JOURNAL INTERNATIONAL DE TECHNOLOGIE, DE L'INNOVATION,
DE LA PHYSIQUE, DE L'ENERGIE ET DE L'ENVIRONNEMENT

Caractérisation expérimentale de plasmas induits par impulsion laser en régime de double impulsion

A. Favre, V. Morel, C. Grisolia, A. Bultel



ISSN : 2428-8500

DOI : 10.18145/jitipee.v5i2.224

Le sujet de cet article a été présenté lors du colloque sur les arcs électriques (CAE XIV) les 19 et 20 mars 2019 à Bourges.
L'article publié a fait l'objet d'une expertise indépendante par deux spécialistes du domaine.

Journal International de Technologie, de l'Innovation, de la Physique, de l'Energie et de l'Environnement
ISSN : 2428-8500 *vol. 5, n°2, 5, 2019*
DOI : http://dx.doi.org/10.18145/jitipee.v5i2.224

Caractérisation expérimentale de plasmas induits par impulsion laser en régime de double impulsion

Aurélien Favre[(1)], Vincent Morel[(1)], Christian Grisolia[(2)], Arnaud Bultel[(1)]

[(1)] CORIA UMR 6614, Université de Rouen – Normandie, 76801 Saint-Etienne du Rouvray
[(2)] CEA, IRFM, Site de Cadarache, 13108 Saint-Paul-lez-Durance
aurelien.favre@coria.fr

Résumé *– La spectroscopie optique d'émission sur plasma induit par laser (LIBS, acronyme de Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) est aujourd'hui une puissante méthode d'analyse de composition multi-élémentaire. Ce procédé utilisant une source laser impulsionnelle permet en effet de déterminer une quantité importante d'informations relatives au plasma généré dans l'environnement cible (gaz, liquide ou solide). Néanmoins, cette méthode peut s'avérer insuffisante dans certains cas de figures relatifs par exemple à l'étude de milieux où les espèces sondées sont très minoritaires, à la détection d'éléments dont les transitions sont mal connues ou encore pour la mesure d'espèces dont l'énergie des niveaux hauts des transitions est particulièrement élevée. C'est dans ce contexte qu'utiliser une seconde impulsion laser peut s'avérer intéressant afin d'augmenter de manière significative la température du plasma pour diminuer le seuil de détection. Le présent article explore les modifications des caractéristiques du plasma apportées par l'absorption de cette seconde impulsion.*

Mots clés *: plasma, LIBS, double impulsion, picoseconde, aluminium, tungstène, tokamak, ITER*

DOI : 10.18145/jitipee.v5i2.224

Introduction

Une méthode de caractérisation d'échantillon basée sur l'interaction laser-matière est connue sous le nom de LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) [1]. Elle présente l'avantage d'être non destructive en milieux gazeux et liquide, la recombinaison permettant un retour à l'état initial de l'environnement sondé. En revanche, tel n'est pas le cas pour les cibles solides. En effet, l'interaction mène à l'ablation de l'échantillon. Le taux d'ablation par tir est un paramètre qui est parfaitement contrôlé mais qui conditionne toutefois le niveau de détection de l'échantillon sondé et la résolution spatiale, le signal final étant très dépendant de la masse ablatée donc de la profondeur du cratère formé à la surface de l'échantillon [2].

La durée de trajet des photons émis par la source laser pulsée ainsi que le claquage peuvent sembler quasi instantanés pour l'expérimentateur. Cependant, il convient de décrire chronologiquement les phénomènes physiques qui ont lieu. Le milieu cible est éclairé par un faisceau laser focalisé de type picoseconde dans le cas présent, dont la densité de flux d'énergie est de l'ordre de 10^{13} W m^{-2}. Si ce milieu est diélectrique, des phénomènes d'ionisation multiphotonique produisent les premiers électrons libres qui absorbent ensuite l'énergie de

l'impulsion par Bremsstrahlung inverse [3]. Si le milieu est conducteur, l'absorption de l'énergie de l'impulsion s'effectue directement par ce processus élémentaire. L'augmentation de la température électronique qui en résulte dans les deux cas entraîne l'augmentation du degré d'ionisation par ionisation collisionnelle. Le couplage entre la température électronique et celle des lourds est assuré par collisions élastiques à des niveaux de l'ordre de plusieurs dizaines de milliers de kelvins [4]. L'équilibre thermique est réalisé en raison de la densité et de la vitesse moyenne très élevées des partenaires de collision [5]. Le plasma produit entraîne alors dans les premiers instants des niveaux de pression locaux très importants (plusieurs GPa) [6]. Localement, la différence de pression conduit à une expansion hypersonique au détriment du gaz environnant. Une onde de choc est alors produite et se propage à des vitesses de l'ordre de plusieurs km s^{-1} [7]. L'expansion spatiale hypersonique induit une diminution significative des niveaux de température. De manière plus globale, la durée de vie de l'ensemble du processus observable lors de chaque impulsion est de l'ordre de quelques µs quelle que soit la cible du moment que la fluence seuil de claquage est atteinte [8]. L'évolution temporelle du spectre émis par le plasma est caractérisée par un continuum qui évolue en émission d'origine ionique pour terminer par l'apparition de raies atomiques lors de la recombinaison [9].

