

Thèses cofinancées DGA-Inria - Appel à sujets 2018

« Diffusion de la lumière induite par des nano-hétérogénéités dans les fibres optiques »

Laboratoire d'accueil: Inria Sophia Antipolis - Méditerranée, équipe-projet « Nachos »

Laboratoire partenaire: INΦNI (Institut de Physique de Nice), Université Côte d'Azur, CNRS, Parc Valrose, équipes « Fibres optiques » et « Physique Mésoscopique »

Directeurs de thèse : **Stéphane Lanteri** (DR Inria), Inria, équipe-projet « Nachos », et **Wilfried Blanc** (CR CNRS, HDR), INΦNI (composante LPMC), équipe « Fibres optiques »

1. Problématique générale

1.1 Contexte des nanoparticules dans les fibres optiques

Les propriétés de luminescence des fibres optiques sont généralement obtenues en dopant avec des ions de terres rares (TR). Parmi tous les verres disponibles, seul le verre de silice (SiO_2) a trouvé un grand intérêt commercial pour les fibres optiques. Tous les autres verres proposés (fluorures, chalcogénures) imposent des limites sur le coût de fabrication, la fiabilité et le fonctionnement des appareils, même s'ils fourniraient de bonnes propriétés de luminescence aux TR. Aujourd'hui, les applications nécessitent des matériaux dopés aux TR ayant des propriétés optiques intrinsèques « augmentées », notamment des propriétés spectroscopiques qui n'apparaîtraient pas dans un verre de silice pure. Par exemple, l'augmentation du nombre de longueurs d'onde accessibles (par exemple une émission dans le bleu pour la réalisation d'un LIDAR sous-marin), l'élargissement de la bande d'émission de fluorescence (augmentation du débit d'information), l'abaissement du seuil laser ou la réduction du photo- et radio-noircissement permettront de développer de nouvelles sources laser de puissance ou de nouvelles fibres adaptées aux conditions difficiles et extrêmes comme dans la détection et les applications spatiales ou nucléaires. Pour répondre à ces nouvelles demandes, l'une des principales voies d'intérêt est basée sur un verre contenant des nanoparticules et **la maîtrise des processus de diffusion de lumière induite par les nano-hétérogénéités** [1]. Pour un grand nombre d'applications, la diffusion de la lumière doit être minimisée et les nouvelles propriétés de luminescence sont dues à l'intégration des ions TR dans des nanoparticules diélectriques (ND) de composition et de structures locales différentes de celles de la matrice à base de silice (Figure 1.a). Grâce à cette approche, les propriétés de luminescence des ions TR sont adaptées en choisissant la composition des ND. Cependant, il existe des applications nécessitant une très forte diffusion de la lumière comme dans le cas des lasers aléatoires. Contrairement aux lasers conventionnels reposant sur une cavité optique fermée par des miroirs, les lasers aléatoires n'ont pas de miroirs. La lumière est confinée dans le milieu amplificateur grâce à la diffusion multiple. De tels lasers sont pressentis pour avoir un seuil laser bas. Le développement de cette nouvelle génération de fibres optiques est actuellement limité par le manque de connaissances liées aux processus de fabrication d'une part, et au **manque de compréhension des phénomènes principaux qui sous-tendent l'interaction entre la lumière et les nanoparticules dans les fibres optiques** d'autre part. Ce projet s'intéresse plus particulièrement à cette seconde problématique.

L'équipe « Fibres optiques » de la composante LPMC de INΦNI a développé une voie originale de fabrication de ces fibres optiques et s'est particulièrement investie dans l'étude du procédé de fabrication, l'analyse des propriétés spectroscopiques des TR et de la composition chimique des nanoparticules. Le procédé utilisé repose sur le procédé MCVD (*Modified Chemical Vapor Deposition*) et la technique de « trempage » qui sont les procédés les plus utilisés industriellement pour préparer des préformes (barreaux de verre transformés en fibres optiques par étirage à chaud) à base de silice. Dans l'approche du LPMC, les nanoparticules sont obtenues directement au cours du procédé de fabrication en mettant à profit les traitements thermiques. Des mécanismes de séparation de phase sont déclenchés grâce à l'introduction d'ions alcalins tel que le magnésium (Figure 1.b). Le LPMC a rapporté des modifications des propriétés de luminescence d'ions TR dans des fibres contenant des ND [2]. Par exemple, un élargissement de la bande d'émission est observé (Figure 1.c) et expliqué par la présence des ions TR dans les nanoparticules lorsqu'elles ont une taille > 50 nm. Toutefois, la transmission de lumière dans de telles fibres est très limitée. L'approche de la diffusion de la lumière via le modèle de Rayleigh impose d'avoir les nanoparticules les plus petites possibles (moins de 10 nm). Cependant, il est connu que l'approche Rayleigh montre des limitations. Par exemple, il a été observé qu'en augmentant la fraction volumique des nanoparticules, la

