

Ю.Н. Пономарев

НЕЛИНЕЙНЫЕ СПЕКТРОСКОПИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В МОЛЕКУЛЯРНЫХ ГАЗАХ И ИХ ВЛИЯНИЕ НА РАСПРОСТРАНЕНИЕ ЛАЗЕРНЫХ ПУЧКОВ В АТМОСФЕРЕ

Рассмотрены результаты исследований низкопороговых нелинейных спектроскопических эффектов в атмосферных газах: спектроскопический эффект насыщения, эффект просветления в крыле поглощения, влияние интенсивного лазерного излучения на колебательную релаксацию и стимулированное двухчастотным излучением активное комбинационное рассеяние.

Обсуждаются вопросы учета и практического использования этих эффектов в задачах переноса интенсивного оптического излучения и дистанционного зондирования газового и аэрозольного состава атмосферы.

Введение

Интенсивное лазерное излучение, распространяющееся в молекулярной газовой среде или атмосфере, может значительно изменить оптические характеристики среды (например, коэффициент поглощения и показатель преломления) в канале распространения. Изменение последних, в свою очередь, определяет изменение энергетических, спектральных и пространственных характеристик лазерных пучков в процессе самовоздействия. Даже сравнительно слабые нелинейности оптических характеристик молекулярной атмосферы могут повлиять на характеристики интенсивного лазерного излучения на больших дистанциях. Нелинейные эффекты и их последствия выражены заметнее в резонансных условиях, когда частота оптического излучения близка к одной из собственных резонансных частот молекул газовой среды.

В настоящей статье обсуждаются ряд результатов исследования нелинейных спектроскопических эффектов в атмосферных газах, вопросы учета и практического использования этих эффектов в задачах переноса интенсивного оптического излучения и дистанционного зондирования газового и аэрозольного состава атмосферы. Из совокупности наиболее изученных нелинейных эффектов, сопровождающих взаимодействие интенсивного непрерывного и импульсного излучения с молекулярными газами, таких как спектроскопический эффект насыщения [1] и динамический эффект Штарка [2] на колебательно-вращательных переходах, вынужденное и активно стимулированное комбинационное рассеяние [3], воздействие поля лазерного излучения на потенциал межмолекулярного взаимодействия и релаксацию [4, 5], оптический пробой в газе [6] и ряд других [7], рассматриваются лишь те эффекты, для которых в условиях реальной атмосферы пороговые интенсивности намного меньше, чем пороговая интенсивность оптического пробоя воздуха. К их числу относятся: спектроскопический эффект насыщения, эффект просветления в крыльях линий поглощения; изменение времени колебательной релаксации при возрастании интенсивности оптического излучения, возбуждающего колебательные переходы в молекулах, и стимулированное двухчастотным излучением активное комбинационное рассеяние на вращательных и колебательно-вращательных переходах.

1. Исследования насыщения резонансного поглощения на колебательно-вращательных переходах молекул атмосферы

Спектроскопический эффект насыщения приводит к уменьшению коэффициента резонансного поглощения и, соответственно, величины показателя преломления в области аномальной дисперсии при возрастании интенсивности лазерного излучения. Пороговая интенсивность эффекта (I_s) определяется характеристиками резонансного перехода, а именно, значениями сечения резонансного поглощения σ и временами релаксации возбужденного колебательно-вращательного состояния τ_R и τ_V , где τ_R – время вращательной релаксации, а τ_V – время колебательной релаксации.