Si la dynamique globale en régime simple impulsion est relativement bien connue, nous nous proposons de décrire et d'analyser dans ce papier une première approche expérimentale d'un dispositif double impulsion à deux sources lasers spatialement et temporellement contrôlées. Il est courant de trouver des dispositifs double impulsion générant deux impulsions décalées temporellement par la même source et se propageant selon le même axe optique [10]. Un mauvais contrôle peut alors engendrer une ablation supplémentaire sur échantillon solide qui n'est pas souhaitable dans notre cas. Notre dispositif, fondamentalement différent des montages conventionnels, permet de s'affranchir de ce type de difficulté.

1. Moyens expérimentaux

Nous décrivons dans cette première section les procédures d'obtention d'un dispositif double impulsion. L'enjeu principal des manipulations réalisées est d'atteindre des niveaux de contrôle expérimentaux très élevés dans l'optique de maximiser les gains de signaux potentiels. Les deux principaux points qui conditionnent directement les niveaux de signaux obtenus sont :

- la parfaite concordance des points de focalisation des deux sources laser utilisées (paramètre spatial),
- la gestion du décalage temporel entre le claquage des impulsions de chaque source, l'objectif étant de réussir à optimiser le processus d'absorption de la seconde impulsion par le plasma induit par la première impulsion (paramètre temporel).

Nous exposons dans les lignes qui suivent les moyens employés pour parvenir au meilleur contrôle de ces facteurs spatial et temporel.

Les manipulations sont réalisées sur la plateforme *PLEIADES* (*Plasmas by LaseEr IrrADiations and their Experimental Studies*) exposée en figure 1. Les notations suivantes sont utilisées : λ_i (longueur d'onde de la source *i*), τ_i (durée de l'impulsion de la source *i*), ν_i (fréquence d'émission de la source *i*), E_i (énergie moyenne par impulsion de la source *i*). Bien que la seconde impulsion ne corresponde pas à la sonde des montages pompe-sonde classiques, nous avons néanmoins adopté l'appellation de « sonde » systématiquement dans la suite pour qualifier ce qui est relatif à cette seconde impulsion. Ainsi, l'indice *p* est utilisé pour la *pompe* et l'indice *s* correspond à la *sonde*. La source laser de pompe permettant de produire le plasma est une source EKSPLA PL-2251 ($\lambda_p = 1064$ nm, $\tau_p = 30$ ps, $\nu_p = 10$ Hz, E_p = 15 mJ). La source de sonde est une source QUANTEL Brio Ultra 100 ($\lambda_s = 532$ nm, $\tau_s = 5$ ns, $\nu_s = 20$ Hz, $E_s = 55$ mJ). La valeur de λ_s conditionne l'efficacité d'absorption de la seconde

impulsion par le plasma, nous discutons ce point plus loin. La focalisation du faisceau de pompe se fait avec une lentille convergente de focale $f_p = 100$ mm. Nous focalisons le faisceau de sonde à l'aide d'une lentille de focale $f_s = 150$ mm plus longue. Les chemins optiques des sources de pompe et de sonde sont respectivement représentés en rouge et en vert pour finalement former un plasma très schématiquement cylindrique coloré en jaune sur la figure 1. Le chemin optique d'analyse est représenté en violet et le rayonnement du plasma résultant est focalisé sur la fente d'un spectromètre IsoPlane SCT-320 de Princeton Instruments (type Czerny-Turner, focale $f = 320$ mm, ouverture $f/4{,}6$). Les manipulations présentées sont réalisées avec des réseaux à 600 et 2400 traits.mm^{-1}. Nous utilisons des filtres pour affiner l'analyse spectrale et supprimer par exemple des contributions du second ordre. Les acquisitions sont faites par le biais d'une caméra PI-MAX 2 (dans l'air et sur aluminium) et d'une caméra PI-MAX 4 (sur tungstène). Deux outils sont indispensables pour garantir un contrôle temporel satisfaisant : une photodiode rapide (dans notre cas de type DET10A) permettant un suivi temporel fin du rayonnement émis à l'oscilloscope ainsi qu'un générateur de délais multivoies à courts *jitters* (ici Nucleonics 577).

