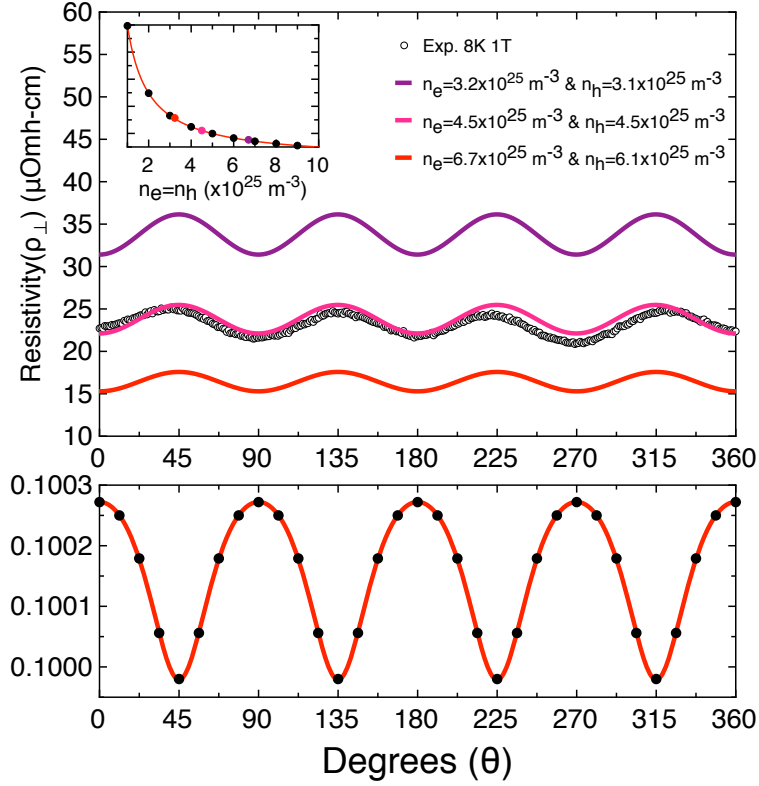


Figure 3.8. Calculation for ρ_{\perp} for different charge carrier densities. The top panel shows the comparison between our measurements and the one from Wigger *et al.*, [36] and Zhang *et al* [19]. The inset shows the relation between $\rho(\theta = 0)$ and n which is inversely proportional. The bottom panel shows what happens to the shape of the resistivity when there is a difference in density between the holes and electrons of more than an order of magnitude.

Bibliography

- [1] Lilly, M. P., Cooper, K. B., Eisenstein, J. P., Pfeiffer, L. N. & West, K. W. Evidence for an Anisotropic State of Two-Dimensional Electrons in High Landau Levels. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 394–397 (1999).
- [2] Borzi, R. A. *et al.* Formation of a Nematic Fluid at High Fields in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$. *Science* **315**, 214–217 (2007).
- [3] Kivelson, S. A., Fradkin, E. & Emery, V. J. Electronic liquid-crystal phases of a doped Mott insulator. *Nature* **393**, 550–553 (1998).
- [4] MacDonald, A. H. & Fisher, M. P. A. Quantum theory of quantum Hall smectics. *Phys. Rev. B* **61**, 5724–5733 (2000).
- [5] Cheong, S.-W. *et al.* Incommensurate magnetic fluctuations in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1791–1794 (1991).
- [6] Tranquada, J. M. *et al.* Coexistence of, and Competition between, Superconductivity and Charge-Stripe Order in $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 338–341 (1997).
- [7] Ando, Y., Segawa, K., Komiya, S. & Lavrov, A. N. Electrical Resistivity Anisotropy from Self-Organized One Dimensionality in High-Temperature Superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002).
- [8] Hinkov, V. *et al.* Electronic Liquid Crystal State in the High-Temperature Superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$. *Science* **319**, 597–600 (2008).
- [9] Ramshaw, B. J. *et al.* Broken rotational symmetry on the Fermi surface of a High-Tc superconductor. *npj Quantum Materials* **2** (2017).
- [10] Chuang, T.-M. *et al.* Nematic electronic structure in the "parent" state of the iron-based superconductor $\text{Ca}(\text{BaFe}_{1-x}\text{Co}_x)\text{As}_2$. *Science* **327**, 181–184 (2010).
- [11] Fernandes, R. M., Chubukov, A. V. & Schmalian, J. What drives nematic order in iron-based superconductors? *Nature Phys.* **10**, 97 (2014).
- [12] Watson, M. D. *et al.* Emergence of the nematic electronic state in FeSe. *Phys. Rev. B* **91**, 155106 (2015).
- [13] Pomeranchuk, I. I. On the stability of a fermi liquid. *J. Exp. Theo. Phys.* **8**, 361 (1959).
- [14] Dell'Anna, L. & Metzner, W. Electrical Resistivity near Pomeranchuk Instability in Two Dimensions. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 136402 (2007).

- [15] Yamase, H. & Metzner, W. Fermi-surface truncation from thermal nematic fluctuations. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 186405 (2012).
- [16] Ronning, F. *et al.* Electronic in-plane symmetry breaking at field-tuned quantum criticality in CeRhIn₅. *Nature* **548**, 313 (2017).
- [17] Demishev, S. V. *et al.* Electron nematic effect induced by magnetic field in antiferro-quadrupole phase of CeB₆. *Sci. Rep.* **7**, 17430 (2017).
- [18] Aronson, M. C., Sarrao, J. L., Fisk, Z., Whitton, M. & Brandt, B. L. Fermi surface of the ferromagnetic semimetal, EuB₆. *Phys. Rev. B* **59**, 4720 (1999).
- [19] Zhang, X., von Molnár, S., Fisk, Z. & Xiong, P. Spin-dependent electronic states of the ferromagnetic semimetal EuB₆. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 1–4 (2008).
- [20] Massidda, S., Continenza, A., de Pascale, T. M. & Monnier, R. Electronic structure of divalent hexaborides. *Physik B Condensed Matter* **102**, 83–89 (1996).
- [21] Tromp, H., Kelly, P., van Gelderen, P., Bobbert, P. & Brocks, G. CaB₆: A new semi-conducting material for spin electronics. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 16401 (2001).
- [22] Kim, J. *et al.* Spin-split conduction band in EuB₆ and tuning of half-metallicity with external stimuli. *Phys. Rev. B* **87**, 155104 (2013).
- [23] Süllow, S. *et al.* Structure and magnetic order of EuB₆. *Phys. Rev. B* **57**, 5860–5869 (1998).
- [24] Degiorgi, L., Felder, E., Ott, H., Sarrao, J. & Fisk, Z. Low-temperature anomalies and ferromagnetism of EuB₆. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5134–5137 (1997).
- [25] Süllow, S. *et al.* Metallization and magnetic order in EuB₆. *Phys. Rev. B* **62**, 11626–11632 (2000).
- [26] Pohlit, M. *et al.* Evidence for ferromagnetic clusters in the colossal-magnetoresistance material EuB₆. *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018).
- [27] Zhang, X., Yu, L., von Molnár, S., Fisk, Z. & Xiong, P. Nonlinear hall effect as a signature of electronic phase separation in the semimetallic ferromagnet EuB₆. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 106602 (2009).
- [28] Beaudin, G. *et al.* Strong polaron–spin fluctuations drive the insulator–semimetal transition in low-density electron gases. *in preparation* (2019).
- [29] Das, P. *et al.* Magnetically driven electronic phase separation in the semimetallic ferromagnet EuB₆. *Phys. Rev. B* **86**, 184425 (2012).

- [30] Manna, R. S. *et al.* Lattice strain accompanying the colossal magnetoresistance effect in EuB_6 . *Phys. Rev. Lett.* **113**, 067202 (2014).
- [31] Nyhus, P. *et al.* Spectroscopic study of bound magnetic polaron formation and the metal-semiconductor transition in EuB_6 . *Phys. Rev. B* **56**, 2717–2721 (1997).
- [32] Brooks, M. L. *et al.* Magnetic phase separation in EuB_6 detected by muon spin rotation. *Phys. Rev. B* **70**, 20401 (2004).
- [33] Kim, J., Kim, Y. J., Kuneš, J., Cho, B. K. & Choi, E. J. Optical spectroscopy and electronic band structure of ferromagnetic EuB_6 . *Phys. Rev. B* **78**, 1–5 (2008).
- [34] Wegener, L. & Littlewood, P. Fluctuation-induced hopping and spin-polaron transport. *Phys. Rev. B* **66**, 224402 (2002).
- [35] Henggeler, W., Ott, H., Young, D. P. & Fisk, Z. Magnetic ordering in EuB_6 , investigated by neutron diffraction. *Solid State Commun.* **108**, 929–932 (1998).
- [36] Wigger, G. A., Monnier, R., Ott, H. R., Young, D. P. & Fisk, Z. Electronic transport in EuB_6 . *Phys. Rev. B* **69**, 125118 (2004).
- [37] Urbano, R. R. *et al.* Magnetic polaron and fermi surface effects in the spin-flip scattering of EuB_6 . *Phys. Rev. B* **70**, 140401 (2004).
- [38] Kapitza, P. The change of electrical conductivity in strong magnetic fields. part i. experimental results. *Proc. R. Soc. A* **123**, 292–341 (1929).
- [39] Jones, H. & Zener, C. The theory of the change in resistance in a magnetic field. *Proc. R. Soc. A* **145**, 268–277 (1934).
- [40] Bergemann, C., Mackenzie, A. P., Julian, S. R., Forsythe, D. & Ohmichi, E. Quasi-two-dimensional fermi liquid properties of the unconventional superconductor Sr_2RuO_4 . *Adv. Phys.* **52**, 639–725 (2003).
- [41] Yamaji, K. On the angle dependence of the magnetoresistance in quasi-two-dimensional organic superconductors. *J. Phys. Soc. Jpn* **58**, 1520–1523 (1989).
- [42] Yagi, R., Iye, Y., Osada, T. & Kagoshima, S. Semiclassical interpretation of the angular-dependent oscillatory magnetoresistance in quasi-two-dimensional systems. *J. Phys. Soc. Jpn* **59**, 3069–3072 (1990).
- [43] Hussey, N. E., Abdel-Jawad, M., Carrington, A., Mackenzie, A. P. & Balicas, L. A coherent three-dimensional fermi surface in a high-transition-temperature superconductor. *Nature* **425**, 814–817 (2003).

- [44] Goodrich, R. G. *et al.* Fermi surface of ferromagnetic EuB_6 . *Phys. Rev. B* **58**, 14896–14902 (1998).
- [45] Denlinger, J. *et al.* Bulk band gaps in divalent hexaborides. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 1–4 (2002).
- [46] Chambers, R. G. The kinetic formulation of conduction problems. *Proc. Phys. Soc.* **65** (1952).
- [47] Snow, C. S. *et al.* Magnetic polarons and the metal-semiconductor transitions in $(\text{Eu,Lu})\text{B}_6$ and EuO : Raman scattering studies. *Phys. Rev. B* **64**, 174412 (2001).
- [48] Hussey, N. E., Abdel-Jawad, M., Carrington, A., Mackenzie, A. P. & Balicas, L. A coherent three-dimensional fermi surface in a high-transition-temperature superconductor. *Nature* **425 (6960)**, 814 – 817 (2003).
- [49] Matt, C. E. *et al.* 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).
- [50] Bianconi, A. & Saini, N. *Stripes and Related Phenomena*. Selected Topics in Superconductivity (Springer US, 2006).
- [51] Booth, C. H. *et al.* Local and average crystal structure and displacements of La^{11}B_6 and EuB_6 as a function of temperature. *Phys. Rev. B* **63**, 224302 (2001).
- [52] Awschalom, D. D. & Flatté, M. E. Challenges for semiconductor spintronics. *Nature Phys.* **3**, 153–159 (2007).
- [53] Fisk, Z., Johnston, D. C. & Cornut, B. Magnetic, transport, and thermal properties of ferromagnetic EuB_6 . *J. Appl. Phys.* **50**, 4 (1979).
- [54] Phelan, W. A. *et al.* On the chemistry and physical properties of flux and floating zone grown SmB_6 single crystals. *Scientific Reports* **6**, 20860 (2016).
- [55] Thomas, S. *et al.* Quantum oscillations in flux-grown SmB_6 with embedded aluminum. *Phys. Rev. Lett.* **122**, 166401 (2019).
- [56] Balcombe, R. J. The magneto-resistance of aluminium. *Proc. R. Soc. London* **275**, 113–134 (1963).
- [57] Aharoni, A. Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms. *J. of Appl. Phys.* **83**, 3432–3434 (1998).