При выполнении условия $\tau_R \ll \tau < \tau_V$, где τ – длительность моноимпульса лазерного излучения, взаимодействующего с колебательно-вращательным переходом, типичного для условий

приземной атмосферы [7], зависимость коэффициента поглощения κ от интенсивности I для прямоугольного лазерного импульса ($I = \text{const}$, при $0 \leq t \leq \tau$; $I = 0$, при $t > 0$) имеет вид [8]

$$\kappa(I) = \kappa_0 \left\{ \frac{2\sigma I - \delta_2}{\delta_1 - \delta_2} e^{-\delta_1 t} + \frac{\delta_1 - 2\sigma I}{\delta_1 - \delta_2} e^{-\delta_2 t} \right\}, \quad (1)$$

где

$$\delta_{1,2} = \frac{1}{2} \left(2\sigma I + \frac{1}{\tau_R} \right) \pm \left\{ \frac{1}{4} \left(2\sigma I + \frac{1}{\tau_R} \right)^2 - \frac{2q\sigma I}{\tau_R} \right\}^{1/2}; \quad (2)$$

σ – сечение резонансного поглощения, см^2 ; I – интенсивность излучения, $\text{фот}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$; q – доля молекул на вращательных подуровнях, взаимодействующих с излучением (для поглощательных КВ-переходов изменение вращательного квантового числа $\Delta J = 1$, и можно q считать приблизительно одинаковым для нижнего и верхнего колебательных состояний в молекулах с вращательной постоянной B_0 , много меньшей, чем энергия теплового кванта, т.е. для молекул типа CO_2 , SO_2 , NO_2 и др.). Значения параметров σ и τ_R для стандартных атмосферных условий варьируются в пределах: $10^{-17} \text{ см}^2 \geq \sigma \geq 10^{-23} \text{ см}^2$; $\tau_R \sim (3 \div 10) \cdot 10^{-10} \text{ с} \cdot \text{атм}$ [7]. Параметр q соответствует отношению заселенности уровня с заданным значением вращательного квантового числа к полному числу молекул в данном колебательном состоянии ($q < 1$). Параметр насыщения I_s (или E_s), характеризующий значение интенсивности (или энергии) импульса излучения, при которой коэффициент поглощения уменьшается в 2 раза, также варьируется в широких пределах: от сотен $\text{кВт}/\text{см}^2$ до сотен $\text{МВт}/\text{см}^2$, в зависимости от интенсивности линии резонансного поглощения.

Экспериментальные данные по эффекту насыщения поглощения на колебательно-вращательных переходах основных молекулярных газов атмосферы были получены в ряде работ [7, 9–11] методом оптико-акустической лазерной спектроскопии, который позволяет определять интенсивность насыщения I_s [10] при квазистационарном взаимодействии излучения с поглощающим газом или энергию насыщения E_s [9] в случае поглощения короткого импульса с длительностью $\tau \ll \tau_R$. Измерения эффекта насыщения на колебательно-вращательных переходах в CO_2 и H_2O выполнены оптико-акустическим методом в работах [11, 12] с импульсными CO_2 -лазером и лазером на рубине; количественные результаты этих измерений представлены в таблице.

Зависимость коэффициента поглощения в центре линий CO_2 и H_2O в атмосферном воздухе от интенсивности лазерного излучения

Лазер, длина волны, мкм длительность импульса, нс	I , $\text{МВт}/\text{см}^2$	Газ	$P_{\text{газ}},$ Торр	$\kappa(I)/\kappa_0$
Рубин; 0,69, 50	$5 \pm 0,5$ $35 \pm 3,5$	H_2O – воздух	$P_{\text{общ}} = 750$ $P_{\text{H}_2\text{O}} = 10$	$1,0 \pm 0,1$ $0,8 \pm 0,1$
	$5 \pm 0,5$ $35 \pm 3,5$		$P_{\text{общ}} = 270$ $P_{\text{H}_2\text{O}} = 3,0$	$1,0 \pm 0,1$ $0,6 \pm 0,1$
CO_2 10,6 (Р20) 300	$0,15 \pm 0,02$ $1,80 \pm 0,15$	CO_2 – воздух	$P_{\text{общ}} = 98$ $P_{\text{CO}_2} = 3,0$	$1,0 \pm 0,05$ $0,4 \pm 0,05$

Для излучения импульсных CO_2 -лазеров с интенсивностью в импульсе $\geq 1 \text{ МВт}/\text{см}^2$ эффект насыщения в линиях поглощения атмосферного CO_2 должен учитываться в задачах распространения, особенно для пучков с неоднородным распределением интенсивности в поперечном сечении пучка.