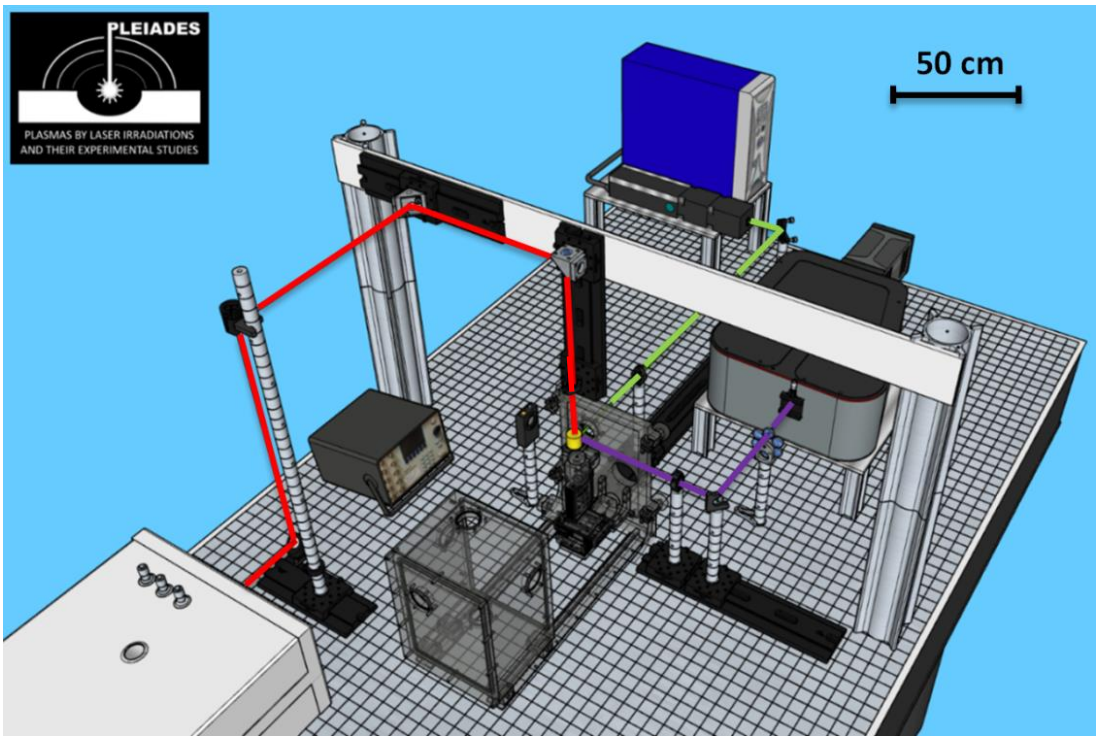


Figure 1 : Schéma à l'échelle de la plateforme *PLEIADES*. *La focalisation du faisceau de pompe (en rouge) conduit à la production d'un plasma (en jaune) qui est réchauffé par une seconde impulsion (en vert). L'analyse du rayonnement résultant est faite selon l'axe optique en direction du spectromètre (en violet).*

La grande majorité des travaux expérimentaux que nous avons réalisés repose sur la synchronisation entre les deux sources. Notre configuration de déclenchement (*trigging*) est pensée de telle sorte que la synchronisation soit effective une impulsion sur deux (la source de sonde étant cadencée à 20 Hz alors que la fréquence de la source de pompe est deux fois plus faible). Le facteur primordial est de respecter une chronologie cohérente, à savoir d'envoyer une consigne de tir à la source de sonde ultérieurement à celle de pompe. Les meilleures

configurations obtenues lors de nos tests correspondent à des impulsions temporellement décalées de Δ_{p-s} = 150 ns. Notons qu'un claquage violent reste audible dans la gamme $\Delta_{p-s} \in [150 ; 450]$ ns. Nous verrons en effet qu'en termes d'intensité spectrale, il existe un décalage préférentiel.

2. Tirs préliminaires réalisés dans l'air

Les premières quantifications de l'apport en signal sont réalisées sur l'air ambiant dans les conditions normales. Rappelons que l'air est constitué à 78,08 % d'azote moléculaire (N_2), à 20,95 % d'oxygène moléculaire (O_2) et d'une fraction inférieure à 1 % de gaz rares (Ar, Ne, Kr, Xe, He). L'air testé ici est caractérisé par un certain degré d'humidité favorisant la détection d'oxygène et d'hydrogène. La présence de poussières résiduelles au point de focalisation peut engendrer la détection de composés carbonés. Etant données les énergies des niveaux de départ des transitions et l'énergie déposée dans le plasma, il est difficile de détecter des raies ioniques (d'azote et *a fortiori* d'oxygène) en régime simple impulsion. Notre choix s'est donc orienté vers le suivi du triplet de l'oxygène centré en $\lambda_O = 777{,}4166$ nm dont les caractéristiques de transition sont bien connues (voir tableau 1).

Elément	λ (nm)	A_{ki} (s^{-1})	g_i - g_k	E_i (eV) - E_k (eV)
O I	777,1944	3,69e+07	5 – 7	9,14609 – 10,74093
O I	777,4166	3,69e+07	5 – 5	9,14609 – 10,74048
O I	777,5388	3,69e+07	5 – 3	9,14609 – 10,74023

Tableau 1. Données spectrales concernant le rayonnement de l'oxygène autour de λ_O [11].

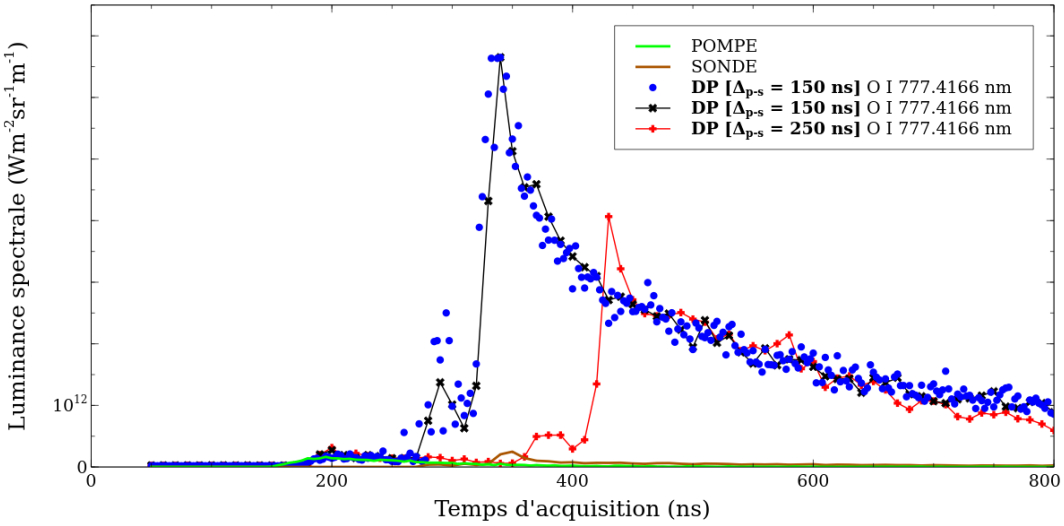


Figure 2 : Evolution temporelle de la luminance spectrale du sommet de raie observée à λ_O selon différentes configurations expérimentales.
«*DP* » signifie « *double pulse* », il s'agit de signaux obtenus en régime double impulsion.