- [58] Ciftja, O. Impact of an elliptical fermi surface deformation on the energy of a spinless two-dimensional electron gas. *Physica Scripta* (2019).
- [59] Analytis, J. G., Abdel-Jawad, M., Balicas, L., French, M. M. J. & Hussey, N. E. Angle-dependent magnetoresistance measurements in $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ and the need for anisotropic scattering. *Phys. Rev. B* **76** (2007).
- [60] Rodríguez, J. F. & Blanco, J. A. Temperature dependence of the molar heat capacity for ferromagnets within the mean field theory. *Physica Scripta* **71**, CC19 (2005).
- [61] Coqblin, B. *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys: the Magnetic Heavy Rare-Earths*. A Anouk (Academic Press, 1977).
- [62] Ambrosini, B. *et al.* NMR studies of EuB_6 at low temperatures. *Phys. Rev. B* **60**, 3361–3369 (1999).

Deuxième article.

Strong polaron–spin fluctuations drive the insulator–semimetal transition in low-density electron gases

par

G. Beaudin^{1,2}, A. Désilets-Benoit^{1,2}, R. Arnold³, S. Samothrakitis^{3,4,5}, K. Stenning⁶, M. Nicklas⁷, S. Gerber⁸, N. Egetenmeyer⁹, J. L. Gavilano⁹, M. Kenzelmann⁹, R. Cubitt¹⁰, C. Dewhurst¹⁰, M. Laver¹¹ & A. D. Bianchi^{2,1}

- (¹) Département de Physique, Université de Montréal, Montréal, Québec, H3C 3J7, Canada
- (²) Regroupement Québécois sur les Matériaux de Pointe (RQMP)
- (³) School of Metallurgy and Materials, University of Birmingham, Birmingham, UK
- (⁴) Nuclear Physics Institute, Academy of Sciences of the Czech Republic, Řež, Czech Republic
- (⁵) Institute of Physics, Czech Academy of Sciences, Prague, Czech Republic
- (⁶) Imperial College London, London, UK
- (⁷) Max Planck Institute for Chemical Physics of Solids, Dresden, Germany
- (⁸) Laboratory for Micro and Nanotechnology, Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland
- (⁹) Laboratory for Neutron Scattering and Imaging, Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland
- (¹⁰) Large Scale Structures Group, Institut Laue Langevin, Grenoble, France
- (¹¹) Department of Physics, University of Warwick, Coventry CV4 7AL, United Kingdom

Cet article a été soumis à la revue en préparation.

Les principales contributions de Gabrielle Beaudin à cet article sont présentées.

- Participation aux expériences de SANS;
- Analyse des données de SANS;
- Prise des données thermodynamiques;
- Écriture de la partie discussion.

RÉSUMÉ. Une des questions en suspens en physique concerne la formation des moments magnétiques dans les systèmes métalliques à faible densité de porteurs. Actuellement, cela n'est compris que dans le cas de moments bien localisés qui interagissent faiblement avec des électrons itinérants. Nous présentons ici le cas d'un système de modèle ferromagnétique simple dans lequel les électrons de conduction sont polarisés par les électrons f localisés des moments d'Europium formant un nuage quantique fortement couplé, appelé *polaron magnétique*[41, 19, 28, 24, 43, 5]. Ce qui rend fascinante la physique d'une impureté se déplaçant dans un environnement magnétique, c'est le fait que les interactions fortes conduisent à une séparation de phase électronique à l'échelle du nanomètre, malgré le fait que ces matériaux sont chimiquement homogènes. La réponse à cette question a de nombreuses applications allant de la capacité à développer de nouveaux matériaux pour les applications spintroniques [33] avec le potentiel de révolutionner l'électronique pour comprendre la supraconductivité à haute température [12, 2, 13]. Nous présentons ici les résultats d'une étude sur la diffusion neutronique aux petits angles (SANS) montrant l'impact considérable des polarons magnétiques sur les fluctuations ferromagnétiques dans EuB_6 , en mettant clairement en évidence leur implication dans la transition entre l'isolant et le semi-métal à la suite de fluctuations magnétiques à grande échelle. Compte tenu de l'absence de distorsion du réseau à proximité, l' EuB_6 est un système modèle pour l'étude de ces nouvelles quasi-particules.

Mots clés : Ferromagnétisme, polarons magnétiques, transition métal-isolant, fluctuations magnétiques

ABSTRACT. One of the outstanding questions in physics is how magnetic moments in metallic systems of low carrier density form. Currently this is only understood in the case of well-localized moments that interact weakly. Here we present the case of a simple ferromagnetic model system in which the conduction electrons are polarized by the localized f -electrons of Europium moments forming a quantum mechanically strongly coupled cloud, the so-called “*magnetic polaron*”[41, 19, 28, 24, 43, 5]. What makes the physics of an impurity moving in a magnetic background fascinating is the fact the strong interactions lead to an electronic phase separation at the nano-metre scale, despite the fact that these materials are chemically homogeneous. An answer to this question has wide ranging applications from the ability to develop new materials for spintronic applications[33] with the potential to revolutionize electronics to comprehending high-temperature superconductivity[12, 2, 13]. Here we present results of a small angle neutron scattering (SANS) study showing the dramatic influence of magnetic polarons on ferromagnetic fluctuations in EuB_6 , giving clear evidence for their involvement in the insulator-to-semi-metal transition as the result of large scale magnetic fluctuations. Given the absence of a nearby lattice distortion, this makes EuB_6 a model system for studying these new quasiparticles.

Keywords: Ferromagnetism, magnetic polarons, metal-insulator transition, magnetic fluctuation

Magnetic polarons can exist in the low temperature phases of antiferromagnets and the paramagnetic phase of ferromagnets, as long as the carrier density is lower than the inverse size of a magnetically correlated volume[24, 43, 5]. However, until now, they have not been directly observed. Their presence is expected in high temperature superconductors for example, where one starts out with a strongly correlated antiferromagnetic insulator, which will be doped with holes or electrons. The holes are mobile impurities, who do not stay localized. They will move in a background of strongly fluctuating magnetic moments and they become dressed with a magnetic cloud, the magnetic polaron[12, 2, 13]. Also, the distribution of these holes does not remain uniform, but they attract each other, which leads to an electronic phase separation[12]. The strong interaction between hole motion and antiferromagnetism is believed to be at the heart of understanding the superconductivity in the cuprates[13].

Magnetic polarons were actually first proposed in the late sixties to describe the large magnetoresistive effects in the Europium chalcogenides. In these systems, the magnetic polarons are thought to be formed by the spin polarisation of the mobile charge carriers because of localised $4f$ moments. This leads to the formation of magnetic “bubbles” and

the localisation of charge carriers within them. As a result of the polaron formation, the system displays colossal magnetoresistive (CMR) behaviour[41, 19, 28, 24, 43]. An optical signature of magnetic polarons was seen in EuTe[17]. It is this CMR effect which could lead to new forms of transistors in spintronic applications[33]. Here we present for the first time direct evidence for the presence of magnetic polarons and their drastic modifications of spin fluctuations from small angle neutrons scattering (SANS) in ferromagnetic EuB₆.

EuB₆ has a simple cubic crystal structure ($Pm\bar{3}m$) and yet the interplay between electronic and magnetic properties are still subject to controversy[43, 31, 5]. The insulator to semi-metal transition in EuB₆ is concomitant with a ferromagnetic transition[15]. Measurements of the physical properties of EuB₆ display many similarities with the perovskite CMR compounds[30, 39, 4, 20, 45, 8, 25]. A recent scanning tunnelling microscopy (STM) study showed that EuB₆, the material studied here, becomes electronically inhomogeneous at a scale of 3 to 4 nm at low temperatures, while measurements with a micro Hall-bar also point to the presence of magnetic inhomogeneities in the same temperature range[32]. This is the very electronic phase separation that is expected from magnetic polarons.

At the time, the similarities of properties of EuB₆ with the manganites led to the suggestion that magnetic polarons are responsible for the phase transition in EuB₆ and the observed CMR effects. While early SANS measurements suggested the presence of magnetic polarons in the manganites, subsequent SANS studies on manganite perovskites showed that samples with a large CMR effect show macroscopic regions of phase separation between antiferromagnetic insulating regions and metallic ferromagnetic regions. It was demonstrated that the SANS signal really originated from non-magnetic nanometric regions inside the larger ferromagnetic regions, ruling out the magnetic polarons as the source of the CMR effects in the manganite perovskites[37, 36]. Moreover, the CMR effects in the manganites are always accompanied by a local lattice distortion[9, 10]. This is the behaviour of conventional “*lattice*”, or Jahn-Teller polarons, and the distortions do not represent a fluctuating state but rather static lattice distortions[16]. Such lattice distortions, are notably absent in EuB₆[3].

EuB₆ is a magnetic semiconductor, which exhibits two phase transitions[11]. Upon cooling from an insulating state at high temperatures, it first becomes a semi-metal, indicated by a drop in resistivity at a temperature T_M of 14.5 K (see Fig. 4.7 of the Extended Data). At the Curie temperature T_C of 11.8 K, it orders ferromagnetically as observed by neutron

diffraction[15] and AC susceptibility (see Fig. 4.9 of the Extended Data). The critical temperatures from various measurements are listed in Tab. 4.3 of the Extended Data. EuB_6 displays CMR near T_C [39]. Also, the material has a very low charge carrier density[44] of $\approx 10^{25} \text{ m}^{-3}$ at 20 K, which coexists with localised pure spin $4f$ Eu moments ($S = 7/2$). This puts EuB_6 into the regime where magnetic polarons are expected to strongly affect the electrical conductivity[24, 43, 5](See Fig. 4.2b). This scenario where magnetic polarons in EuB_6 are responsible for the CMR effects is supported by a number of experiments, such as muon spin rotation[4], which indicates a magnetic phase separation, an anomalous Hall effect[45], an increasing signal in noise-spectroscopy measurements[8] and an increase in lattice strain[25]. Together, with the absence of a local lattice distortion[3], this makes EuB_6 a clean experimental platform to study magnetic polarons, a new class of quasiparticles, which have not yet been fully understood. We used small angle neutron scattering (see Fig. 4.5 of the Extended Data) to observe the effect of magnetic polarons in EuB_6 . For this, we studied three regimes of scattering vectors q for low, medium and high momentum transfers which probe different length scales from large to small, respectively. We are able to distinguish three different sources of scattering in our SANS experiments. Firstly, diffuse scattering from magnetic polarons, which grows in size with decreasing temperature. This is best observed at large momentum transfer. Secondly, we observe an incommensurate magnetic peak which appears below the Curie temperature T_C . Thirdly, we observe a second diffuse scattering signal from ferromagnetic domain walls. An overview of the temperature dependence from the different scattering regimes is presented in Fig. 4.2.