2. Действие интенсивного излучения на потенциал межмолекулярного взаимодействия и колебательную релаксацию в газе

Результаты, характеризующие воздействие интенсивного лазерного излучения на потенциал межмолекулярного взаимодействия (он определяет поглощение в далеких крыльях спек-

тральных линий) и колебательную релаксацию в газах, описаны в [4, 5, 13]. В [4] показано, что в сильном поле излучения CO₂-лазера классический потенциал взаимодействия молекулы H₂O с партнером по столкновению

$$V(R) \simeq V_0(R) (1 - bI), \quad (3)$$

где R – расстояние между взаимодействующими молекулами; I – интенсивность излучения, а параметр b характеризует пороговое значение интенсивности, при которой начинается уменьшение $V(R)$, и связанное с ним уменьшение коэффициента поглощения в крыле линии $\chi_k(I)$ [4], а также уменьшение вероятности колебательно-поступательной релаксации w_{VT} , определяемой $V(R)$ [4, 13, 14].

Эта ситуация противоположна случаю резонансного поглощения интенсивного излучения на колебательно-вращательном переходе, когда коэффициент поглощения χ уменьшается с ростом I из-за эффекта насыщения, а w_{VT} возрастает из-за нагрева газа и включения дополнительных каналов релаксации при заселении верхнего колебательно-вращательного состояния до величины, значительно превосходящей равновесное значение [3].

Результаты экспериментов по определению вида зависимости времени колебательно-поступательной релаксации τ_{VT} от интенсивности излучения CO₂ лазера для молекул CO₂ (резонансное возбуждение) и H₂O (нерезонансное возбуждение в далеком крыле линии) представлены на рис. 1.

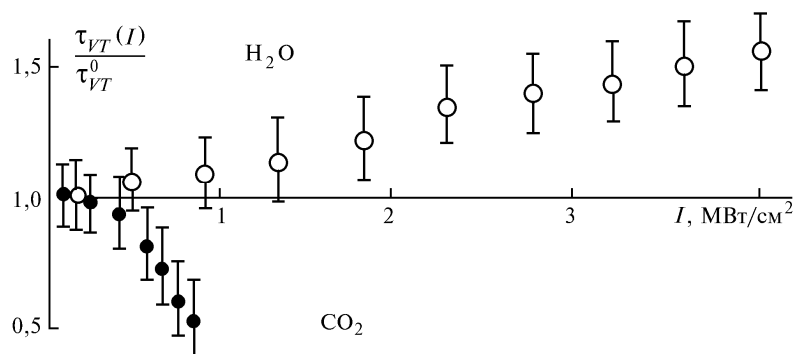


Рис. 1. Зависимость времени колебательно-поступательной релаксации в H₂O и CO₂ от интенсивности возбуждающего излучения CO₂-лазера

Для резонансного возбуждения колебательно-вращательного перехода в молекуле CO₂ излучением CO₂-лазера при $I \geq 0,4$ МВт/см² отношение $\tau_{VT}(I)/\tau_{VT}^0$, где τ_{VT}^0 – значение времени VT-релаксации в слабом световом поле, уменьшается, т.е. рост интенсивности в случае резонансного возбуждения CO₂ приводит к ускорению релаксации, что соответствует выводам [3].

При возбуждении молекул H₂O тем же излучением вдали от резонанса зависимость $\tau_{VT}(I)/\tau_{VT}^0$ имеет обратный ход, она растет, а значит, τ_{VT} увеличивается, т.к. потенциал межмолекулярного взаимодействия, определяющий эффективность столкновения молекул, уменьшается [4].