Le suivi temporel de la transition λ_O représentative du triplet de l'oxygène selon la configuration expérimentale adoptée est illustré par la figure 2. Notant la luminance spectrale L_λ, nous constatons qu'à tout instant :

$$L_{\lambda_O}{}^{p+s} > L_{\lambda_O}{}^{s} > L_{\lambda_O}{}^{p}$$

D'autre part, les résultats obtenus vérifient également la seconde relation d'ordre :

$$L_{\lambda_O}{}^{p+s}{}_{\Delta_{p-s}\,=\,150\ ns} > L_{\lambda_O}{}^{p+s}{}_{\Delta_{p-s}\,=\,250\ ns}$$

Nous démontrons ici qu'un second apport d'énergie vient très nettement augmenter la luminance spectrale du plasma et qu'il existe de plus un délai optimal pour lequel ce phénomène est observé. En effet, un facteur 50 entre les niveaux de signaux maximums en configuration simple impulsion (à $t = t_0 = 200$ ns) et double impulsion (à $t = t_0 + \Delta_{p-s} = 350$ ns) est relevé. Enfin, nous constatons que pour des décalages supérieurs à 150 ns, les signaux observés sont systématiquement inférieurs à ce qui peut être mesuré pour $\Delta_{p-s} = 150$ ns.

3. Essais sur cibles solides

L'étude de cibles solides constitue la principale motivation des essais en configuration double impulsion. Nous nous proposons de présenter dans un premier temps des résultats sur une cible dont le rayonnement est relativement bien connu (l'aluminium), puis dans un second temps ceux obtenus sur une cible dont les spectres sont beaucoup plus riches en termes de raies d'émission (le tungstène). Ces spectres sont de plus difficiles à interpréter étant donnée la faible proportion de transitions décrites dans la base de données du NIST (environ 7 % pour W I comme pour W II [11]).

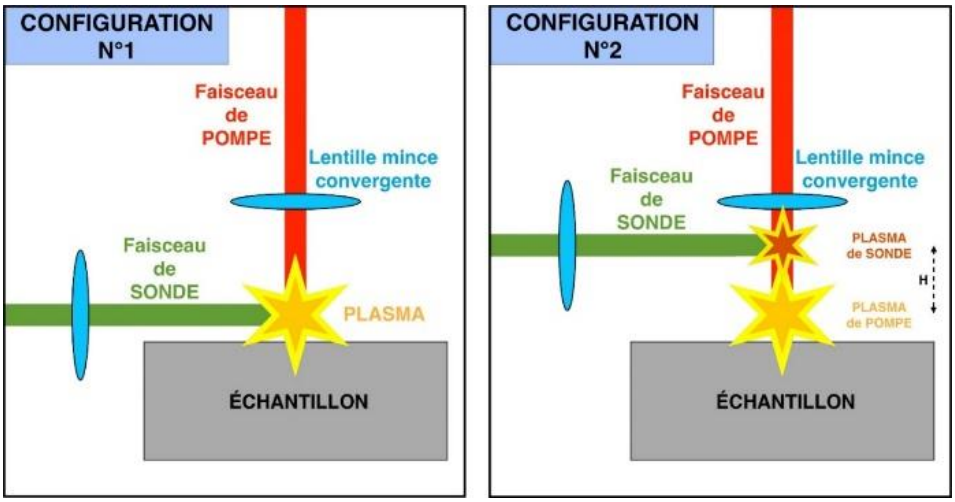


Figure 3 : Schéma des configurations spatiales testées. La configuration n°1 est dite « idéale », les deux points de focalisation sont confondus (décalage spatial H entre eux nul). La configuration n°2 est une configuration selon laquelle le faisceau de sonde est focalisé à une hauteur H au-dessus du plasma de pompe (l'alignement transverse reste inchangé).

Pour les cibles solides, nous nous intéressons également à l'impact de la coïncidence des deux points de focalisation sur les signaux observés (voir figure 3).

3.1. Echantillon d'aluminium massif

Le choix du domaine spectral est guidé par un critère restrictif : être en mesure d'observer au moins une transition d'origine atomique et une transition d'origine ionique. L'intervalle le plus riche retenu est décrit dans le tableau 2. On y note la présence du doublet de résonance (Al I 394,4006 nm et Al I 396,1520 nm). Les transitions ioniques voisines sont nombreuses. Nous nous intéressons plus particulièrement à celle possédant la probabilité d'émission spontanée la plus importante : Al II 399,5837 nm. Nous présentons en figure 4 une suite temporelle de clichés obtenus sur l'intégralité du photodétecteur lorsque $\Delta_{p-s} = 150$ ns. Chronologiquement, rien n'est observé à t = 50 ns (aucune impulsion n'est encore émise), le plasma de pompe devient perceptible pour t > 200 ns. A partir de t > 300 ns, l'influence de la seconde impulsion devient alors observable à une hauteur H au-dessus du plasma de pompe. Nous remarquons notamment que la dynamique d'extinction des raies ioniques au profit du rayonnement atomique est caractéristique de la recombinaison. D'autre part, l'intérêt de la seconde impulsion est très net : elle permet un regain en signal des transitions atomiques aux temps longs.