We start our discussion with the incommensurate magnetic peak which for temperatures below T_C appears as a spot on the detector. At 1.5 K, the position of this spot corresponds to a scattering vector of $(18.4 \pm 0.2) \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$. The peak is not a double scattered Bragg peak since it is positioned at wavelengths above those required for the Bragg condition. We also measured the temperature dependence of the intensity of this peak, which is shown in Fig. 4.2. The peak appears at the ferromagnetic transition. We may be looking at an incommensurate spin density wave (ISDW) since the peak is sharp. The period of this ISDW ranges from 680 to 726 \AA and the intensity corresponds to a magnetic moment of $2.5 \mu_B/\text{Eu}$ at 2 K. This type of spin density wave has been seen in a number of strongly correlated systems, as diverse as Ca-doped SrRuO_4 [21], a ruthenate, the La_2CuO_4 family[22] of high temperature

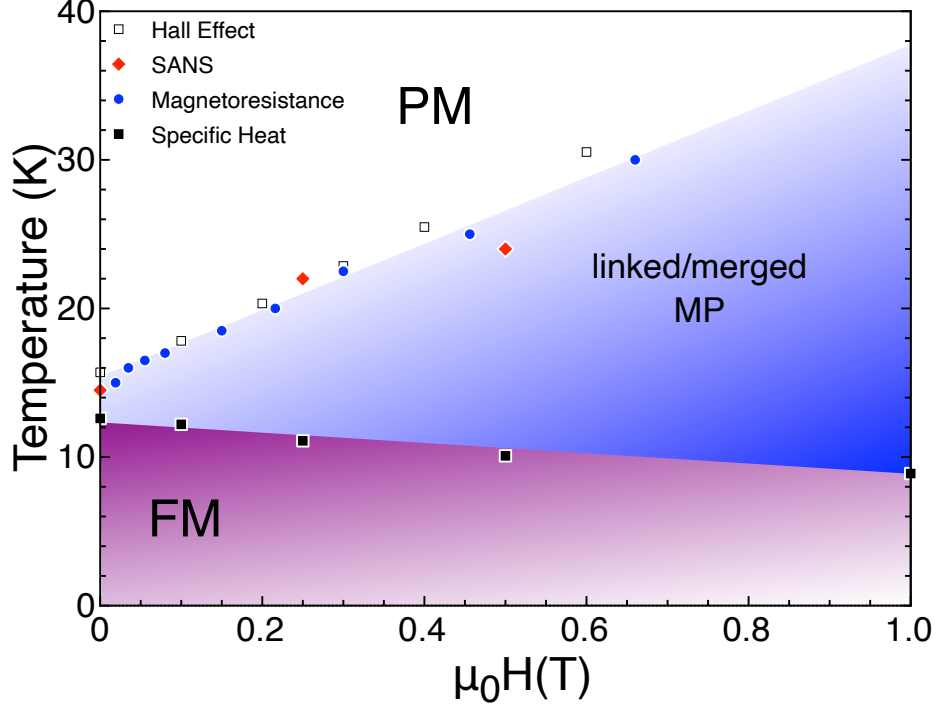


Figure 4.1. Phase diagram as a function of applied magnetic field. The solid red diamond shows the temperature at which the averaged intensity in the medium q -range starts to increase due to the formation of magnetic polarons. The empty squares are from Hall effect measurement[45]. The solid blue circles denote the peak in the temperature derivative of the magnetoresistance[8]. The black square indicates the transition temperature from the peak in the heat capacity marking the ferromagnetic region of the phase diagram.

superconductors as well as BiFeO_4 [34], a multiferroic. The commonality between these systems is that their main order parameter is always found in strong competition with multiple other competing order parameters[22], suggesting a similar scenario for EuB_6 .

To study the temperature dependence of the diffuse magnetic signal, we integrated the contributions from a large area of the detector (see Fig. 4.6 of the Extended Data). For large momentum transfers, the q -range is sensitive to magnetic fluctuations, which are enhanced by the magnetic polarons. Indeed, as shown in Fig. 4.2a, we see an increase in the integrated signal with q ranging from 0.050 to 0.140 \AA^{-1} at 18 K , and a small bump at T_M , the temperature where the resistivity starts to drop (see Fig. 4.7b of the Extended Data). Below T_C , the magnetic fluctuations are reduced since the number of polarons decreases. Also below

T_C , most of the intensity is due to ferromagnetic domains for low scattering vectors. This is why the signal remains constant below T_C .

We also tracked the onset of the signal from the magnetic polarons with magnetic fields. The data taken on the instrument D11 at the Institute Laue Langevin and averaged over the medium q -regime (0.020 to 0.055 \AA^{-1}) is shown in Fig. 4.2b, where we can see a shift in the uptake of the intensity towards higher temperatures: the bump marking T_M is shifted from 16 to 22 K for a field of 0.25 T, and to 25 K for 0.5 T. This shift in temperature matches the boundary of the phase diagram of magnetic polarons extracted from noise spectroscopy measurements[8], and Hall effect[45], which confirms that the signal is due to magnetic polarons. The phase diagram is shown in Fig. 4.1. To complete the phase diagram, we used specific heat measurements in magnetic fields. As the peak in specific heat is strongly deformed by the application of field, we used a fit to a mean field model for a ferromagnet to extract the critical temperature[35] (see Fig. 4.7 of the Extended Data). Critical exponents for the phase transition can be extracted from magnetic susceptibility measurements[39, 38]. From our analysis yielded the following exponents γ of 1.03 ± 0.02 and $\beta = 0.49 \pm 0.02$ (see Fig. 4.8 of the extended data). These values are close to the values for a mean field theory ($\gamma = 1$ and $\beta = 0.5$). This justifies the use of mean field model to fit our specific heat data in order to extract T_C . The transition temperature is only weakly suppressed by the magnetic field as shown in Fig. 4.1. The model fits better for higher fields as it did for the thermal expansion coefficient[25]. This shows that the mean field model is appropriate at higher field but fail at lower field from the presence of fluctuations. We also would like to point out that there is no $\sin^2 \theta$ dependence of the SANS signal on the area detector of field-applied data (inset of Fig. 4.2b), showing that the signal we see in EuB_6 is different from that expected in the case of random anisotropic ferromagnets[29] or from superparamagnetic nanoparticles[7]. This suggests that despite being electronically inhomogeneous at the nanometre scale the magnetism itself is homogeneous in EuB_6 .

Instead of integrating the intensity, we can inspect how the scattered intensity varies as a function of the scattering vector q . This allows us to distinguish the contributions from magnetic polarons from those stemming from ferromagnetic domains, and it allows us to extract the correlation length for each contribution. For magnetic polarons, which are bubbles of spin-polarized electrons, we expect an intensity which varies as a Lorentzian. This

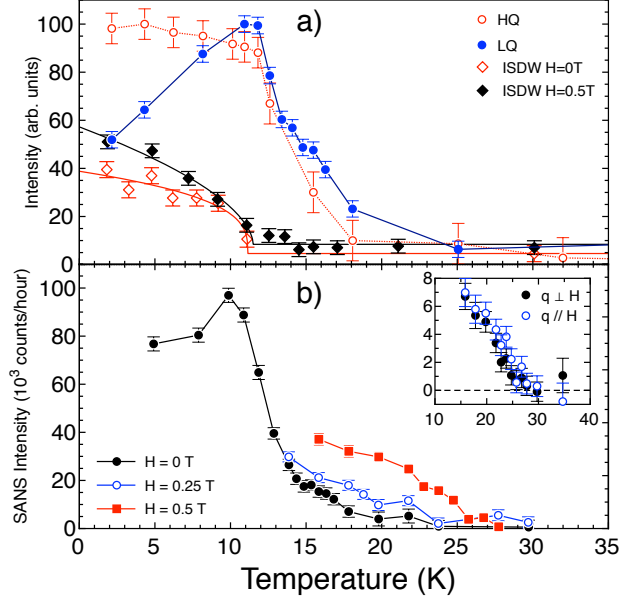


Figure 4.2. Integrated intensity for various ranges of scattering vector q . **a)** The solid black diamonds (Empty red diamond) show the integrated intensity of the incommensurate magnetic peak at 0 T (0.1 T). The solid line is a fit to a power law, resulting in $\beta = 0.6 \pm 0.1$ for 0 T and $\beta = 0.3 \pm 0.1$ at 0.1 T. The solid blue circles are the data from the high q -regime (HQ) in zero field averaged over the q -range from 0.050 to 0.140 \AA^{-1} . The open red circles are the average over the low q regime (LQ) in zero field from 0.006 to 0.025 \AA^{-1} . **b)** The data are averaged over the medium q - regime in the range from 0.020 to 0.055 \AA^{-1} (MQ). The full black circles show the zero field data, the open blue circles are taken with an applied field of 250 mT and the full red squares with 500 mT. The inset shows the anisotropy of the SANS signal when a field is applied perpendicular to the neutron beam.

dependence is derived from an Ornstein-Zernike correlation function, as the bubbles are all approximately of the same size[10]:

$$I_{\text{pol}}(q) = \frac{A}{q^2 + \kappa_p^2} \quad , \quad (4.11)$$

where κ_p is the inverse correlation length or the size of the magnetic polarons[10]. At the same time, this is also the q -dependence of magnetic fluctuations[29] close to a magnetic phase transition. This dichotomy can be resolved, as the correlation length due to magnetic fluctuations is large only in a temperature range close to T_M , and it can be calculated. A Lorentzian was also observed in the SANS data of the $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ series. However,

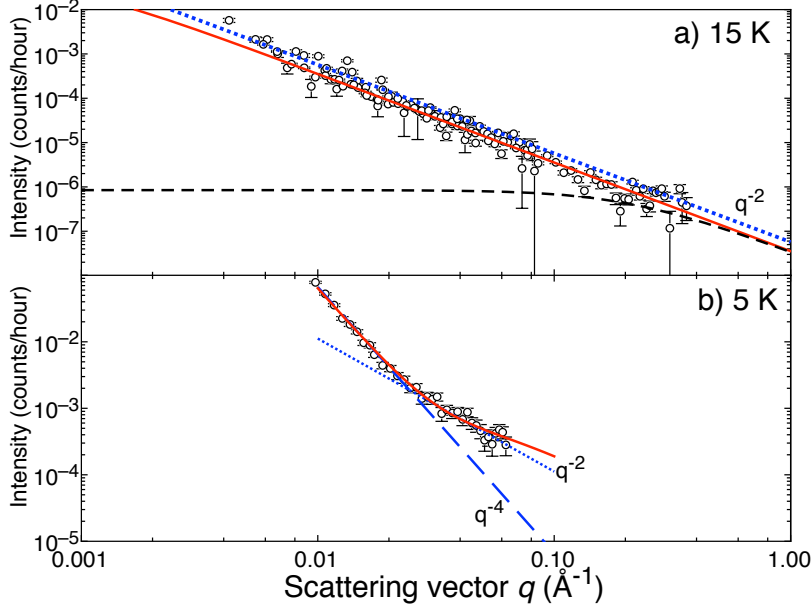


Figure 4.3. Intensity of the neutron scattering versus q in zero field. **a)** The upper panel shows data at 15 K. The data is described by a Lorentzian function (red line). The blue dash line is a guide to the eye showing a q^{-2} dependence. The dashed black line is the expected contribution from 3D Heisenberg ferromagnetic fluctuations to the signal at 15 K. **b)** At 5 K, below T_C , the red line is a fit to a sum of a q^{-4} and a Lorentzian, the dotted line is a guide to the eye showing the change in slope from q^{-2} (small dots) to q^{-4} (dash) at $q = 0.024 \text{\AA}^{-1}$.