transmission de lumière mesurée est supérieure à celle attendue par rapport à Rayleigh (on parle alors d'ultra-transparence) [3]. Par ailleurs, les études concernent généralement des nanoparticules monodisperses en taille. Or, la formation de nanoparticules par séparation de phase conduit à une forte polydispersité en taille, typiquement de quelques nm à quelques centaines de nm (Figure 1.b). Il convient donc de pouvoir étudier de façon systématique les effets de diffusion de lumière induite par la présence de nanoparticules dans le cœur de fibres optiques. Dans cette problématique, **une approche numérique, en complément de la voie expérimentale**, s'impose ; c'est un point central du projet de thèse proposé ici.

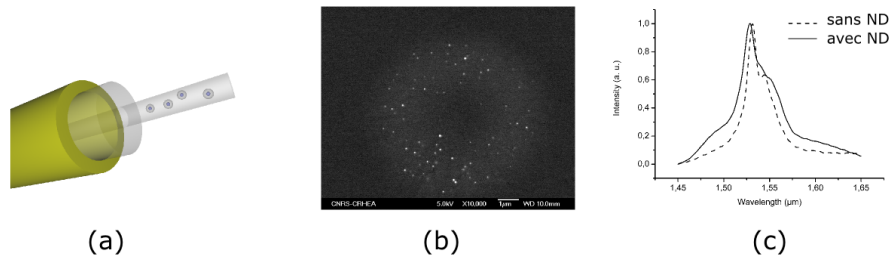


Figure 1 : (a) vue d'artiste d'une fibre optique dont le cœur contient des nanoparticules enrobant des ions de terres rares (b) image MEB d'une section clivée de fibre optique contenant des nanoparticules formées par l'introduction de magnésium et (c) spectres d'émission de Er³⁺ avec (trait plein) et sans (trait pointillé) nanoparticules.

1.2 Modélisation numérique de l'interaction lumière/matière nanostructurée

La simulation numérique de la propagation de la lumière en interaction avec la matière s'appuie sur des méthodes numériques pour la résolution des équations de Maxwell, éventuellement couplées à des lois de comportement plus ou moins complexes de la matière (milieux linéaires ou non-linéaires, possiblement dispersifs). La propagation de la lumière dans une fibre nanostructurée présente des caractéristiques qui sont aussi des défis pour la modélisation numérique : la complexité géométrique (i.e. des nanostructures), l'hétérogénéité des milieux de propagation, la variabilité des échelles d'espace et de temps (caractère multiéchelle). Différentes méthodes numériques ont été développées pour résoudre les équations de Maxwell en régime temporel ou harmonique. Parmi celles-ci, des méthodes reposant sur une formulation Galerkin discontinue ont été extensivement étudiées ces dernières années. En combinant les avantages de formulations élément fini et volume fini, une formulation Galerkin discontinue permet de construire une méthode de résolution d'ordre arbitrairement élevé et adaptée à la discrétisation de géométries irrégulières. Ainsi, les méthodes Galerkin discontinues présentent plusieurs points forts: (1) elles sont naturellement adaptées à la discrétisation de fonctions discontinues et à la discrétisation de milieux de propagation hétérogènes; (2) elles se prêtent bien à l'utilisation de maillages non-structurés (non-orthogonaux et non-uniformes) pour la discrétisation de formes géométriques complexes; (3) elles permettent d'obtenir une précision d'ordre arbitrairement élevé; (4) elles autorisent une non-conformité de la discrétisation et de l'approximation ouvrant la voie vers des stratégies de résolution auto-adaptatives ; (5) elles sont parfaitement adaptées au calcul parallèle. De telles méthodes Galerkin discontinues ont été extensivement étudiées ces dernières années dans l'équipe-projet Nachos pour la simulation numérique de phénomènes de propagation d'ondes électromagnétiques dans le spectre des radiofréquences/micro-ondes en visant des applications en compatibilité électromagnétique, vulnérabilité électrique et bioélectromagnétisme [4]-[5]-[7]-[8]-[9]. Plus récemment, dans le cadre de la thèse DGA-Inria de Jonathan Viquerat soutenue en décembre 2015, l'équipe a commencé à s'intéresser au domaine de la nanophotonique. Une méthode Galerkin discontinue a ainsi été mise au point pour étudier des phénomènes d'interaction lumière/nanostructures métalliques (plasmonique) [6] en domaine temporel.