L'approche qualitative de l'imagerie spectrale n'est pas suffisante pour décrire finement dans le temps les processus qui ont lieu. La figure 5 présente donc un suivi temporel détaillé des transitions observées en figure 4. Nous précisons que les signaux présentés sont bruts d'acquisition. Cela signifie qu'une fraction de la luminance spectrale mesurée est due à la contribution du *continuum*.

Elément	λ (nm)	A_{ki} (s^{-1})	g_i - g_k	E_i (eV) - E_k (eV)
Al I	394,4006	4,99e+7	2 – 2	0,00000 – 3,14272
Al I	396,1520	9,85e+7	4 – 2	0,01389 – 3,14272
Al II	399,5837	7,05e+6	7 – 9	15,06203 – 18,16399
Al II	399,6074	7,85e+5	7 – 7	15,06203 – 18,16381
Al II	399,6141	6,26e+6	5 – 7	15,06209 – 18,16381
Al II	399,6248	3,10e+4	7 – 5	15,06203 – 18,16367
Al II	399,6315	1,10e+6	5 – 5	15,06209 – 18,16367
Al II	399,6368	5,91e+6	3 – 5	15,06213 – 18,16367

Tableau 2. Données spectrales concernant le rayonnement de l'aluminium sur la gamme [394,4 ; 399,7] nm [11].

Pour t > 250 ns, nous remarquons de manière systématique que

$$\left(\frac{\partial L_\lambda}{\partial t} < 0\right)_{\lambda=399{,}5837\ \text{nm}} \Rightarrow \left(\frac{\partial L_\lambda}{\partial t} > 0\right)_{\substack{\lambda=394{,}4006\ \text{nm} \\ \lambda=396{,}1520\ \text{nm}}}$$

Après ionisation de l'aluminium neutre, la relaxation du plasma entraîne une diminution importante de la température électronique. L'agitation thermique diminue de telle sorte que les électrons réintègrent le cortège électronique des ions Al^+ pour se recombiner et former à nouveau Al.

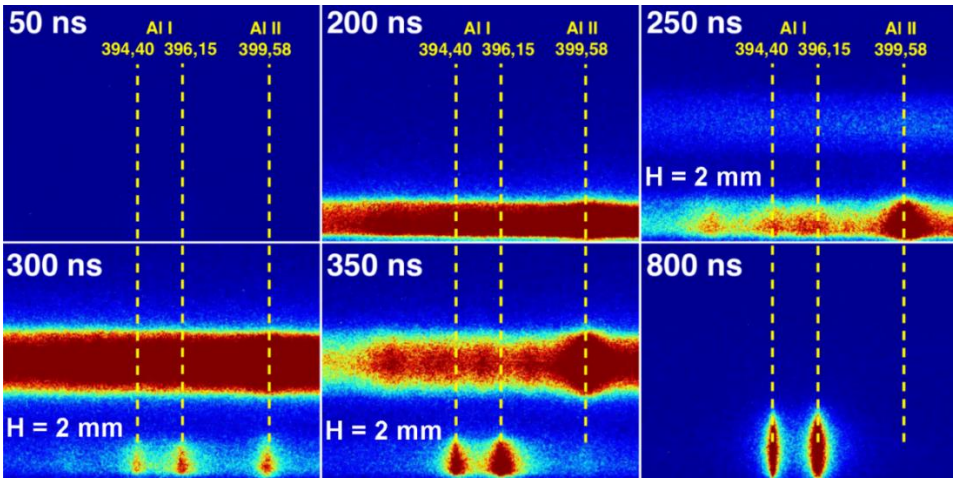


Figure 4 : Imagerie spectrale à différents instants des principales transitions de l'aluminium exposées dans le tableau 2 pour un décalage temporel $\Delta_{p-s} = 150$ ns entre les deux impulsions.

