

DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **10 juillet 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur. e : **Monsieur Abel FEUVRIER**

Titre de la thèse : Développement d'une expérience de spectroscopie à double peigne de fréquences dans l'ultraviolet

Résumé



Dans le contexte du changement climatique, de l'étude de la qualité de l'air et de la physico-chimie atmosphérique, la détection de gaz traces est nécessaire. La spectroscopie à double peigne de fréquences (DCS) permet la détection de gaz traces dans l'atmosphère, grâce à des temps d'acquisitions courts pour s'affranchir des fluctuations atmosphériques et des hautes résolutions spectrales pour détecter plusieurs espèces simultanément. En particulier, son utilisation dans l'UV permettrait de détecter des radicalaires critiques pour la physico-chimie atmosphérique. Ce travail vise à développer une expérience UV-DCS pour la détection de gaz atmosphérique. La DCS utilise le battement de deux peignes de fréquences ayant un haut degré de cohérence mutuelle et des fréquences de répétition légèrement différentes. Ce battement permet de cartographier les fréquences optiques sur des fréquences plus basses (domaine radio (rf)), incluses dans la bande passante de photodétecteurs standards. Ainsi l'analyse de mesures temporelles rf permet d'obtenir des informations sur la spectroscopie optique. Cette technique permet d'obtenir des spectres résolus (jusqu'à 100 MHz) avec une haute sensibilité (jusqu'au ppb) en des temps d'acquisition courts (jusqu'à la ms). C'est la combinaison de ces facteurs qui rend la DCS particulièrement pertinente pour la détection à distance de gaz atmosphérique. La cohérence mutuelle entre les deux peignes de notre expérience repose sur l'utilisation d'une cavité laser bidirectionnelle. Cette cavité émet deux peignes optiques partageant même laser de pompe, même milieu à gain et même cavité. leur cohérence mutuelle est donc intrinsèquement élevée, et ils peuvent être utilisés pour la DCS sans stabilisation. Un laser solide titane-saphir (Ti:Sa) est utilisé pour garantir une haute puissance d'émission et un faible bruit d'intensité. De plus, la gamme d'émission du Ti:Sa permet d'atteindre l'UV en une seule étape de doublage de fréquence (SHG), ce qui limite la perte de cohérence. La cavité laser à verrouillage de modes Kerr-lens a été construite avant ce travail. Durant ce travail, les deux peignes optiques ont été caractérisés, en termes de taille de faisceau, durée d'impulsion et forme temporelle, largeur spectrale et différence de fréquence de répétition entre les deux peignes (dfrep). Le lien entre dfrep et les paramètres expérimentaux de la cavité, et avec les autres grandeurs d'émission, a été étudié. Nous avons montré quantitativement que l'origine microscopique de dfrep

peut être expliquée par le self-steepening des impulsions dans le cristal Ti:Sa. Cette cavité a été utilisée pour des mesures DCS IR. Le rapport signal/bruit (SNR) des précédentes expériences de preuve de fonctionnement sur la bande A d'O₂ autour de 760 nm a été doublé, avec une résolution meilleure qu'1 GHz. Cette amélioration du SNR a permis d'observer des formes de raies asymétriques de type Fano sur le spectre O₂. Pour mieux comprendre l'origine de ces formes de raies, une simulation DCS a été développée. Elle a permis de montrer que les formes de raies Fano peuvent être causées par des fluctuations de dfrep. Une preuve de fonctionnement UV-DCS a été réalisée sur des raies atomiques de Cs. Nous avons montré que l'expérience UV résout des raies larges d'un GHz. Pour tester la capacité de l'expérience à détecter des gaz trace atmosphériques, une expérience de spectroscopie de NO₂ a été réalisée. Une signature spectroscopique de NO₂ a été observée sur une gamme spectrale de 3 nm autour de 389 nm. Cette expérience est parmi les premières démonstrations d'UV-DCS permettant de résoudre des raies d'absorption. Sa particularité réside dans l'utilisation d'un laser Ti:Sa, versatile en terme de position et largeur spectrales et puissance d'émission. Pour continuer à améliorer le SNR des résultats spectroscopiques, l'utilisation d'algorithmes post-acquisition et d'une détection synchrone grâce à une horloge adaptative sont envisagées.

Mots-clés : spectroscopie à double peigne de fréquence, laser femtoseconde, spectroscopie dans l'ultraviolet, verrouillage de modes par lentille Kerr,