2. Objectif de la thèse

L'objectif général de ce projet de thèse est **l'étude des phénomènes de diffusion de la lumière induits par des nano-hétérogénéités dans les fibres optiques**, et plus particulièrement de l'influence du degré d'hétérogénéité. La mesure expérimentale ne permettant d'accéder qu'à une information partielle sur ces phénomènes, le recours à la modélisation et la simulation numérique s'impose pour caractériser de façon plus détaillée la propagation d'une onde électromagnétique dans un cœur de fibre optique nanostructuré, le but ultime étant d'obtenir des informations quantitatives permettant d'adapter la procédure de

fabrication de ce type de fibre optique pour optimiser leur efficacité en transmission de l'information. Ce projet de thèse comportera donc **un volet principal portant sur la théorie et la simulation numérique** des phénomènes d'interaction lumière/matière dans un cœur de fibre nanostructuré. Plus précisément, il s'agira de mettre au point une nouvelle méthodologie numérique permettant de rendre compte des effets de diffusion de lumière induite par la présence de nanoparticules dans le cœur de fibres optiques en considérant deux régimes de nano-hétérogénéité:

1. Dans un premier temps, on considérera le cas de **fibres modérément hétérogènes** et on adaptera et exploitera une méthodologie numérique existante, du type Galerkin discontinu, pour étudier les pertes par diffusion de la lumière, en lien avec différents paramètres de caractérisation (comme la polydispersité en taille). On évaluera notamment la pertinence (et donc, les limites d'applicabilité) de cette approche méthodologique suivant le degré d'hétérogénéité.
2. Dans un second temps, on étudiera plus précisément le cas des **fibres très hétérogènes** avec en point de mire les **fibres aléatoires**. Il s'agira ici d'étudier les conditions menant à l'amplification du signal, là encore en fonction de paramètres de caractérisation. Pour modéliser et simuler avec précision et efficacité ce type de configuration, on cherchera à mettre au point une nouvelle variante de la méthodologie considérée pour le cas de fibres modérément hétérogènes, afin de prendre en compte le **caractère multiéchelles** prononcé du fait de l'hétérogénéité.

Cette méthodologie sera alors exploitée pour étudier des questions telles que l'influence de la fraction volumique des nanoparticules et de la polydispersité en taille sur les pertes optiques. Des études paramétriques seront réalisées nécessitant la réalisation de simulations numériques mettant en jeu une diversité de configurations géométriques de fibres. Pour cela, un outil de génération automatique de configurations géométriques sera développé qui permettra notamment d'explorer des intervalles de valeurs de la fraction volumique des nanoparticules d'une part, et de diamètre des nanoparticules (polydispersité en taille) d'autre part.