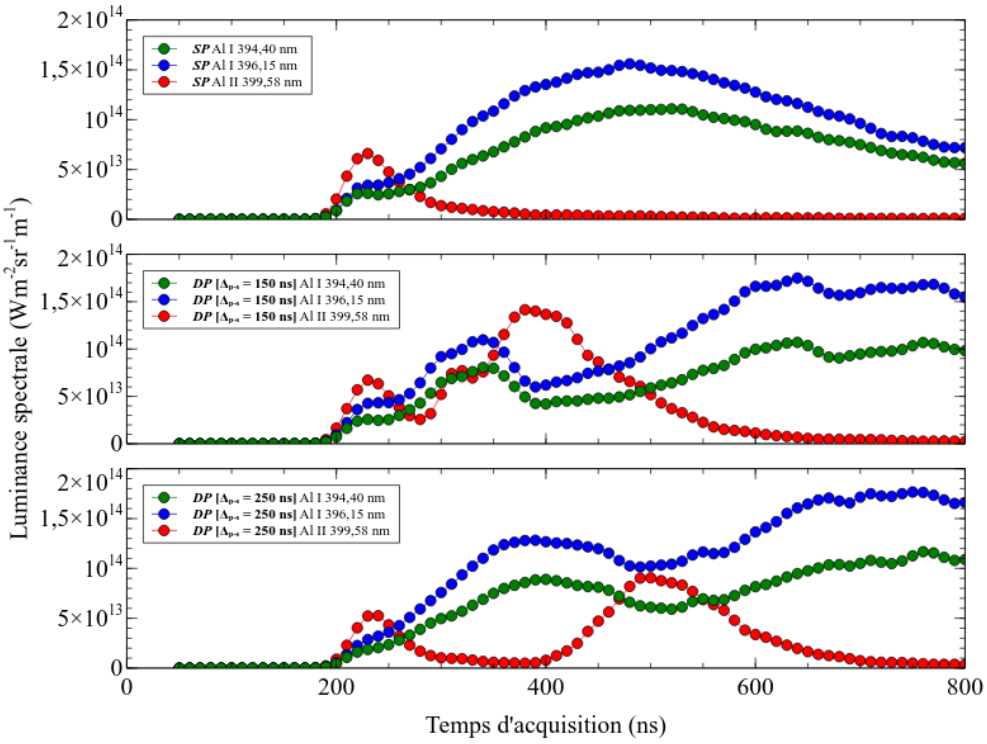


Figure 5 : Evolutions temporelles de la luminance spectrale des transitions d'intérêt de l'aluminium. Les trois cadres exposent de haut en bas, un suivi en unique impulsion (*SP*) de pompe, en double impulsion (*DP*) avec un décalage entre les deux impulsions de $\Delta_{p-s} = 150$ ns pour le cadre intermédiaire et $\Delta_{p-s} = 250$ ns pour le dernier cadre. «*SP* » signifie « *simple pulse* », il s'agit de signaux obtenus en régime simple impulsion.

La seconde impulsion joue un rôle crucial dans le sens où elle vient stopper cette relaxation et initie une brusque re-ionisation au sein du plasma en cours de recombinaison. Ceci induit une hausse très nette de l'émission spectrale de la raie ionique puis des raies atomiques après reprise de la phase de recombinaison. Les effets sont imputables aux dynamiques de la densité et de la température électroniques. La figure 5 souligne également que Δ_{p-s} est un paramètre majeur de la dynamique puisque le processus se fait de manière plus ou moins efficace selon le décalage temporel imposé entre les deux impulsions. Ceci est directement lié au fait que le processus d'absorption de l'énergie par les électrons est logiquement très dépendant de la densité électronique. Nous favorisons l'effet du *Bremsstrahlung inverse* [12] en déposant l'énergie laser de la seconde impulsion au moment où la densité électronique du plasma de pompe est maximale.

2.1. Echantillon de tungstène massif

Un domaine spectral où, dans la mesure du possible, des transitions d'origine atomiques et ioniques sont observables a été recherché. L'ultraviolet (UV) est le domaine spectral le plus riche qu'il est possible de trouver pour le tungstène. Les conditions d'observation y sont donc les plus favorables (voir tableau 3).

Elément	$\boldsymbol{\lambda}$ **(nm)**	$\mathbf{A_{ki}}$ $\mathbf{(s^{-1})}$	$\mathbf{g_i - g_k}$	$\mathbf{E_i}$ **(eV) -** $\mathbf{E_k}$ **(eV)**
W I	246,4305	4,3e+7	5 – 3	0,41231 – 5,44199
W I	246,6848	6,5e+7	5 – 7	0,41231 – 5,43681
W I	247,4149	1,2e+8	9 – 9	0,77109 – 5,78077
W II	247,7795	2,8e+7	10 – 10	0,76214 – 5,76444
W I	248,0130	4,7e+7	3 – 5	0,20709 – 5,20469
W I	248,1440	1,5e+8	9 – 11	0,77110 – 5,76606
W II	248,8769	1,3e+8	6 – 4	0,92000 – 5,90024
W II	248,9231	6,9e+7	8 – 8	0,58474 – 5,56406
W II	248,9895	7,1e+6	2 – 4	1,09512 – 6,07311
W I	249,5264	4,7e+7	3 – 5	0,20709 – 5,17437
W I	250,3046	-	11 - 11	1,86843 – 6,82027

Tableau 3. Données spectrales concernant le rayonnement du tungstène [11].

Nous présentons en figure 6 des clichés d'imagerie spectrale à différents instants pour deux décalages spatiaux (H = 1 mm et H = 2 mm) des points de focalisation. Précisons que les manipulations présentées pour le tungstène dans l'UV sont réalisées avec $\Delta_{p-s} = 350$ ns afin de confirmer l'influence du décalage temporel entre les deux impulsions sur les signaux obtenus. Le choix d'une caméra plus résolue adaptée à cet intervalle spectral permet de mettre en évidence une zone de recouvrement de manière très nette lorsque H ≠ 0 mm. Ces clichés sont centrés sur la transition W II 248,8769 nm, caractérisée par un regain d'intensité après la seconde impulsion ainsi qu'un rayonnement persistant aux temps longs. Nous constatons, outre

l'intensité spectrale nettement augmentée, un élargissement accru par la seconde impulsion. Ceci confirme bien qu'une seconde impulsion permet de ré-augmenter la densité électronique de manière significative. Une mesure directe de l'élargissement à mi-hauteur $\Delta\lambda_{1/2}$ (directement proportionnel au demi élargissement de référence Stark $\omega_S = f(T_e)$ et à la densité électronique n_e lorsque cette dernière est suffisamment importante [13]) n'est possible qu'en cas de transition parfaitement isolée, sans le moindre recouvrement. La transition W I 250,3046 nm présente ces conditions. Par son élargissement, nous avons donc déduit la densité électronique par des corrélations $\Delta\lambda_{1/2} = 2\, n_e\, \omega_s$ standard [14] dont l'évolution temporelle est présentée en figure 7. Nous constatons l'augmentation de n_e pendant la relaxation du plasma lorsque la seconde impulsion est absorbée. Ceci résulte du processus élémentaire mentionné dans la section 3.1 (*Bremsstrahlung inverse*) qui a pour effet d'augmenter la température électronique donc la densité électronique par les collisions plus énergétiques qui en résultent. Le résultat fait office de validation quantitative des hypothèses de regain en densité électronique faites précédemment.