here it was ascribed to the formation of clusters of cationic disorder[37, 36]. This type of disorder is not present in our system, making it more certain that we can indeed observe magnetic polarons. In EuB_6 at 15 K and 0 T, the data over the entire q -range is described by a Lorentzian shown as the full line in Fig. 4.3a. This Lorentzian function has a very small inverse correlation length $\kappa = 1/\xi$, which makes the curve look like a simple q^{-2} -dependence. The corresponding correlation lengths $\xi(T)$ extracted for different temperatures have a drastically different size and temperature dependence than the correlation length which we can calculate for critical fluctuations. From the scaling of the magnetization and the field dependence of the specific heat, we know that the critical behaviour in EuB_6 is well described by mean-field theory model[18]. Knowing this, we can compute the $\xi(T)$ we expect just from the critical fluctuations alone, which is shown as the solid line for $\kappa(T)$ in Fig.4.4 and for $\xi(T)$ in the inset. As can be seen Fig.4.4, the experimental $\kappa(T)$ values

we obtain from our fits of the q -dependence at various temperatures are much smaller and have a different temperature dependence than the estimate from the mean field model. This demonstrates that this signal is not simply due to ferromagnetic fluctuations, but at the same time from magnetic polarons. This is a clear indication that the magnetic fluctuations driving the insulator to semi-metal transitions are magnetic polarons. As expected, it can be seen in the inset of Fig. 4.4 that the size of the magnetic polarons starts to grow at T_M , and diverges at T_C . We can compare the size of these compound objects we observe with SANS with the size of the electronic inhomogeneities observed by STM[32] and they are of similar size. This is a clear indication for the presence of polarons, which are strongly coupled to the magnetic moments, in this region of the phase diagram and that their fluctuation signature can be seen well above T_C . From this we can conclude that the magnetic polarons are strongly enhancing the ferromagnetic fluctuations. We can also compare the size of the magnetic polarons to the volume occupied by a charge carrier. From the charge carrier density[44] at 20 K, we can estimate the volume per charge carrier to be ~ 700 unit cells or 50 nm^3 , a size which again falls in the same range, as observed here with SANS and by STM[32].

For temperatures below T_C , the distribution of different sizes of the ferromagnetic domains is expected to follow a Log-normal distribution[42], which is an exponentially correlated density fluctuation distribution. Here the q -dependence is expected to follow a Lorentzian-squared function[29]:

$$I_{\text{ferro}}(q) = \left(\frac{B}{q^2 + \kappa_F^2}\right)^2 \quad , \quad (4.12)$$

where, κ_F is the inverse of the correlation length of the ferromagnetic domains[14]. Below T_C , the transition to ferromagnetic order gives rise to a length which is characteristic for the size of the ferromagnetic domains. For very large domain sizes, this results in a scattering signal proportional to q^{-4} . Such a squared Lorentzian feature was for example seen in SANS experiments done in the $\text{CeNi}_{1-x}\text{Pt}_x$ series of compounds[26]. In these experiments, it was determined that the ferromagnetic order in $\text{CeNi}_{1-x}\text{Pt}_x$ arrives through the percolation of static ferromagnetic clusters. This scenario is very similar to what we observe in EuB_6 , except for the fact that the magnetic polarons in EuB_6 are dynamic. At temperatures below T_C , the neutrons are increasingly diffracted by ferromagnetic domain walls. This leads to an q^{-4} contribution in addition to the q^{-2} contribution from the magnetic polarons, as can

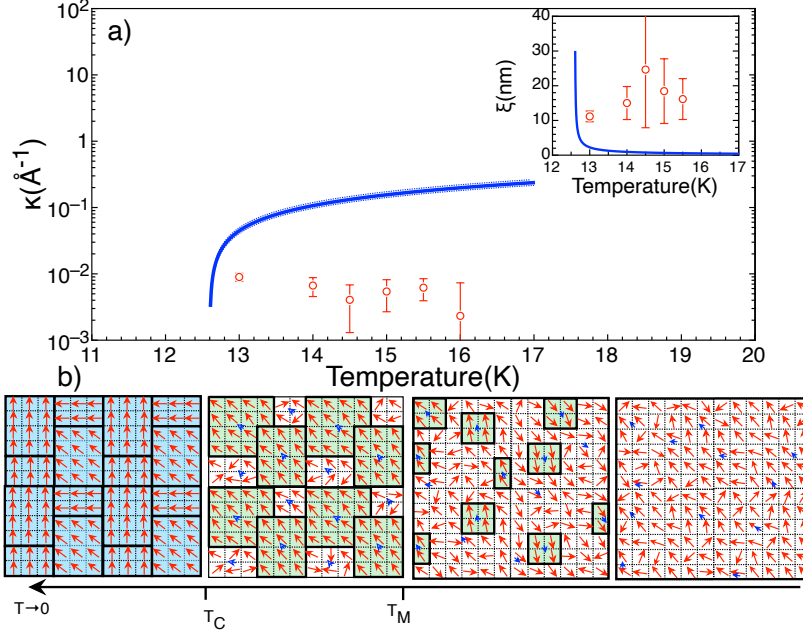


Figure 4.4. a) The inverse correlation length $\kappa = 1/\xi$ of a 3D Heisenberg ferromagnet versus temperature is shown as the solid blue. This line shows the expected $\kappa(T)$ from magnetic fluctuations alone, without a contribution from magnetic polarons. The open circles show the inverse correlation length obtained from fitting a Lorentzian to the SANS data. Clearly, the observed behaviour has a very different temperature dependence than what is expected for magnetic fluctuations alone. The inset shows the effective correlation length ξ versus temperature. Again, the solid line is the calculated correlation length $\xi(T)$ of a 3D Heisenberg ferromagnet. b) Schematic of the formation of magnetic polarons in EuB_6 . The big red arrows are the localised spins on the Eu^{2+} ions and the small blue arrows are the spins of the charge carriers. At high temperature, there is neither magnetic order nor localisation. Just above T_M , the charge carriers start to localise around the Eu^{2+} ions and form magnetic polarons with reach their maximum sizes at T_M . Below T_C , the charge carriers act like free charge carriers and the localised magnetic moments on the Eu^{2+} ions form ferromagnetic domains.

be seen in Fig. 4.3b. The size of these domains is larger than 100 \AA , the largest size we can probe with our experiment. In summary, we have showed evidence of magnetic polarons enhancing ferromagnetic fluctuations in EuB_6 using small angle neutron scattering for temperatures above the ferromagnetic transition. Below T_C , the polarons merge and most of

the observed intensity stems from scattering off domain walls, as indicated an additional q^{-4} -dependence of the scattered intensity. In addition, we determined that the polarons merge at the transition temperature $T_M = 14.5$ K resulting in a drastic drop of the electrical resistivity. Applying a magnetic field shifts this percolation temperature to higher temperatures. The correlation length we see above the ordering temperature clearly indicates that the magnetic polarons strongly couple to the magnetic environment leading to strongly enhanced magnetic fluctuations. Our results put the existence of magnetic polarons in a ferromagnetic model system on a firm footing changing the status of these quasiparticles from the hypothetical to the real. Given the importance of the electronic phase separation associated with magnetic polarons to spintronics and to high temperature superconductivity we believe that our discovery of magnetic polarons which will lead to exciting new physics. A clear understanding of “*lattice*” polarons, for example, has led to the observation of novel ground states such as condensates of light[23].

Methods

EuB₆ was grown with a ratio of 14 mg of EuB₆ per gram of Al flux. Stoichiometric amounts of Eu, and ¹¹B, isotopically enriched to 99%, were added together with aluminium metal to an Al₂O₃ crucible placed in a vertical tube furnace and heated to 1500°C at 200°C h⁻¹ in a flow of high purity Ar. The mixture was held at this temperature for 10 h, and then cooled down to 1000°C at a rate of 5°C h⁻¹. The crystals were separated from the Al flux in boiling sodium hydroxide.

Resistivity was measured between 2 and 300 K with a Quantum Design Physical Property Measurement System (PPMS) using four-point contacts. Specific heat C_p was measured in a PPMS using a ³He system from 0.4 to 30 K. DC magnetic susceptibility was measured with a Quantum Design Vibrating Sample Magnetometer (VSM) and the magnetic susceptibility with the VSM option in a PPMS. Both dc and ac magnetic susceptibilities were measured using a Quantum Design Magnetic Property Measurement System (MPMS).

Small-angle neutron scattering (SANS) experiments were carried out over a large range of scattering vectors q ranging from 0.006 to 0.140 Å⁻¹ and temperatures from 2 to 60 K. The first set of experiments was performed at the Paul Scherrer Institut (PSI) using the SANS-I instrument. The second experiment was performed at the Institut Laue-Langevin

(ILL) using the D11 instrument. A third experiment was carried out on the D33 instrument at ILL. A fourth experiment was performed on the SANS-II instrument at PSI. For these experiments, we co-aligned multiple crystals of typical dimension $\approx 2 \times 1 \times 0.2 \text{ mm}^3$ on high-purity aluminium plates using thinned GE 7031 varnish as glue. The resulting crystal mosaics covered areas of $12.5 \times 21.5 \text{ mm}^2$ (at PSI) and $12.6 \times 10.2 \text{ mm}^2$ (at ILL). In all experiments, we used cadmium masks to have a well-defined illuminated sample area. At PSI we did high statistic scans for low momentum transfer q ranging from 0.006 to 0.025 \AA^{-1} (LQ), and high q from 0.050 to 0.140 \AA^{-1} (HQ). We used a wavelength of $\lambda = 5.9 \text{ \AA}$ for that experiment. The other experiment done at PSI was to look at the incommensurate magnetic peak. We performed the experiment at base temperature and with wavelengths of 7 and 10 \AA . At the ILL on D11, we took measurement for medium scattering vectors in the range from 0.020 to 0.055 \AA^{-1} (MQ), and also applied magnetic fields of 0.25 , and 0.5 T . For this experiment, we used a different wavelength of $\lambda = 4.6 \text{ \AA}$. On D33, we investigated the wavelength dependence of the magnetic Bragg peak, using wavelengths of 3.35 , 4 and 4.5 \AA .

Supplementary Information

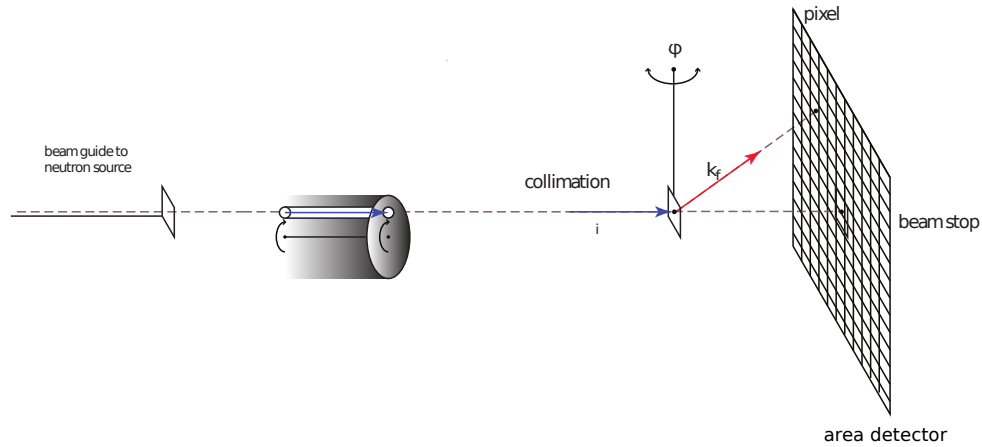


Figure 4.5. Schematic of a small-angle neutron scattering (SANS) instrument

Neutrons are produced (either using a reactor at the Institut Laue-Langevin or a spallation target at the Paul Scherrer Institut) and transported to the SANS instrument through beam guides. A velocity selector is used to select a wavelength which determines the initial momentum \mathbf{k}_i . The beam is then collimated using two apertures in a standard pinhole geometry. The neutrons are scattered by the sample, which can be rotated around an angle ϕ , before being detected by a two-dimensional position-sensitive multi-detector, providing information on their final momentum \mathbf{k}_f . The scattering wavevector is $\mathbf{q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$. A beam stop is used to block the unscattered beam of neutrons to avoid overloading the detector.