Par ailleurs, on réalisera des comparaisons avec des mesures, à des fins de validation des approches numériques d'une part, et pour qualifier des propositions d'adaptation du procédé de fabrication des fibres d'autre part. Ce **volet expérimental** s'appuiera la capacité de préparation d'échantillons de fibres optiques telles que développées au LPMC mais aussi sur une collaboration avec l'ICGM (Institut Charles Gerhardt de Montpellier) pour la réalisation d'échantillons massifs à base de silice contenant des nanoparticules de tailles et de fraction volumique contrôlées. La réalisation de tels échantillons est d'ores et déjà en cours dans le cadre d'un autre projet financé par l'ANR. De tels monolithes seront ensuite insérés dans des tubes de verre puis étirés en fibre optique. Ces échantillons permettront d'étudier la diffusion de la lumière par des nanoparticules monodisperses avec ou sans guidage optique. Les études sur la polydispersité en taille porteront sur des fibres préparées par la méthode développée au LPMC ou à partir de monolithes préparés spécifiquement.

Enfin, la thèse comportera aussi **un volet développement logiciel** qui verra l'implantation des nouvelles contributions méthodologiques résultant des travaux menés dans cette thèse dans la suite logicielle DIOGENES¹ dont le développement a démarré en décembre 2015 à l'Inria Sophia Antipolis-Méditerranée. Cette suite logicielle est dédiée à la modélisation numérique de problèmes d'interaction onde/matière nanostructurée. Elle intègre différentes variantes de la famille des méthodes Galerkin discontinues discutées précédemment, et qui résultent de travaux de recherche menés dans l'équipe-projet Nachos. A terme, cette suite logicielle a vocation à être exploitée et co-développée en collaboration avec des chercheurs physiciens et ingénieurs menant des études en photonique et nanophotonique.

3. Phasage et timing de la thèse

Le déroulement de la thèse sera le suivant :

- **Année 1.** Etude du cas des **fibres modérément hétérogènes**. Spécification de la méthodologie numérique (variante 1) basée sur la résolution des équations de Maxwell 3d en régime fréquentiel, et développement de l'outil de simulation associé en s'appuyant sur l'infrastructure DIOGENES. Réalisation de simulations pour un matériau massif (pas de guidage optique) avec des nanoparticules de tailles monodisperses en vue de reproduire les résultats de la bibliographie (notamment vis-à-vis de l'influence de la fraction volumique) dans un premier temps, puis prise en

¹ <https://diogenes.inria.fr/>

compte de nanoparticules polydisperses dans les simulations et réalisation d'une étude numérique détaillée. En parallèle, la réalisation des matériaux se fera dans le cadre de la collaboration avec l'ICGM afin d'obtenir par voie sol - gel des monolithes avec des nanoparticules contrôlées en taille et en fraction volumique. Les nanoparticules seront caractérisées par microscopie électronique (soit à l'ICGM, soit au CRHEA avec lequel nous avons une longue collaboration). Des mesures optiques seront réalisées. Au cours de cette première année, il s'agira principalement de caractériser la transmission optique et, si possible, la diffusion angulaire.

- **Année 2.** D'une part, suite de l'étude du cas des **fibres modérément hétérogènes** avec notamment une étude préliminaire du guidage optique dans de telles fibres. Les simulations numériques viseront à évaluer les pertes optiques dans les fibres, et des comparaisons seront menées sur la base de mesures de transmission réalisées au LPMC.
D'autre part, démarrage de l'étude du cas des **fibres très hétérogènes**. Spécification de la méthodologie numérique (variante 2) basée sur la résolution des équations de Maxwell 3d en régime fréquentiel en intégrant une approche mathématique spécifique pour le traitement du caractère multiéchelles.
- **Année 3.** Développement de l'outil de simulation associé à la variante 2 en s'appuyant sur l'infrastructure DIOGENeS. Réalisation de simulations numériques pour l'étude du guidage optique dans des fibres très hétérogènes.

4. Applications

Les retombées attendues de ce projet de thèse portant sur la problématique « nanoparticules dans les fibres optiques » concernent de nombreuses Technologies Clés Génériques telles que la photonique, les nanotechnologies, les matériaux et procédés avancés. Outre les améliorations des lasers et amplificateurs actuels opérant dans l'infrarouge, les nanoparticules dans les fibres devraient permettre d'étendre la couverture spectrale en dessous du 1 μm , là où les fibres en silice sont actuellement déficientes. Les résultats attendus permettront d'augmenter significativement la connaissance pour la communauté R&D des sciences des matériaux, des technologies des fibres optiques et des applications photoniques. Plus concrètement, les applications visées sont de deux types: (1) on localise les ions luminescents dans les nanoparticules (solution actuellement étudiée au LPMC), et on cherche à **minimiser les pertes optiques liées à la diffusion** ; (2) on cherche à **maximiser les diffusions pour localiser la lumière** (cas du laser aléatoire) ou pour **collecter le maximum de lumière** (similairement à ce qui est visé dans le domaine du photovoltaïque).