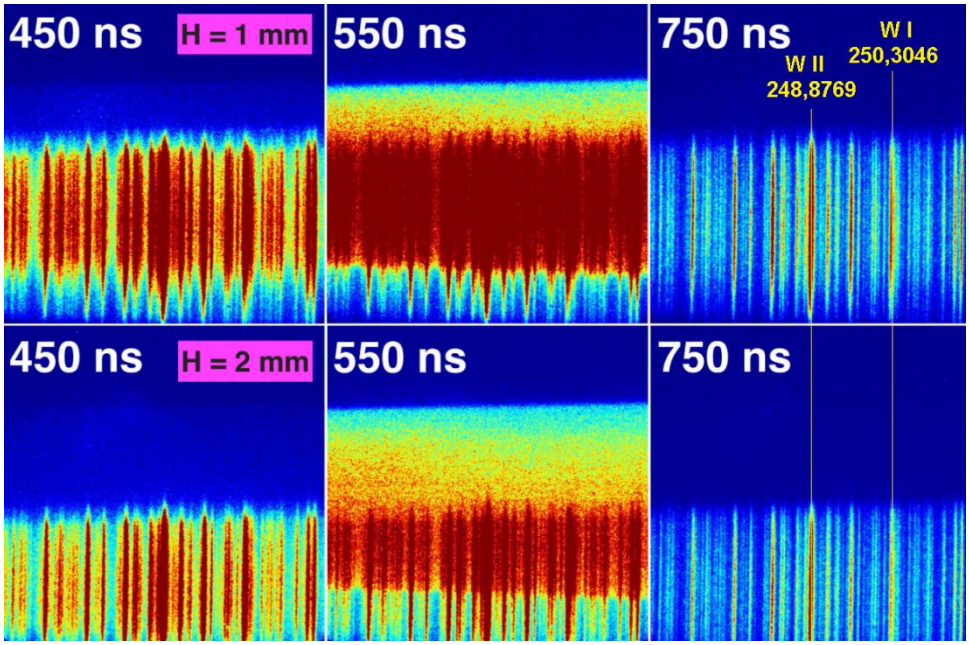


Figure 6 : Imagerie spectrale à différents instants des transitions du tungstène exposées dans le tableau 3 pour un décalage temporel $\Delta_{p-s} = 350$ ns entre les impulsions de pompe (E_p = 15 mJ) et de sonde (E_s = 55 mJ).

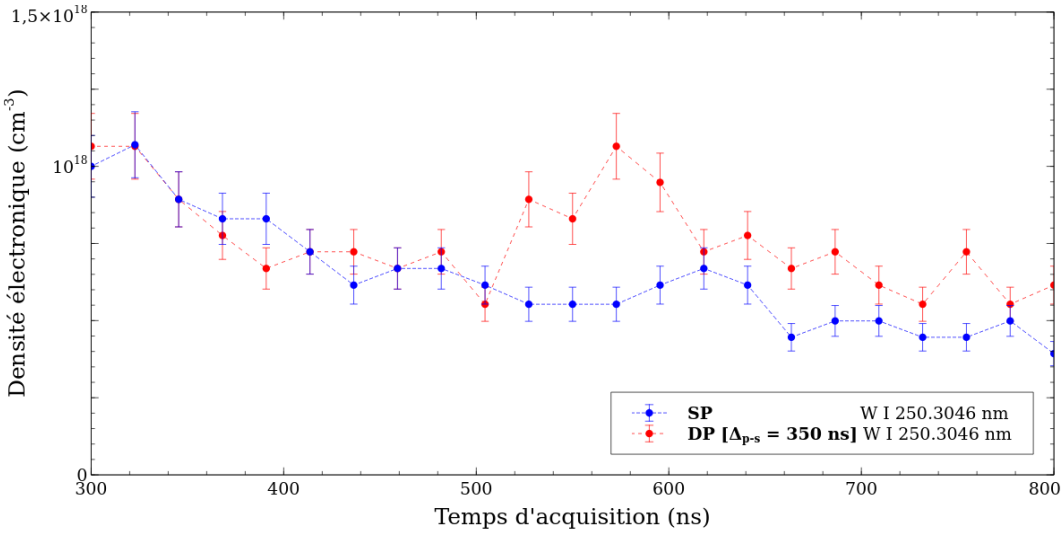


Figure 7 : Evolutions de la densité électronique dans le cas d'une simple impulsion (en bleu) ou en double impulsion pour $\Delta_{p-s} = 350$ ns (en rouge) mesurées à partir de l'étude de l'élargissement Stark de la raie W I à 250,3046 nm pour un décalage spatial $H = 0$ mm.

Conclusion

Nous avons montré qu'une seconde impulsion judicieusement synchronisée permettait d'augmenter de manière significative la quantité de signal émis par un plasma d'aluminium ou de tungstène induit par une première impulsion. Nos moyens d'analyse ont permis de montrer qualitativement et quantitativement que cette seconde impulsion modifie de manière notable les caractéristiques du plasma initial (densité électronique). Des questions restent ouvertes quant au choix des sources et à la longueur d'onde d'émission de celles-ci. Nous gagnerions par exemple à réchauffer le plasma de pompe avec un faisceau dans l'infrarouge étant donné que la section efficace d'absorption du *Bremsstrahlung Inverse* est proportionnelle à $\lambda_s{}^3$. Des essais sur cibles ensemencées en éléments légers sont prévus dans l'optique de mettre en évidence qu'un tel dispositif peut permettre des détections très difficiles voire impossibles en simple impulsion.

