

Avis de Soutenance

Madame Michalina SLEMP

Physique

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés
Nanoparticules plasmoniques chirales pour les capteurs optiques non lineaires.

Travaux dirigés par Monsieur Pierre-francois BREVET et Monsieur Stéphane PAROLA

Soutenance prévue le **mardi 31 mars 2026** à 14h00

Lieu : Salle de conférences Institut de Nanotechnologie de Lyon Bât Irène Joliot Curie 3 rue Enrico Fermi 69100 Villeurbanne

Composition du jury proposé

M. Pierre-Francois BREVET	Professeur des universités	Université Claude Bernard Lyon 1	Directeur de thèse
Mme Laura VITADELLO	Chaire Professeur Junior	Université Savoie-Mont-Blanc	Examinatrice
M. Stéphane PAROLA	Professeur des universités	Lyon 1 Université	Co-directeur de thèse
M. Stephan GUY	Professeur des universités	Lyon 1 Université	Examineur
Mme Anne-Laure BAUDRION	Maître de conférences	Université de Troyes	Rapporteure
M. Takuji ADACHI	Professeur associé	Université de Genève (Suisse)	Rapporteur
Mme Katarzyna MATCZYSZYN	Université de Wroclaw (Pologne)	Invitée	

Mots-clés : chiralité, Hyper-Rayleigh scattering, Optique non linéaire

Résumé :

Cette thèse est consacrée à l'étude de la génération de second harmonique incohérente, connue sous le nom de diffusion hyper-Rayleigh (Hyper-Rayleigh Scattering, HRS), appliquée à l'investigation des propriétés optiques non linéaires de nanoparticules métalliques en suspension. La HRS constitue l'analogue incohérent de la génération de second harmonique et représente un outil puissant pour sonder des systèmes isotropes tels que les liquides, les colloïdes et les milieux désordonnés, sans les contraintes liées à l'accord de phase. Elle permet un accès direct à la première hyperpolarisabilité d'entités microscopiques et se révèle particulièrement adaptée à l'étude de la rupture de symétrie, des effets de taille et de l'anisotropie de forme. Le travail débute par la présentation du cadre théorique de la génération de second harmonique, de la diffusion de second harmonique et de la diffusion hyper-Rayleigh, en mettant en évidence le rôle fondamental de la cohérence, des propriétés de symétrie et de l'organisation spatiale des sources non linéaires. Une attention particulière est portée aux effets de retard et aux contributions multipolaires qui

apparaissent lorsque la taille des nanoparticules devient comparable à la longueur d'onde d'excitation, assurant la transition entre le régime microscopique de la HRS et la limite macroscopique de la génération de second harmonique cohérente. Une approche de modélisation numérique fondée sur une approximation des dipôles discrets non polarisables (Non-Polarizable Discrete Dipole Approximation, NPDDA) est ensuite développée afin de simuler la réponse HRS de nanoparticules de géométries arbitraires. Cette méthode permet de dissocier les contributions respectives de la morphologie, de la taille et de la symétrie des particules au signal non linéaire mesuré, tout en conservant l'information de phase spatiale nécessaire à la prise en compte des effets de retard. Des mesures expérimentales de HRS sont réalisées sur une large gamme de systèmes, incluant des nanoparticules d'or sphériques, des nanoparticules bimétalliques et des nanostructures chirales. Des mesures résolues en polarisation et dépendantes de la puissance permettent d'extraire les premières hyperpolarisabilités et d'identifier l'apparition de contributions d'ordre supérieur ou de nature cohérente. Une attention particulière est accordée à l'influence de la taille des particules, de leur composition et de leur structure de surface sur la réponse non linéaire. Enfin, l'extension de la HRS à une excitation polarisée elliptiquement permet l'étude de la chiralité de la réponse optique non linéaire de suspensions de nanoparticules. Les résultats montrent que la diffusion hyper-Rayleigh constitue une sonde sensible et polyvalente de la chiralité à l'échelle nanométrique et établissent la HRS comme une méthode puissante pour l'étude des propriétés non linéaires et chiroptiques des systèmes nanostructurés.

Summary:

This thesis is devoted to the study of incoherent second harmonic generation, known as Hyper-Rayleigh Scattering (HRS), applied to the investigation of nonlinear optical properties of metallic nanoparticles in suspension. HRS is the incoherent analogue of second harmonic generation and provides a powerful tool for probing isotropic systems such as liquids, colloids, and disordered media, without the constraints of phase matching. It enables direct access to the first hyperpolarizability of microscopic entities and is particularly suited for studying symmetry breaking, size effects, shape anisotropy. The work first introduces the theoretical framework of second harmonic generation, second harmonic scattering, and hyper-Rayleigh scattering, highlighting the fundamental role of coherence, symmetry properties, and spatial organization of nonlinear sources. Particular emphasis is placed on retardation effects and multipolar contributions that arise when the size of the nanoparticles becomes comparable to the excitation wavelength, bridging the microscopic HRS regime and the macroscopic coherent SHG limit. A numerical modeling approach based on a Non-Polarizable Discrete Dipole Approximation (NPDDA) is then developed to simulate the HRS response of nanoparticles with arbitrary geometries. This method allows disentangling the respective contributions of particle morphology, size, and symmetry to the measured nonlinear signal, while preserving spatial phase information necessary to account for retardation effects. Experimental HRS measurements are performed on a wide range of systems, including spherical gold nanoparticles, mixed-metal nanoparticles, and chiral nanostructures. Polarization-resolved and power-dependent measurements are used to extract first hyperpolarizabilities and to identify the onset of higher-order or coherent contributions. Particular attention is given to the influence of particle size, composition, and surface structure on the nonlinear response. Finally, the extension of HRS to elliptically polarized excitation enables the investigation of chirality in the non linear optical response from nanoparticle suspensions. The results demonstrate that HRS provides a sensitive and versatile probe of nanoscale chirality and establishes hyper-Rayleigh scattering as a powerful method for studying nonlinear and chiroptical properties of nanostructured systems.