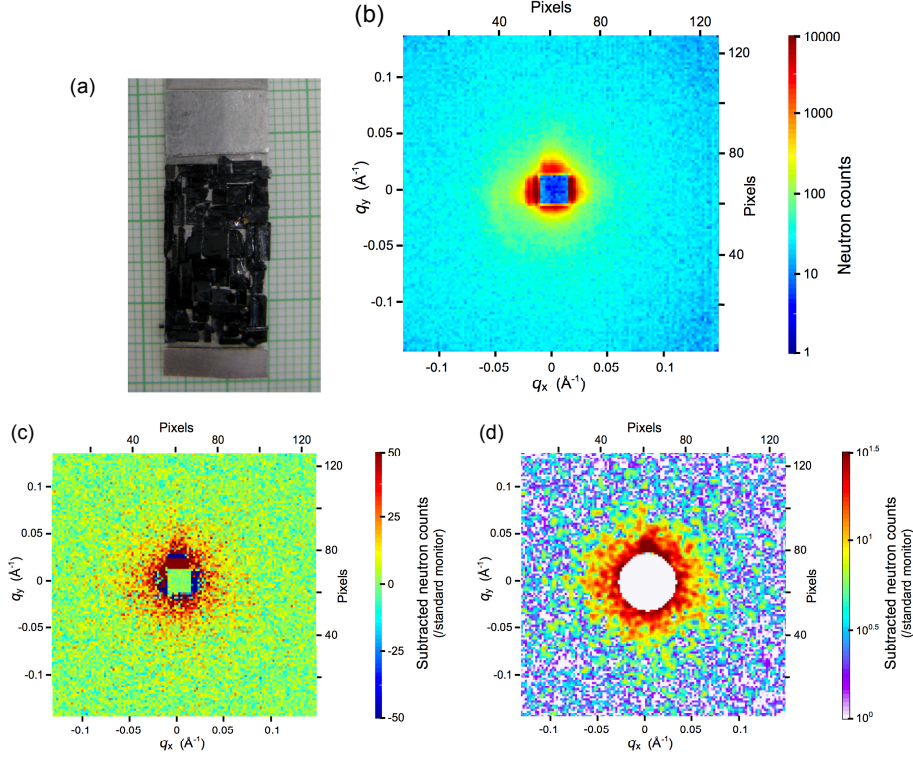


Figure 4.6. Processing of SANS data **a** Photograph of the mosaic of co-aligned EuB_6 crystals (total mass 355 mg) mounted on a thin aluminum plate, as used in the SANS experiments at PSI. **b** Raw neutron counts on the 2D multi-detector at zero applied field and 11 K in the high- q range of the SANS-I instrument at PSI, collected over a total counting time of 44 minutes. To achieve this particular q -range, neutrons of 5.9 \AA wavelength were collimated over a $\approx 2 \text{ m}$ length, from the exit of the $50 \times 50 \text{ mm}^2$ neutron guide system to a $8 \times 15 \text{ mm}^2$ sample aperture. The multi-detector was placed 3.5 m behind the sample, which was installed in a cryomagnet. The shadow from the beam stop can be seen in the center of the detector. **c** Data at high temperatures (here 40 K and 60 K) are subtracted to resolve the ferromagnetic and polaron contributions to the scattering. The continuous spallation source at PSI requires that data are normalised to a neutron monitor placed upstream of the sample. 1 ‘standard’ monitor corresponds to ≈ 55 minutes here. The slight vertical shift of the sample due to the temperature change results in poor subtraction around the beam stop. **d** Masking the area around the beam stop reveals the ferromagnetic and polaron contributions to the scattering. Subsequently data are radially averaged to yield an intensity I versus $q = |\mathbf{q}|$ profile (Fig. 1 of manuscript).

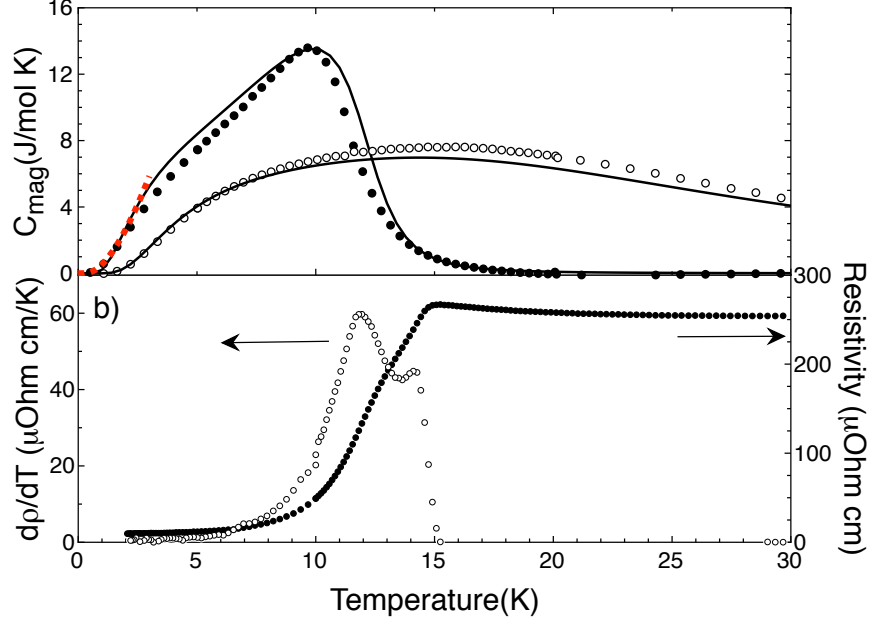


Figure 4.7. Specific heat and electrical resistivity of EuB_6 **a** Magnetic specific heat capacity $C_M = C_p - C_{\text{ph}}$ after subtraction of the phonon contribution C_{ph} of EuB_6 at zero field. The curves correspond to 0 T (open circle) and 5 T (closed circle). The black line is a fit to the mean field ferromagnet model for the heat capacity [35]. A field of 0.1 T was used for the zero field data. The red dashed line is a fit to a spin wave contribution, which is proportional to $T^{3/2}e^{-\Delta/T}$ [6]. It gives a gap of $\Delta = 1.11 \pm 0.03$ K similar to the one reported by NMR techniques[1]. Contrary to previous work, we only see a shoulder at the onset of T_M instead of a second peak in C_M . **b** Electrical resistivity ρ at zero field, and its temperature derivative $\partial\rho/\partial T$ versus temperature..

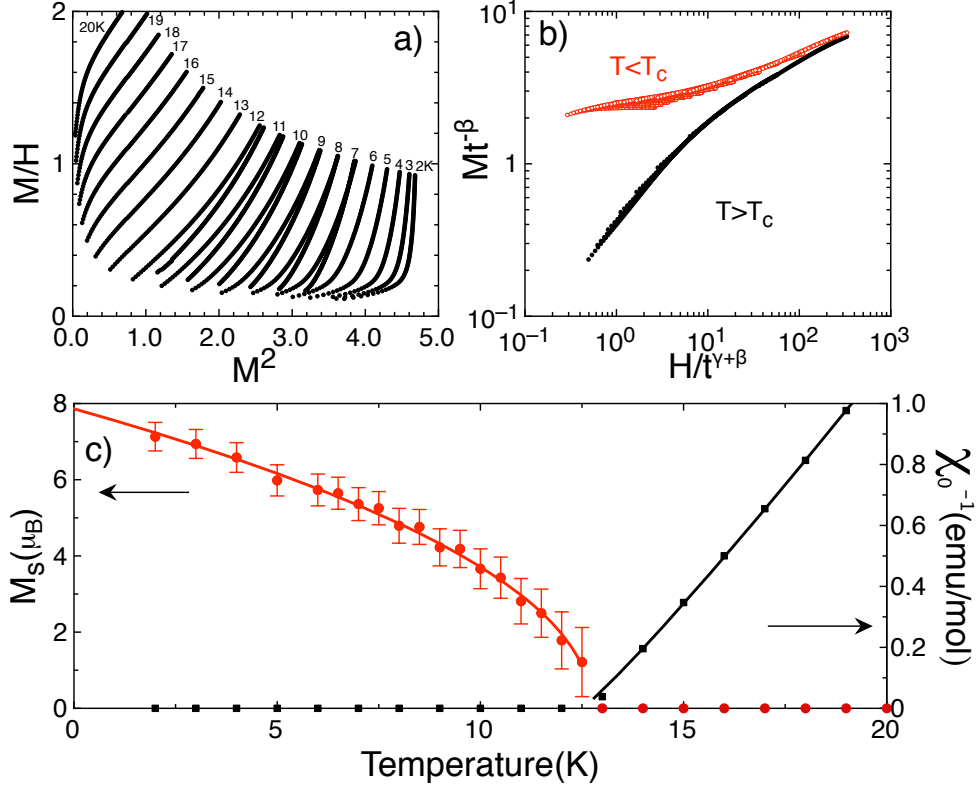


Figure 4.8. Magnetization of EuB_6 **a** Arrott Plot of the magnetization at the temperatures of 2 to 20 K as indicated. **b** Arrott plot data normalized with the fitted parameters in **c**. **c** The left axis shows the saturated magnetization taken from the intercept of the horizontal axis of above plot versus temperature. The fit is to a power law where a critical exponent $\beta = 0.48 \pm 0.07$ and a critical transition of 12.7 ± 0.3 K is extracted. The right axis shows the magnetic susceptibility $\chi_0^{-1}(T)$ which was taken from the y-axis intercept of the Arrott plot. For χ_0 , we obtained a critical exponent γ of 1.10 ± 0.01 .

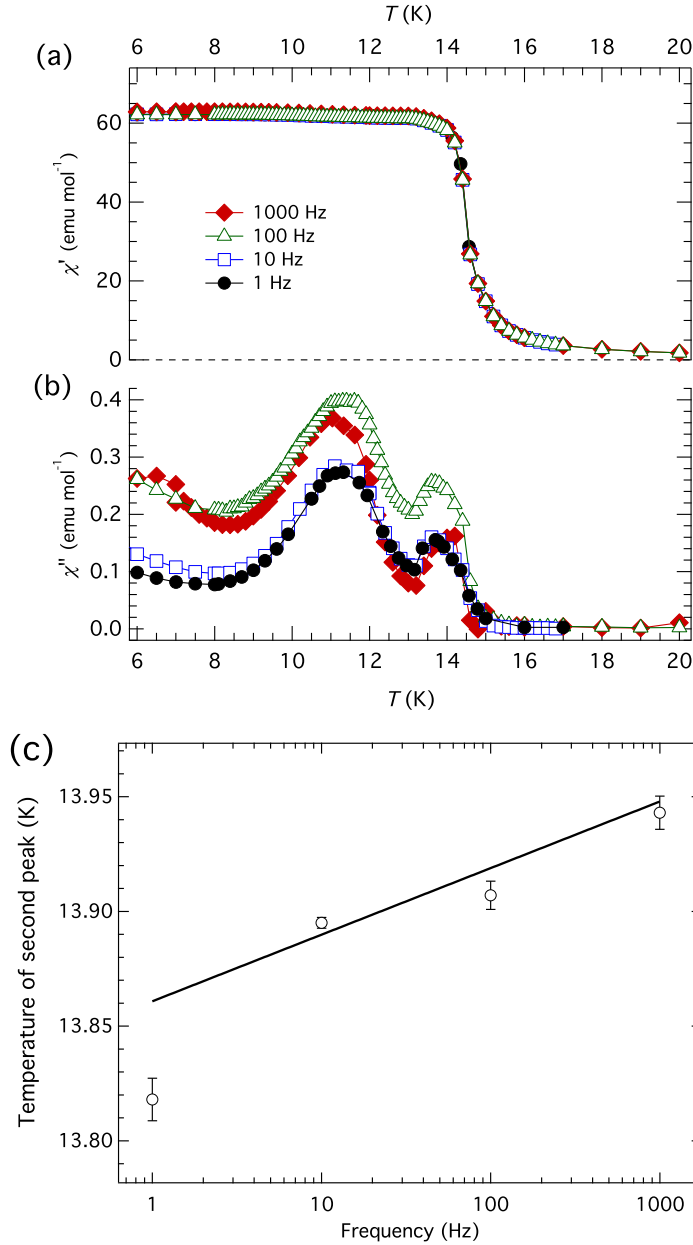


Figure 4.9. AC susceptibility **a**, **b** Real and imaginary parts of the ac susceptibility at various frequencies measured on warming of a 3 mg EuB_6 single crystal with field $\mu_0 H = 0.15$ mT applied along the crystallographic c -axis. Two peaks are observed in the imaginary part. The lower temperature peak lies at 11.2 K and shows no systematic dependence on frequency. This is consistent with bulk ferromagnetic ordering. **c** The higher temperature peak, at $\simeq 13.9$ K, has a position T_p that increases weakly with frequency f . The logarithmic fit indicates the parameter $\Delta T_p / (T_p \Delta(\log_{10} f)) \approx 0.005$.

