

## DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **19 février 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur. e : **Monsieur Maxime FERY**

Titre de la thèse : Sonder la structure de liquides par des méthodes optiques non linéaires : des électrolytes concentrés en volume aux liquides confinés

### Résumé



Au cours de ce travail de thèse, la génération de second harmonique (ou SHG pour l'acronyme anglais Second Harmonic Generation), processus optique non-linéaire, a été utilisée dans le but de sonder l'organisation à l'échelle moléculaire de liquides. Pour obtenir une information sur cette organisation, nous utilisons la propriété de cohérence du processus SHG qui fait interagir deux photons à une fréquence fondamentale pour en créer un nouveau à la fréquence harmonique. L'analyse de l'intensité SHG permet de révéler des corrélations en orientation des différentes molécules composant le liquide. Dans cette étude, différents liquides ont été étudiés, des électrolytes concentrés aux liquides confinés. Dans une première partie concernant les électrolytes concentrés, le changement d'organisation en volume des molécules d'eau en présence d'ion a été étudié par la technique de diffusion de second harmonique. Cette étude a révélé deux régimes de réorganisation. Une première transition est observée à faible concentration autour de 10  $\mu\text{M}$  traduisant une évolution dans les corrélations orientationnelles à longue portée des molécules d'eau. Ce résultat confirme que cet effet déjà reporté dans la littérature pour divers sels d'alcalins, est indépendant de la nature de l'anion. Une deuxième transition apparaît au-delà du molaire révélant également un changement dans la structure locale. Ce dernier point est confirmé par un changement dans la réponse vibratoire des molécules d'eau sondée par des mesures Hyper-Raman. Dans une seconde partie, je présente le montage expérimental développé au cours de cette thèse permettant d'étudier l'effet du confinement sur l'organisation moléculaire d'un liquide. Ce montage couple la microscopie par génération de second harmonique et le confinement de liquide dans une géométrie sphère-plan. Le dispositif expérimental et ses performances (mécaniques et optiques) sont d'abord décrits. A l'aide de ce dispositif expérimental, plusieurs configurations ont été étudiées. Des profils d'intensité SHG en fonction de l'altitude sont tout d'abord discutés dans le cas d'interfaces simples comme l'interface liquide/verre ou air/verre. Dans un second temps, des résultats préliminaires ont

été obtenus dans la configuration d'un liquide confiné, le confinement restant à cette étape limité au micromètre.

**Mots-clés :** optique non-linéaire, liquide, confinement