Отметим, что характерные значения интенсивности, при которых отклонения $\tau_{VT}(I)/\tau_{VT}^0$ от единицы становятся заметными, соответствуют интенсивности насыщения ($I_s \sim 0,25 \div 0,35$ МВт/см²) для поглощения в CO₂ [11] или пороговой интенсивности эффекта просветления крыла линии H₂O ($I_k \sim 2-3$ МВт/см² [4]).

Наличие двух типов зависимости τ_{VT} от I в канале атмосферного распространения интенсивного пучка CO₂-лазера, обусловленных поглощением излучения двумя основными газовыми компонентами атмосферы, может привести к сложной кинетике тепловыделения и нелинейной рефракции вдоль трассы распространения. Вопрос о самовоздействии пучков в такой ситуации до сих пор не рассматривался.

Перенос энергии импульсного излучения CO₂-лазера через атмосферу с учетом нелинейной зависимости коэффициента резонансного поглощения CO₂ и континуального поглощения H₂O рассматривается в [1], где показано, что отношение пропускания интенсивного излучения к пропусканию слабого излучения CO₂-лазера на трассах длиной до 10 км может достигать

величины $1,2\div 3$ в зависимости от типа трассы, угловой расходимости и начальной интенсивности пучка (рис. 2).

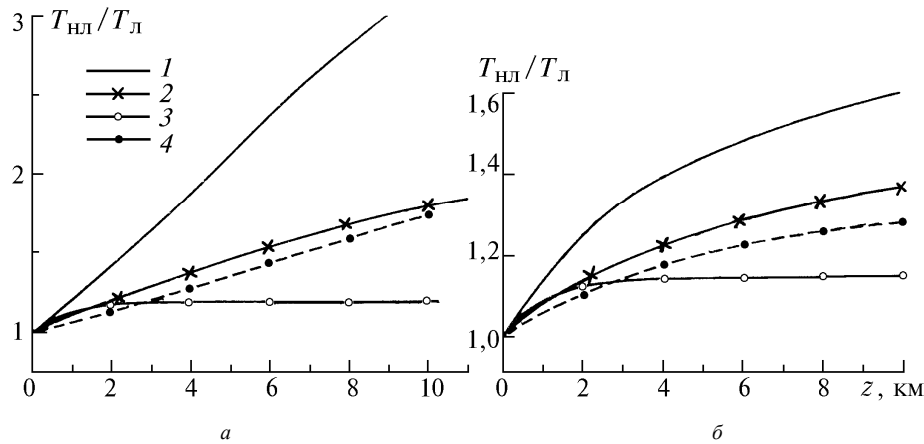


Рис. 2. Отношение нелинейного пропускания $T_{нл}$ атмосферой излучения импульсного CO_2 -лазера к линейному T_L на длине волны $10,6 \text{ мкм}$, $I_0 = 4 \text{ МВт/см}^2$, $\tau = 5 \cdot 10^{-8} \text{ с}$. a – горизонтальная однородная трасса с высотой подъема 0 км ; b – вертикальная трасса. Кривые 1, 4 – на оси пучка (длина расходимости 50 км); 3 – на оси пучка (длина расходимости 1 км); 2 – на краю пучка ($r = a_0$, длина расходимости 50 км); 1, 3 – модель атмосферы – лето средних широт; 4 – зима средних широт

3. Двухчастотное возбуждение спектров комбинационного рассеяния в молекулярных газах

Комбинационное рассеяние можно рассматривать как неупругое взаимодействие фотона с энергией $h\nu_0$ и молекулы, в результате которого появляется фотон с меньшей энергией $h\nu_s$ (стоксова компонента) или с большей $h\nu_{as}$ (антистоксова компонента), а молекула оказывается в состоянии с большей или меньшей энергией. Комбинационное рассеяние может происходить на вращательных, колебательно-вращательных и электронно-колебательно-вращательных переходах.