Experiments	$\mu_{eff}(\mu_B)$	T_C (K)	T_M (K)	θ_D (K)	β	γ
Heat Capacity	-	11.3 ± 0.2	14.7 ± 0.3	167.1 ± 0.3	-	-
Resistivity	-	11.8 ± 0.2	14.1 ± 0.2	-	-	-
Susceptibility	(8.20 ± 0.03)	11.3	13.9	-	-	-
Arrott Plot	(7.6 ± 0.2)	12.5 ± 0.3	-	-	0.49 ± 0.02	1.03 ± 0.02
SANS	-	~ 11	~ 14.5	-	-	-
Literature	6.9[15] 7.05[27]	12.5[40, 38]	15[40, 38]	164[40]	0.5(MF) 0.365(3DH) 0.22 ± 0.01 [38]	1.00(MF) 1.386(3DH) 0.88 ± 0.05 [38]

Table 4.3. Comparison to literature values of the various critical temperatures.

MF: Mean-field theory, 3DH: 3D-Heisenberg

Bibliography

- [1] B. Ambrosini, J. L. Gavilano, P. Vonlanthen, H. R. Ott, D. P. Young, and Z. Fisk. NMR studies of EuB_6 at low temperatures. *Physical Review B*, 60(5):3361–3369, 1999.
- [2] Yuto Ashida, Richard Schmidt, Leticia Tarruell, and Eugene Demler. Many-body interferometry of magnetic polaron dynamics. *Physical Review B*, 97(6), 2018.
- [3] H. Booth, C. J. Sarrao, M Hundley, A Cornelius, G Kwei, A Bianchi, Z Fisk, and J Lawrence. Local and average crystal structure and displacements of La^{11}B_6 and EuB_6 as a function of temperature. *Physical Review B*, 63(22):224302, 2001.
- [4] M. L. Brooks, T Lancaster, S J Blundell, W Hayes, F L Pratt, and Z Fisk. Magnetic phase separation in EuB_6 detected by muon spin rotation. *Physical Review. B*, 70:20401, 2004.
- [5] M. J. Calderon, L G L Wegener, and P B Littlewood. Evaluation of evidence for magnetic polarons in EuB_6 . *Physical Review B*, 70:92408, 2004.
- [6] B. Coqblin. *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys: the Magnetic Heavy Rare-Earths*. Academic Press, 1977.
- [7] R Cywinski, B D Rainford, and J G Booth. Small-angle neutron scattering from superparamagnetic assemblies in binary CoGa alloys. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 7(12):2567, 1977.
- [8] P. Das, Adham Amyan, Jens Brandenburg, Jens Müller, Peng Xiong, Stephan von Molnár, and Zachary Fisk. Magnetically driven electronic phase separation in the semimetallic ferromagnet EuB_6 . *Physical Review B*, 86(18):184425, 2012.
- [9] J. M. De Teresa, M R Ibarra, P A Algarabel, C Ritter, C Marquina, J Blasco, J Garcia, A del Moral, and Z Arnold. Evidence for magnetic polarons in the magnetoresistive perovskites. *Nature*, 386:256–259, 1997.
- [10] J M De Teresa, C Ritter, M Ibarra, P Algarabel, J García M, J Blasco, J García, and C Marquina. Charge localization, magnetic order, structural behavior, and spin dynamics of $(\text{La-Tb})_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ manganese perovskites probed by neutron diffraction and muon spin relaxation. *Physical Review B*, 56(6):3317–3324, 1997.
- [11] L Degiorgi, E Felder, H Ott, J Sarrao, and Z Fisk. Low-Temperature Anomalies and Ferromagnetism of EuB_6 . *Physical Review Letters*, 79(25):5134–5137, 1997.

- [12] Kivelson S. A. Emery, V. J. and H. Q. Lin. Phase separation in the $t - J$ model. *Physical Review Letters*, 64(4):475–478, 1990.
- [13] F. Grusdt, M. Kánasz-Nagy, A. Bohrdt, C. S. Chiu, G. Ji, M. Greiner, D. Greif, and E. Demler. Parton Theory of Magnetic Polarons: Mesonic Resonances and Signatures in Dynamics. *Physical Review X*, 8(1), 2018.
- [14] F Hellman, A L Shapiro, E N Abarra, R A Robinson, R P Hjelm, P A Seeger, J J Rhyne, and J I Suzuki. Long ferromagnetic correlation length in amorphous TbFe₂. *Physical Review B*, 59(17):11408, 1999.
- [15] W Henggeler, H Ott, D P Young, and Z Fisk. Magnetic ordering in EuB₆, investigated by neutron diffraction. *Solid State Communications*, 108(12):929–932, 1998.
- [16] M Hennion, G Biotteau, F Moussa, J Rodriguez-Carvajal, L Pinsard, and A Revcolevschi. Static ferromagnetic modulation in La_{1-x}Ca_xMnO₃: Assembly of interacting magnetic polarons. *Physica B: Condensed Matter*, 259-261:814–815, 1999.
- [17] a. B Henriques, F C D Moraes, G D Galgano, a. J Meaney, P C M Christianen, J C Maan, E Abramof, and P H O Rappl. Luminescence properties of magnetic polarons in EuTe: Theoretical description and experiments in magnetic fields up to 28 T. *Physical Review B*, 90(16), 2014.
- [18] Christian Holm and Wolfhard Janke. Critical exponents of the classical three-dimensional heisenberg model: A single-cluster monte carlo study. *Physical Review B*, 48:936–950, Jul 1993.
- [19] T Kasuya, A Yanase, and T Takeda. Stability condition for the paramagnetic polaron in a magnetic semiconductor. *Solid State Communications*, 8(19):1543–1546, 1970.
- [20] J Kim, Y J Kim, J Kunes, B K Cho, and E J Choi. Optical spectroscopy and electronic band structure of ferromagnetic EuB₆. *Physical Review B*, 78(16):1–5, 2008.
- [21] S. Kunkemöller, A. A. Nugroho, Y. Sidis, and M. Braden. Spin-density-wave ordering in Ca_{0.5}Sr_{1.5}RuO₄ studied by neutron scattering. *Physical Review B*, 89:045119, Jan 2014.
- [22] Y. S. Lee, F. C. Chou, A. Tewary, M. A. Kastner, S. H. Lee, and R. J. Birgeneau. Neutron scattering study of the effects of dopant disorder on the superconductivity and magnetic order in stage four La₂CuO_{4+y}. *Physical Review B*, 69:020502, Jan 2004.
- [23] P. Littlewood. Physics. Condensates made of light. *Science (New York, N.Y.)*, 316(5827):989–90, 2007.

- [24] Pinaki Majumdar and Peter B Littlewood. Dependence of magnetoresistivity on charge-carrier density in metallic ferromagnets and doped magnetic semiconductors. *Nature*, 395(6701):479–481, 1998.
- [25] Rudra Sekhar Manna, Pintu Das, Mariano de Souza, Frank Schnelle, Michael Lang, Jens Müller, Stephan von Molnár, and Zachary Fisk. Lattice Strain Accompanying the Colossal Magnetoresistance Effect in EuB_6 . *Physical Review Letters*, 113(6):67202, 2014.
- [26] N Marcano, J C Gómez Sal, J I Espeso, J M De Teresa, P A Algarabel, C Paulsen, and J R Iglesias. Mesoscopic Magnetic States in Metallic Alloys with Strong Electronic Correlations: A Percolative Scenario for $\text{CeNi}_{1-x}\text{Cu}_x$. *Physical Review Letters*, 98(16):166406, 2007.
- [27] S Massidda, A Continenza, T M de Pascale, and R Monnier. Electronic structure of divalent hexaborides. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 102(1):83–89, 1996.
- [28] A Mauger and D L Mills. Bound magnetic polarons in antiferromagnetic semiconductors. *Physical Review Letters*, 53(16):1594, 1984.
- [29] Andreas Michels and Jörg Weissmüller. Magnetic-field-dependent small-angle neutron scattering on random anisotropy ferromagnets. *Reports on Progress in Physics*, 71(6):66501, 2008.
- [30] P. Nyhus, S. Yoon, M. Kauffman, S. L. Cooper, Z. Fisk, and J. Sarrao. Spectroscopic study of bound magnetic polaron formation and the metal-semiconductor transition in EuB_6 . *Physical Review B*, 56(5):2717–2721, 1997.
- [31] Vitor M Pereira, J M B Lopes dos Santos, Eduardo V Castro, and A H Castro Neto. Double Exchange Model for Magnetic Hexaborides. *Physical Review Letters*, 93(14), 2004.
- [32] Merlin Pohlitz, Sahana Rößler, Yuzo Ohno, Hideo Ohno, Stephan von Molnár, Zachary Fisk, Jens Müller, and Steffen Wirth. Evidence for ferromagnetic clusters in the colossal-magnetoresistance material EuB_6 . *Physical Review Letter*, 120:257201, Jun 2018.
- [33] Gary A Prinz. Magnetoelectronics. *Science*, 282(5394):1660–1663, 1998.
- [34] M. Ramazanoglu, M. Laver, W. Ratcliff, S. M. Watson, W. C. Chen, A. Jackson, K. Kothapalli, Seongsu Lee, S.-W. Cheong, and V. Kiryukhin. Local weak ferromagnetism in single-crystalline ferroelectric BiFeO_3 . *Physical Review Letter*, 107:207206, Nov 2011.

