

Titre : Dynamique de spin et conduction de la chaleur dans un compos     base de terbium $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$

Mots cl  s : Dynamique de spin, conductivit   thermique, terbium, couplage magn  to- lastique, neutron.

R  sum   : Cette th  se de doctorat est consacr  e    l  tude du compos     base de terbium $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$. Le travail s  articule autour d  un paradoxe en physique de la mati  re condens  e : pourquoi certains isolants   lectriques cristallins, malgr   une dynamique de r  seau classique (avec des vitesses du son de l  ordre de plusieurs milliers de m/s), pr  sentent-ils une conductivit   thermique anormalement basse, comparable    celle de mat  riaux amorphes ? $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ est un exemple de tels mat  riaux, avec une conductivit   thermique "  tonnamment basse", et que cette   tude cherche    expliquer par un couplage fort entre les degr  s de libert   magn  tiques et les vibrations du r  seau (phonons). La th  se utilise la diffusion de neutrons pour sonder    la fois ordres et excitations magn  tiques dans ce compos  . Le chapitre 1 d  crit en d  tail les techniques exp  rimentales (diffraction, diffusion in  lastique) et les m  thodes num  riques (mod  lisation du champ cristallin, RPA) qui ont servi de fondement    l  tude. Le chapitre 2 s  int  resse aux propri  t  s magn  tiques. Les mesures de susceptibilit   magn  tique et de diffraction de neutrons    champ nul r  v  lent l  absence d  ordre magn  tique spontan   jusqu      30 mK, comme de diffusion diffuse. Cette observation est une signature claire d  un   tat fondamental de champ cristallin singulet pour l  ion Tb^{3+} , un ion non-Kramers. Sous l  effet d  un champ magn  tique externe, un moment magn  tique est induit. Les travaux mettent en   vidence une anisotropie "planaire" des moments induits, qui sont contraints de s  orienter dans un plan orthogonal    l  axe de sym  trie locale (C_{4v}) de chaque ion Tb^{3+} . Le chapitre 3 explore les fondements microscopiques de ce comportement. Des mesures de diffusion in  lastique des neutrons sur monocristal permettent d  identifier un sch  ma de niveaux d  nergie du champ cristallin (CEF) compos   d  un   tat fondamental singulet et d  un doublet excit      2,7 meV. Ce sch  ma permet d  expliquer l  anisotropie planaire observ  e. Ce chapitre montre   galement que, dans ce syst  me, les interactions dipolaires et les interactions d   change sont    prendre en compte. Le chapitre 4 fait le lien entre propri  t  s magn  tiques et transport. La conductivit   thermique de $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ est mod  lis  e    l  aide de l   quation du transport de Boltzmann, qui inclut un terme de diffusion r  sonnante entre les excitons magn  tiques de CEF et les phonons. Cette mod  lisation confirme que la faible conductivit   thermique peut s  expliquer par un couplage magn  to- lastique fort. Des mesures de diffusion in  lastique de neutrons sous champ magn  tique renforcent cette hypoth  se en r  v  lant une possible signature microscopique de ce couplage : un mode d  excitation    11 meV qui se superpose    une branche de phonon optique, t  moignant d  un lien entre ces deux types d  excitations. $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ se pr  sente comme un syst  me tr  s riche pour   tudier l  interaction complexe entre excitations magn  tiques et de r  seau dans les mat  riaux quantiques.

Title : Spin dynamics and heat conduction in a terbium based compound $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$

Keywords : Magnetism, rare earth, crystal field, excitons, magneto-elastic coupling, neutrons, thermal conductivity

Abstract : This PhD thesis focused on the study of $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$, an electrical insulator. The work is centered on a paradox in condensed matter physics : why do some crystalline materials, despite having typical lattice dynamics (with sound velocities of the order of several thousand m/s), exhibit an abnormally low thermal conductivity, comparable to that of amorphous materials? $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ can help us answer this enigma with its "surprisingly low" thermal conductivity, which the thesis seeks to explain through a strong coupling between magnetic degrees of freedom and lattice vibrations (phonons). The thesis uses neutron scattering to probe both the magnetic orders and the dynamics of this compound. Chapter 1 details the experimental techniques (diffraction, inelastic scattering) and numerical methods (crystal field modeling, RPA) that were used for the study. Chapter 2 focuses on magnetic properties. Magnetic susceptibility and zero-field neutron diffraction measurements reveal an absence of spontaneous magnetic order down to 30 mK. This observation, corroborated by the lack of diffuse scattering signal, is a clear signature of a singlet ground state for the non-Kramers Tb^{3+} ion. Under an external magnetic field, a magnetic moment is induced. The PhD work shows a "planar anisotropy" of the induced moments, which are constrained to align within a plane orthogonal to the local symmetry axis (C_{4v}) of each Tb^{3+} ion. Chapter 3 explores the microscopic foundations of this behavior. Inelastic neutron scattering measurements identify a crystal field energy level scheme composed of a singlet ground state and an excited doublet at 2.7 meV. This scheme, modeled by crystal field theory, explains the observed planar anisotropy. The chapter also shows that in this system dipolar interactions and exchange interactions are to be taken into account. Chapter 4 links magnetic properties and transport. The thermal conductivity of $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ is modeled using the Boltzmann transport equation, which includes a resonant scattering term between CEF magnetic excitons and phonons. This modeling confirms that the low thermal conductivity can be explained by a strong magneto-elastic coupling. Inelastic neutron scattering measurements under a magnetic field support this hypothesis by revealing the microscopic signature of this coupling : an excitation mode at 11 meV that overlaps with an optical phonon branch, indicating a hybridization of the two types of excitations. $\text{KTb}_3\text{F}_{10}$ is an interesting system to study the complex interactions between magnetic and lattice excitations in quantum materials.