5. Description/compétences des équipes

Equipe-projet Nachos, Inria Sophia Antipolis – Méditerranée

L'équipe-projet Nachos est commune à Inria, à l'Université de Nice-Sophia Antipolis et au CNRS via son association avec le LJAD. Les activités de l'équipe portent sur l'étude et le développement de méthodes numériques pour la simulation de problèmes de propagation d'ondes électromagnétiques et sismiques en interaction avec des milieux complexes. Depuis la fin 2013, les efforts de l'équipe se concentrent sur la problématique interaction lumière/matière nanostructurée. Les contributions méthodologiques de l'équipe sur la résolution numérique des modèles différentiels d'intérêt pour la nanophotonique computationnelle sont intégrés dans une suite logicielle nommée DIOGENeS (Discontinuous Galerkin Nano Solver) qui servira de base aux travaux menés dans le présent projet.

Equipe Fibres optiques, composante LPMC de l'INΦNI

L'Institut de Physique de Nice (INΦNI) est un laboratoire mixte CNRS/Université de Nice Sophia Antipolis créé au 1^{er} janvier 2017 et regroupant deux laboratoires niçois : le LPMC (Laboratoire de Physique de la Matière Condensée) et l'INLN (l'Institut Non-Linéaire de Nice). L'équipe « Fibres optiques » a plus de 20 ans d'expérience dans le développement de nouveaux concepts de fibres optiques à base de silice pour améliorer les composants des systèmes de télécommunications, des capteurs et des lasers à fibre. L'originalité des fibres développées par cette équipe réside dans leurs propriétés de guidage (profils d'indice de réfraction complexes) et dans leurs propriétés spectroscopiques (inclusion d'ions luminescents à base de terres rares ou de métaux de transition).

4. Références

- [1] W. Blanc *et al.*, « Formation et applications des nanoparticules dans les fibres optiques à base de silice », in « Du verre au cristal. Nucléation, croissance et démixtion, de la recherche aux applications », EDP Sciences, 2013.
- [2] F. D'Acapito *et al.*, « Different Er^{3+} environments in Mg-based nanoparticle-doped optical fibre preforms », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 401, pp. 50-53, 2014.
- [3] A. Ishimaru and Y. Kuga, « Attenuation constant of a coherent field in a dense distribution of particles », *Journal of the Optical Society of America*, vol. 72, pp. 1317, 1982.
- [4] L. Moya *et al.*, « Locally implicit time integration strategies in a discontinuous Galerkin method for Maxwell's equations », *J. Sci. Comp.*, Vol. 56, No. 1, pp. 190-218, 2013.
- [5] C. Durochat *et al.*, « High order non-conforming multi-element Discontinuous Galerkin method for time domain electromagnetics », *Appl. Math. Comput.*, Vol. 224, pp. 681–704, 2013.
- [6] S. Descombes *et al.*, « Recent advances on a DGTD method for time-domain electromagnetics », *Photonics and Nanostructures - Fundamentals and Applications*, Vol. 11, No. 4, pp. 291-302, 2013.
- [7] M. El Bouajaji and S. Lanteri, « High order discontinuous Galerkin method for the solution of 2D time-harmonic Maxwell's equations », *Appl. Math. Comput.*, Vol. 219, No. 13, pp. 7241-7251, 2013.
- [8] S. Lanteri *et al.*, « Numerical investigation of a high order hybridizable discontinuous Galerkin method for 2d time-harmonic Maxwell's equations », *COMPEL*, Vol. 2, No. 3, pp. 1112-1138, 2013.
- [9] L. Li *et al.*, « A hybridizable discontinuous Galerkin method combined to a Schwarz algorithm for the solution of 3d time-harmonic Maxwell's equation », *J. Comput. Phys.*, Vol. 256, pp. 563–581, 2014.