- [35] J Fernández Rodríguez and J A Blanco. Temperature dependence of the molar heat capacity for ferromagnets within the mean field theory. *Physica Scripta*, 71(2):CC19–CC22, jan 2005.
- [36] Damien Saurel, Annie Brûlet, André Heinemann, Christine Martin, Silvana Mercone, and Charles Simon. Magnetic field dependence of the magnetic phase separation in $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ manganites studied by small-angle neutron scattering. *Physical Review B*, 73(9), 2006.
- [37] Ch. Simon, S Mercone, N Guiblin, C Martin, A Brûlet, and G André. Microphase Separation in $\text{Pr}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ by Small-Angle Neutron Scattering. *Physical Review Letters*, 89(20), 2002.
- [38] Dibya J. Sivananda, Ankit Kumar, Md. Arif Ali, S. S. Banerjee, Pintu Das, Jens Müller, and Zachary Fisk. Magneto-optical imaging of stepwise magnetic domain disintegration at characteristic temperatures in EuB_6 . *Physical Review Materials*, 2:113404, Nov 2018.
- [39] S Süllo, I Prasad, M Aronson, S Bogdanovich, J Sarrao, and Z Fisk. Metallization and magnetic order in EuB_6 . *Physical Review B*, 62(17):11626–11632, 2000.
- [40] S Süllo, I Prasad, M Aronson, J Sarrao, Z Fisk, D Hristova, A Lacerda, M Hundley, A Vigliante, and D Gibbs. Structure and magnetic order of EuB_6 . *Physical Review B*, 57(10):5860–5869, 1998.
- [41] S Von Molnar and S Methfessel. Giant Negative Magnetoresistance in Ferromagnetic $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Se}$. *Journal of Applied Physics*, 38(3):959–964, 1967.
- [42] Volker Wagner and Dieter Bellmann. Bulk domain sizes determined by complementary scattering methods in polycrystalline Fe. *Physica B: Condensed Matter*, 397:27–29, 2007.
- [43] L Wegener and P Littlewood. Fluctuation-induced hopping and spin-polaron transport. *Physical Review B*, 66(22), 2002.
- [44] G A Wigger, R Monnier, H R Ott, D P Young, and Z Fisk. Electronic transport in EuB_6 . *Physical Review B*, 69(12):125118, 2004.
- [45] Xiaohang Zhang, Liuqi Yu, Stephan von Molnár, Zachary Fisk, and Peng Xiong. Non-linear Hall Effect as a Signature of Electronic Phase Separation in the Semimetallic Ferromagnet EuB_6 . *Physical Review Letters*, 103(10):106602, 2009.

Polarons magnétiques et supraconducteurs à haut T_C

Un des grands casse-têtes en physique est la supraconductivité à haute température. La recherche sur les supraconducteurs à haute température promet de nombreuses découvertes dans les prochaines années. La phase nématique ainsi que la phase pseudogap ne sont pas encore tout à fait comprises. L'EuB₆ pourrait aider à mieux les comprendre puisque lui aussi présente un état fondamental électronique inhomogène comme dans les haut-T_c. Toutefois, l'absence de distorsion de la cellule unitaire, en fait un système plus simple à étudier. Une percée à ce niveau aiderait grandement à faire avancer les nouvelles technologies. Une piste de solutions pour démystifier ces phénomènes est peut-être bien le polaron magnétique. Cette nouvelle quasiparticule est présente dans la même région où la phase nématique apparaît dans l'EuB₆. Serait-elle aussi présente dans les supraconducteurs ? Des calculs théoriques ont été mis de l'avant pour tenter de mesurer l'interaction entre les porteurs de charges et la matrice de spins d'un matériau magnétique[1]. Dans l'article, ils étudient l'interaction Ising du modèle $t - J_z$ d'un trou avec des spins en 2D. Lorsque le couplage est élevé, que l'énergie de sauts est bien plus grande que l'interaction entre les spins, ils trouvent une signature théorique pour la présence de polarons magnétiques. Ils mettent de l'avant de possibles expériences en utilisant des atomes très froids pour voir les états liés qui constituent le polaron magnétique. Pour observer seulement la présence des polarons, des expériences de diffraction de neutrons à petits angles (SANS) dans la phase pseudo-gap d'un supraconducteur sans transition structurale seraient nécessaires pour tester cette hypothèse. Mieux comprendre la dynamique des polarons magnétiques sera un atout particulier pour développer de nouveaux matériaux pour des applications en spintronique.

Bibliographie

- [1] F. Grusdt, M. Kánasz-Nagy, A. Bohrdt, C. S. Chiu, G. Ji, M. Greiner, D. Greif, and E. Demler. Parton theory of magnetic polarons : Mesonic resonances and signatures in dynamics. *Phys. Rev. X*, 8 :011046, Mar 2018.

Conclusion

En conclusion, l'EuB₆ est un système complexe et plusieurs questions à son sujet restent sans réponse. Toutefois, certaines ont pu être résolues. Les expériences de diffraction de neutrons à petits angles ont pu confirmer la présence de polarons magnétiques dans le système. De plus, la présence de cette nouvelle quasiparticule augmente les fluctuations magnétiques au-dessus de la température de transition ferromagnétique. Ce phénomène est nouveau et permet d'en comprendre un peu plus sur les mécanismes présents dans ce système. Par contre, le but initial de ces expériences était de mesurer la longueur de corrélation des polarons magnétiques, mais la présence des fluctuations rendait la chose difficile. Seulement un ordre de grandeur de la taille a pu être estimé avec les données de SANS. Une expérience de diffraction de neutrons à très petits angles (uSANS) pourrait possiblement mesurer cette longueur puisque à cette échelle les fluctuations ferromagnétiques ne sont pas présentes. Ces mesures pourront alors être comparées à celle mesurée en STM.

Une grande surprise dans l'EuB₆ a été la découverte d'une phase nématique liée à la présence des polarons magnétiques. Cette phase a été détectée en mesurant des oscillations en magnéto-résistance. Les oscillations devaient suivre un patron de quatre puisque le cristal est cubique. Par contre, dans une certaine plage du diagramme de phase H-T, la symétrie de quatre est brisée pour être changée vers une symétrie de deux. Cette brisure de symétrie est présente malgré le fait qu'il n'y a pas d'instabilité de la maille dans le système. Le lien entre la présence des polarons magnétiques et la phase nématique n'est pas tout à fait compris. Ce lien entre la phase nématique et les polarons magnétiques pourrait aider à démystifier la phase pseudo-gap dans les supraconducteurs à haute température. Une expérience AMR avec le courant en (110) pourrait être faite pour tenter de reproduire les résultats de Glushkov (Glushkov *et al*, Journal of Physics : Conference Series 150, 022014 (2009)) et pour mieux comprendre l'augmentation de la résistivité selon (111) dans l'EuB₆. Retenter les expériences

sur des échantillons où les contacts sont faits de microstructures fabriquées par un faisceau d'ions (*focused ion beam* (FIB)) nous permettrait d'obtenir des données avec moins de bruit de fond et pouvoir aller à plus haute température et champ.

Pour ce qui est du système dopé au calcium, il reste beaucoup de chemin à faire. La croissance est difficile et demande plusieurs tentatives pour obtenir la concentration voulue. De plus, les données de magnétorésistance varient beaucoup d'un échantillon à l'autre, ce qui porte à croire que le désordre y est pour quelque chose. Une analyse plus approfondie serait nécessaire pour comprendre tous les phénomènes présents dans le système.

Annexe 1 : Code Mathematica

Une grande partie de l'article 1 a été de faire un code pour implémenter l'équation de Chambers pour le calcul de la conductivité de l'EuB₆. Cette annexe explique les différentes sections du code. Les premières versions du code ont été faites par moi. Toutefois, le manque de savoir mathématique en a fait un échec. Grâce à l'aide de Lucie Maude Fournier, la bonne physique a pu enfin être implémentée. La dernière version finalisée par moi inclut tous les paramètres nécessaires pour la compréhension totale du système.

Constantes et variables

```
(* Fonction pour initialiser les variables*)
ConstantsInit[b0_, ne_, nh_] := Module[{}],
  jtoev = 6.242*10^18; (* Joule à eV *)
  c = 299792458; (* vitesse de la lumière en m/s *)
  m0 = 9.1*10^-31; (* masse d'un électron en kg *)
  hbar = 1.05*10^-34; (* constante réduite de Planck en Js *)
  e = 1.6*10^-19; (* charge d'un électron en C *)
  kB = 1.38*10^-23; (* Constante de Boltzmann J/K *)
  A = 4.193*10^-10; (* Paramètre de maille de l'EuB6 en m *)
  B0 = b0; (* champ magnétique appliqué en T *)

  (*Les constantes sont tirées de l'article de ARONSON ET AL*)

  (*Électrons*)
  nfermie = ne; (* densité d'électron en m^(-3) *)
  kfermie = (3*Pi^2*nfermie)^(1/3); (* vecteur d'onde *)
```

```

Rf = 1.6; (* proportion de l'axe majeur de la surface de Fermi elliptique *)
r = (kfermie^2/(4/15*(2 + Rf^2)))^(1/2); (* axe mineur de la surface
                                         de Fermi elliptique *)
R = 1.6*r; (* axe majeur de la surface de Fermi elliptique *)
mstare = 0.24*m0; (* masse effective *)
taue = mstare/(e*B0); (* période de cyclotron *)
CCe = e^2/4/Pi^3 *mstare/hbar^2/kfermie; (* Constante dans l'équation 3.3*)

(*Trous*)
nfermih = nh;
kfermih = (3*Pi^2*nfermih)^(1/3);
Rhf = 1.8;
rh = (kfermih^2/(4/15*(2 + Rhf^2)))^(1/2);
Rh = 1.8*rh;
mstarh = 0.29*m0;
tauh = mstarh/(e*B0);
CCh = e^2/4/Pi^3*mstarh/hbar^2/kfermih;

phi = 0.0; (* Angle de rotation hors plan*)
tau = (taue + tauh); (* temps de rotation moyen*)
point1 = {Pi/A, 0, 0}; (*Position des ellipses dans la zone de Brillouin*)
point2 = {-Pi/A, 0, 0};
point3 = {0, Pi/A, 0};
point4 = {0, -Pi/A, 0};
point5 = {0, 0, Pi/A};
point6 = {0, 0, -Pi/A};
]

```

Les fonctions principales

```

(* Coordonnées paramétriques d'un ellipsoïde *)
kx[u_, v_, r_] := r*Sin[v]*Cos[u]

```

```

ky[u_, v_, r_] := r*Sin[v]*Sin[u]
kz[u_, v_, r_] := r*Cos[v]
(* Vecteur d'onde en fonction de R=(Rx, Ry, Rz), eq. 3.5 *)
kfermi[R_] := Sqrt[4/15*(R[[1]]^2 + R[[2]]^2 + R[[3]]^2)];
(* vitesse du vecteur d'onde selon eq. 3.9 *)
vk[k_, r_, mstar_, kfermi_] := hbar*kfermi^2/mstar*k/r^2;

(* Pour chaque point (u,v) sur la surface, calcul k *)
(* df est utilisé lors de la déformation en x de la surface de Fermi, kx, ky et kz
sont modifiés pour que le volume reste le même*)
calculK[u_, v_] := Module[{},
  df = (1 + deltaX);
  k1e = {kx[u, v, R*df], ky[u, v, r/Sqrt[df]], kz[u, v, r/Sqrt[df]]} + point1;
  k2e = {kx[u, v, R*df], ky[u, v, r/Sqrt[df]], kz[u, v, r/Sqrt[df]]} + point2;
  k3e = {kx[u, v, r*df], ky[u, v, R/Sqrt[df]], kz[u, v, r/Sqrt[df]]} + point3;
  k4e = {kx[u, v, r*df], ky[u, v, R/Sqrt[df]], kz[u, v, r/Sqrt[df]]} + point4;
  k5e = {kx[u, v, r*df], ky[u, v, r/Sqrt[df]], kz[u, v, R/Sqrt[df]]} + point5;
  k6e = {kx[u, v, r*df], ky[u, v, r/Sqrt[df]], kz[u, v, R/Sqrt[df]]} + point6;
  k1h = {kx[u, v, Rh*df], ky[u, v, rh/Sqrt[df]], kz[u, v, rh/Sqrt[df]]} + point1;
  k2h = {kx[u, v, Rh*df], ky[u, v, rh/Sqrt[df]], kz[u, v, rh/Sqrt[df]]} + point2;
  k3h = {kx[u, v, rh*df], ky[u, v, Rh/Sqrt[df]], kz[u, v, rh/Sqrt[df]]} + point3;
  k4h = {kx[u, v, rh*df], ky[u, v, Rh/Sqrt[df]], kz[u, v, rh/Sqrt[df]]} + point4;
  k5h = {kx[u, v, rh*df], ky[u, v, rh/Sqrt[df]], kz[u, v, Rh/Sqrt[df]]} + point5;
  k6h = {kx[u, v, rh*df], ky[u, v, rh/Sqrt[df]], kz[u, v, Rh/Sqrt[df]]} + point6;
]