Ces travaux préliminaires s'inscrivent ainsi dans une vision beaucoup plus large visant à terme à augmenter de manière significative les capacités de détection. La littérature ne reporte que très peu de mesures probantes d'éléments légers dans des matrices lourdes. Nous pensons notamment à la détection d'isotopes de l'hydrogène dans des échantillons de tungstène (parois de tokamak deutérées et/ou tritiées par exemple). Ceci est à l'heure actuelle extrêmement délicat à mettre en place dans le sens où l'implantation d'éléments ne se fait que sur quelques micromètres de profondeur au sein de l'échantillon. Ces caractéristiques constituent une contrainte expérimentale significative puisque le taux d'ablation par tir doit rester faible et qu'en conséquence les densités de flux laser doivent rester modérées. Les conditions d'éclairement de la cible (focalisation et énergie du faisceau) doivent donc être choisies avec soin. Il est important de garder à l'esprit que les données sur le tungstène sont très peu fournies et qu'il s'agit d'un élément dont le spectre est très riche, notamment là où les transitions de la série de Balmer (synonymes de détection de l'hydrogène ou de ses isotopes) sont observées. Ces travaux font donc office de prémices à des détections beaucoup plus fines que celles aujourd'hui publiées.

Remerciements

Nous tenons à remercier l'AAE (Association Arc Electrique) pour son soutien financier ainsi que l'Agence Nationale de la Recherche (ANR), au travers du programme «Investissement d'Avenir» (ANR-10-LABX-09-01), LabEx EMC 3, projet PICOLIBS. We also thank the TRANSAT project funded by the Euratom Research and Training Programme 2014-2018 under grant agreement No 754586. Finally, this work has been carried out within the framework of the French Federation for Magnetic Fusion Studies (FR-FCM) and of the Eurofusion consortium, and has received funding from the Euratom research and training programme 2014-2018 and 2019-2020 under grant agreement No 633053. The views and opinions expressed herein do not necessarily reflect those of the European Commission.

Références

[1] A.W. Miziolek, V. Palleschi, I. Schechter (2006) Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) Fundamentals and Applications, Cambridge University Press.

[2] A. Semerok, C. Dutouquet (2004) *Ultrashort double pulse laser ablation of metals*, Thin Solid Films 453-454 : 501-505.
Doi : 10.1016/j.tsf.2003.11.115

[3] D.I. Rosen, D.E. Hastings, G.M. Weyl (1982) *Coupling of pulsed 0.35 µm laser radiation to titanium alloys*, J. Appl. Phys. 53 8, 5882-5890.
Doi : 10.1063/1.331429

[4] V. Morel, B. Pérès, A. Bultel, A. Hideur, C. Grisolia (2016) *Picosecond LIBS diagnostics for tokamak in situ plasma facing materials chemical analysis*, Phys. Scr. T167 : 014016.
Doi :10.1088/0031-8949/T167/1/014016

[5] J. Hermann, C. Vivien, A.P. Carricato, C. Boulmer-Leborgne (1998) *A spectroscopic study of laser ablation plasma from Ti, Al and C*, Appl. Surf. Sci. 127-129, 645-649.
Doi : 10.1016/S0169-4332(97)00719-8

[6] V. Morel, A. Bultel, J. Annaloro, C. Chambrelan, G. Edouard, C. Grisolia (2015) *Dynamics of a femtosecond/picosecond laser-induced aluminum plasma out of thermodynamic equilibrium in a nitrogen background gas*, Spectrochim. Acta Part B 103-104 : 112-123.
Doi :10.1016/j.sab.2014.11.014

[7] M. Boueri, M. Baudelet, J. Yu, X. Mao, S.S. Mao, R. Russo (2009) *Early stage expansion and time-resolved spectral emission of laser-induced plasma from polymer*, Appl. Surf. Sci. 255, 9566-9571.
Doi : 10.1016/j.apsusc.2009.04.088

[8] D.J. Hwang, H. Jeon, C.P. Grigoropoulos, J. Yoo, R.E. Russo (2008) *Laser-ablation-induced spectral plasma characteristics in optical far- and near fields*, J. Appl. Phys. 104, 013110.
Doi : 10.1063/1.2939587

[9] J.-B. Sirven, B. Bousquet, L. Canioni, L. Sarger (2004) *Time-resolved and time-integrated single-shot laser-induced plasma experiments using nanosecond and femtosecond laser pulses*, Spectrochim. Acta Part B 59, 1033-1039.
Doi : 10.1016/j.sab.2004.05.009

[10] J. Scaffidi, W. Pearman, J. C. Carter, S. M. Angel (2006) *Observations in collinear femtosecond–nanosecond dual- pulse laser-induced breakdown spectroscopy*, Appl. Spectrosc., 60, 65.
Doi : 10.1366/000370206775382857

[11] https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html

[12] V. Morel, A. Bultel (2014) *Theoretical study of the formation mechanism of laser-induced aluminum plasmas using Nd:YAG fundamental, second or third harmonics*, Spectrochim. Acta Part B 94-95 : 63-70.
Doi :10.1016/j.sab.2014.03.003

[13] H.R. Griem (1974) Spectral line broadening by plasmas, Academic Press

[14] N. Farid, C. Li, H. Wang, H. Ding (2013) *Laser-induced breakdown spectroscopic characterization of tungsten plasma using the first, second and third harmonics of an Nd:YAG laser*, J. Nucl. Mater. 433: 80-85.
Doi : 10.1016/j.jnucmat.2012.09.002