



Soutenance de thèse

Lundi 21 septembre 2015

Amphi Becquerel - 14h00

Nicolas Tancogne-Dejean

***Ab initio* description of second-harmonic generation from crystal surfaces**

More than 50 years after the first experimental observation of second-harmonic generation, the theoretical description of second-harmonic generation is still under debate, whereas it is well understood from an experimental point of view. This is the gap that this thesis aims to fill.

This work aims to improve the theoretical description and understanding of the generation of second-harmonic from the surfaces of crystalline semiconductors.

When applying an external electric field to a dielectric material, electric dipoles are created at a microscopic level. These dipoles are responsible for the apparition, inside the material, of an induced field. The fluctuations of the electric field at a microscopic level, the density fluctuations or any kind of microscopic inhomogeneities must be taken into account when describing the optical properties of a system. These effects are often referred as "local-field effects".

These local-field effects have been widely studied in the past and in particular their effects on the optical properties of bulk materials are now well established. In the case of surfaces, the theoretical description and the numerical simulations are more intricate than for bulk materials. The abrupt change in the electronic density leads to a huge variation of the electric field at the interface with vacuum. As a result, strong effects of the local-field are expected, in particular in the direction perpendicular to the plane of the surface.

The goal of this thesis is to quantify how important these effects are for the linear and second-order optical properties of surfaces.

A macroscopic theory of second-harmonic generation from crystal surfaces has been developed in order to account for local-field effects. The latter are calculated from first-principles, in the framework of the Time-Dependent Density-Functional Theory (TDDFT). The primary interest is the description of non-linear optical responses of surfaces, but new theoretical tools for improving the description of local-field effects in the case of linear optics have also been developed.

The numerical simulations have been focused on the Si(001) surface, and the macroscopic formalism developed during this thesis has been applied to three surface reconstructions, namely the clean Si(001)2x1, the monohydride Si(001)2x1:H and the dihydride Si(001)1x1:2H surfaces.

Comparison with available experimental results is also reported.



Génération de seconde harmonique à la surface des cristaux : description *ab initio*

Plus de 50 ans après la première observation expérimentale de la génération de deuxième harmonique, la description théorique de la génération de deuxième harmonique est toujours sujette à débat, alors qu'elle est bien comprise d'un point de vue expérimental. C'est ce fossé que cette thèse vise à combler.

Ce travail a pour but d'améliorer la description théorique ainsi que la compréhension de la génération de deuxième harmonique à la surface des cristaux semi-conducteurs.

Lorsque l'on applique un champ électrique extérieur à un matériau diélectrique, des dipôles électriques se créent au niveau microscopique.

Ces dipôles sont responsables de l'apparition, à l'intérieur du matériau, d'un champ induit.

Les fluctuations du champ électrique à l'échelle microscopique, les fluctuations de la densité ou tout type d'inhomogénéités microscopiques doivent être pris en compte lorsque l'on décrit les propriétés optiques d'un système. Ces effets sont souvent appelés "effets des champs locaux".

Ces effets des champs locaux ont été largement étudiés par le passé et en particulier leurs effets sur les propriétés optiques des matériaux massifs est maintenant bien établi.

Dans le cas des surfaces, la description théorique et les simulations numériques sont plus compliquées que pour les matériaux massifs. Le changement abrupt de la densité électronique conduit à une variation importante du champ électrique à l'interface avec le vide. Par conséquent, de forts effets dû au champ local sont attendus, en particulier dans la direction perpendiculaire au plan de la surface.

Le but de cette thèse est de quantifier à quel point ces effets affectent les propriétés optiques linéaires et non-linéaires des surfaces.

Une théorie macroscopique de la génération de deuxième harmonique à la surface des cristaux a été développée afin de tenir compte des effets dû aux champs locaux. Ces derniers sont calculés à partir des premiers principes, dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du temps (TDDFT). L'intérêt principal de cette thèse est la description de la réponse non-linéaire des surfaces, mais de nouveaux outils théoriques permettant une meilleure description des champs locaux et de leurs effets sur les propriétés optiques linéaires ont aussi été développé.

Les simulations numériques se sont focalisées sur la surface Si(001), et le formalisme macroscopique développé durant cette thèse a été appliqué à trois reconstructions de surface, ici la surface propre Si(001)2x1, la surface monohydrique Si(001)2x1:H et la surface dihydrique Si(001)1x1:2H.

Des comparaisons avec les résultats expérimentaux disponibles sont aussi présentées.