```

(Calcul de la vitesse initial v0 pour chaque point k*)*

```

calculV0 := Module[{},
  v1e = v01e = vk[k1e - point1, {R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
    kfermi[{R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
  v2e = v02e = vk[k2e - point2, {R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,

```

```

        kfermi[{R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
v3e = v03e = vk[k3e - point3, {r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
v4e = v04e = vk[k4e - point4, {r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
v5e = v05e = vk[k5e - point5, {r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}]];
v6e = v06e = vk[k6e - point6, {r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}]];
v1h = v01h = vk[k1h - point1, {Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v2h = v02h = vk[k2h - point2, {Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v3h = v03h = vk[k3h - point3, {rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v4h = v04h = vk[k4h - point4, {rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v5h = v05h = vk[k5h - point5, {rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}]];
v6h = v06h = vk[k6h - point6, {rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}, mstarh,
        kfermi[{rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}]];
]

```

(Calcul de la vitesse au point k et au temps t*)*

```

calculV := Module[{}],
v1e = vk[k1e - point1, {R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
v2e = vk[k2e - point2, {R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];
v3e = vk[k3e - point3, {r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}, mstare,
        kfermi[{r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]}]];

```



```

v4e = vk[k4e - point4, {r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]} , mstare,
  kfermi[{r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]} ]];
v5e = vk[k5e - point5, {r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}, mstare,
  kfermi[{r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}]];
v6e = vk[k6e - point6, {r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}, mstare,
  kfermi[ {r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]}]];
v1h = vk[k1h - point1, {Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]} , mstarh,
  kfermi[{Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v2h = vk[k2h - point2, {Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]} , mstarh,
  kfermi[{Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v3h = vk[k3h - point3, {rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]} , mstarh,
  kfermi[{rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v4h = vk[k4h - point4, {rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]} , mstarh,
  kfermi[ {rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]}]];
v5h = vk[k5h - point5, {rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}, mstarh,
  kfermi[{rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}]];
v6h = vk[k6h - point6, {rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}, mstarh,
  kfermi[{rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]}]];
]
(* Force de Lorentz *)
FL[v_, B_] := Cross[v, B];
(* Ajustement du point k selon la trajectoire sur la surface de Fermi *)
miseAJourK := Module[{},
  k1e = k1e - e/hbar*FL[v1e, B]*dt;
  k2e = k2e - e/hbar*FL[v2e, B]*dt;
  k3e = k3e - e/hbar*FL[v3e, B]*dt;
  k4e = k4e - e/hbar*FL[v4e, B]*dt;
  k5e = k5e - e/hbar*FL[v5e, B]*dt;
  k6e = k6e - e/hbar*FL[v6e, B]*dt;
  k1h = k1h + e/hbar*FL[v1h, B]*dt;
  k2h = k2h + e/hbar*FL[v2h, B]*dt;

```

```

k3h = k3h + e/hbar*FL[v3h, B]*dt;
k4h = k4h + e/hbar*FL[v4h, B]*dt;
k5h = k5h + e/hbar*FL[v5h, B]*dt;
k6h = k6h + e/hbar*FL[v6h, B]*dt;
]
(* Initialisation de l'intégral *)
I0 := Module[{}],
  I1e = I2e = I3e = I4e = I5e = I6e = I1h = I2h = I3h = I4h = I5h = I6h = 0
];
(* Calcul de l'intégral en temps*)
calculI[t_] := Module[{}],
  I1e = I1e + v1e*Exp[-t/tau]*dt; I2e = I2e + v2e*Exp[-t/tau]*dt;
  I3e = I3e + v3e*Exp[-t/tau]*dt; I4e = I4e + v4e*Exp[-t/tau]*dt;
  I5e = I5e + v5e*Exp[-t/tau]*dt; I6e = I6e + v6e*Exp[-t/tau]*dt;
  I1h = I1h + v1h*Exp[-t/tau]*dt; I2h = I2h + v2h*Exp[-t/tau]*dt;
  I3h = I3h + v3h*Exp[-t/tau]*dt; I4h = I4h + v4h*Exp[-t/tau]*dt;
  I5h = I5h + v5h*Exp[-t/tau]*dt; I6h = I6h + v6h*Exp[-t/tau]*dt;
]
(* Jacobien pour un ellipsoïde *)
Jacob[u_, v_, a_, b_, c_] :=
  Sqrt[b^2 c^2 Sin[v]^4 Cos[u]^2 + a^2 c^2 Sin[v]^4 Sin[u]^2
  + a^2 b^2 Sin[v]^2 Cos[v]^2]
(* Calcul de l'intégral de l'équation 3.3 *)
grosCalcul[i_, j_, u_, v_] :=
  CCe*v01e[[i]]*I1e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]] +
  CCe*v02e[[i]]*I2e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, R*df, r/Sqrt[df], r/Sqrt[df]] +
  CCe*v03e[[i]]*I3e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]] +
  CCe*v04e[[i]]*I4e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, r*df, R/Sqrt[df], r/Sqrt[df]] +
  CCe*v05e[[i]]*I5e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]] +
  CCe*v06e[[i]]*I6e[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, r*df, r/Sqrt[df], R/Sqrt[df]] +
  CCh*v01h[[i]]*I1h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]] +

```

```

CCh*v02h[[i]]*I2h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, Rh*df, rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]] +
CCh*v03h[[i]]*I3h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]] +
CCh*v04h[[i]]*I4h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, rh*df, Rh/Sqrt[df], rh/Sqrt[df]] +
CCh*v05h[[i]]*I5h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]] +
CCh*v06h[[i]]*I6h[[j]]*du*dv*Jacob[u, v, rh*df, rh/Sqrt[df], Rh/Sqrt[df]]
(* Calcul du tenseur de conductivité *)
calculS[u_, v_] := Module[{},
  sxx = sxx + grosCalcul[1, 1, u, v];
  syy = syy + grosCalcul[2, 2, u, v];
  szz = szz + grosCalcul[3, 3, u, v];
  sxy = sxy + grosCalcul[1, 2, u, v];
  syx = syx + grosCalcul[2, 1, u, v];
  sxz = sxz + grosCalcul[1, 3, u, v];
  szx = szx + grosCalcul[3, 1, u, v];
  syz = syz + grosCalcul[2, 3, u, v];
  szy = szy + grosCalcul[3, 2, u, v];
]

```

Programme principal

```

(* DeltaX: déformation en x, B0: champ magnétique appliqué,
ne et nh : densité de charges *)
DoEverything[DeltaX_, B0_, ne_, nh_] := Block[{},
  deltaX = DeltaX;
  BB = B0;
  ConstantsInit[BB, ne, nh];
  du = Pi/9; (* du et dv < pi/9 pour obtenir une bonne convergence*)
  dv = Pi/9;
  dtheta = Pi/8; (* nombre de points en theta *)
  theta = Table[i, {i, 0, 2*Pi, dtheta}];
  conductivity = Range[Length[theta]]*0;
  resistivity = Range[Length[theta]]*0;

```

```

nb = 300; (* nb > 300 pour que les trajectoires ne divergent pas trop *)
dt = (tauh + taue)/2/nb; (* un pas de temps*)
Do[
  B = {BB*Cos[theta[[x]]], BB*Sin[theta[[x]]]*Cos[phi],
  BB*Sin[theta[[x]]]*Sin[phi]};
  Print[B];
  (* La somme parallèle est utilisée pour améliorer le temps de calcul.
  Plus rapide avec plusieurs kernels mathematica *)
  conductivity[[x]] = ParallelSum[
    calculK[u, v];
    calculV0; I0;
    Do[
      calculI[t];
      miseAJourK;
      calculV, {t, 0, 7*tau, dt}
      (* temps d'intégration > 7 tau pour convergence*)
    ];
    {{grosCalcul[1, 1, u, v], grosCalcul[1, 2, u, v], grosCalcul[1, 3, u, v]},
    {grosCalcul[2, 1, u, v], grosCalcul[2, 2, u, v], grosCalcul[2, 3, u, v]},
    {grosCalcul[3, 1, u, v], grosCalcul[3, 2, u, v], grosCalcul[3, 3, u, v]}},
    {u, 0, 2*Pi, du}, {v, 0, Pi, dv}
  ];
  Print[conductivity[[x]]];
  resistivity[[x]] = Inverse[conductivity[[x]]];
  Print[resistivity[[x]]];, {x, 1, Length[theta]};
output = resistivity[[All, 3, 3]]; (* output le pzz du calcul *)
output
]

```

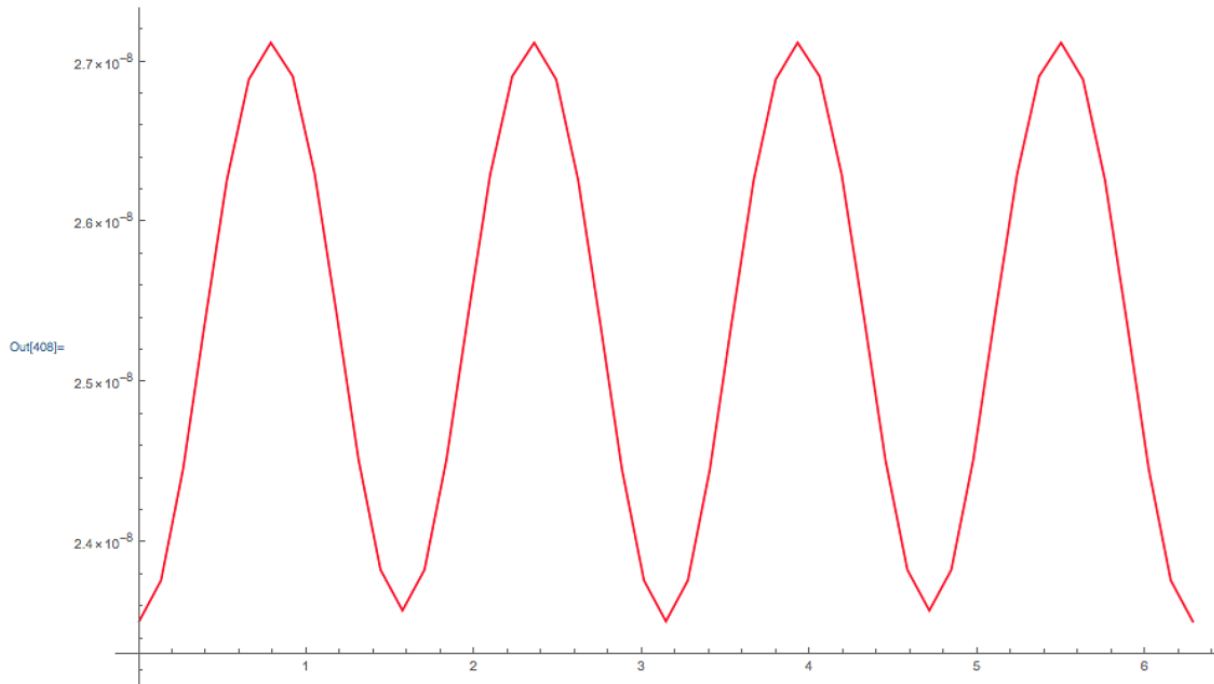


FIGURE 2.10. Exemple de graphique obtenu avec le code. L'axe des x est l'angle θ en radian et l'axe des y est la résistivité en Ohm.

Exemple

```

deltaX = 0;
B0 = 1;
ne = 1*10^25;
nh = 1*10^25;
out=DoEverything[deltaX, B0, ne, nh]
ListLinePlot[Transpose[{theta, out}]]

```