Если интенсивность взаимодействующего со средой лазерного излучения достаточно велика, то соответственно увеличивается интенсивность рассеянной стоксовой волны и между волной накачки и стоксовой волной начинается взаимодействие через молекулярные колебания с частотой $\Omega = \nu_0 - \nu_s$, где ν_0 – частота падающего лазерного излучения, в результате чего образуются интенсивные пучки рассеянного излучения. Это явление называется вынужденным комбинационным рассеянием (ВКР). В то время как интенсивность линии спонтанного комбинационного рассеяния (СКР) на несколько порядков величины меньше интенсивности возбуждающего среду лазерного излучения, интенсивности стоксова и антистоксова пучков в процессе ВКР сравнимы с интенсивностью волны накачки. Несмотря на то, что интенсивности вынужденных стоксовых и антистоксовых волн велики, спектроскопия ВКР мало используется в оптике атмосферы из-за высоких порогов ВКР в атмосферных газах при стандартных температурах и давлениях.

Дополнительная возможность возбуждения комбинационно-активных переходов и исследование спектров комбинационного рассеяния появляется при использовании импульсного двухчастотного излучения. При воздействии на молекулярной газ пучков излучения двух лазеров, коллинеарных и синхронизованных во времени с частотами излучения ν_1 и ν_2 , такими, что $\nu_1 - \nu_2 \simeq \Omega$, а $\nu_2 \simeq \nu_s$, и перестраиваемой разностной частотой, оказывается возможным исследовать форму контура линий комбинационного рассеяния с высоким спектральным разрешением, ограниченным лишь суммарной шириной линии излучения используемых лазеров, т.е. с разрешением $\sim 10^{-2} \div 10^{-3} \text{ см}^{-1}$ [16].

Так же как при исследовании абсорбционных вращательных и колебательно-вращательных спектров, для исследования спектров КР в молекулярных газах применим оптико-акустический метод [16, 17]. При возбуждении импульсным излучением с частотами ν_1 и ν_2 число молекул, возбуждаемых в единице объема газа, оценивается выражением

$$N_2 = \Delta I_2 A_2 T/h \nu_2, \quad (4)$$

$$\text{где} \quad \Delta I_2 = I_2(z) - I_2(0) = I_2(0) (e^{-g_s z} - 1), \quad (5)$$

а g_s – коэффициент усиления стоксова пучка (излучения с частотой ν_2); A_2 – площадь поперечного сечения стоксова пучка; T – время взаимодействия пучка накачки и стоксова пучка.

С использованием стандартной техники оптико-акустического детектирования в [17] были получены спектры КР в чистом CO_2 при давлении последнего $\approx 6,6 \cdot 10^3$ Па (~ 50 Торр) при возбуждении газа 2-й гармоникой лазера на иттрий-алюминиевом гранате ($I_1 \leq 2 \cdot 10^7$ Вт/см²) и излучением лазера на красителе (стоксова волна, $I_2 \approx 8 \cdot 10^6$ Вт/см²) при длительности обоих импульсов 10 нс.

Селективное возбуждение вращательных и колебательно-вращательных комбинационно-активных переходов позволяет исследовать процессы их релаксации аналогично тому, как это реализовано в [18, 19] при изучении безызлучательной релаксации атмосферных молекул оптико-акустическим методом.

Оценки по (4) и (5), а также упомянутые выше экспериментальные результаты показывают, что для многих современных импульсных лазеров коротковолнового диапазона уровень интенсивностей I_1 и I_2 , при которых наблюдаются эффекты активного стимулированного комбинационного рассеяния, достигим и на 2–3 порядка ниже уровня пороговой интенсивности оптического пробоя воздуха в коротковолновом диапазоне. Согласно [6] пробой воздуха в поле излучения лазера с длиной волны 1,06 мм происходит при интенсивности $\geq 10^9$ Вт/см².

4. Использование нелинейных спектроскопических эффектов для зондирования газового состава атмосферы

Одним из основных методов зондирования газового состава атмосферы на протяженных трассах является метод дифференциального поглощения и рассеяния [20]. Суть метода состоит в сравнении интенсивностей прошедшего через атмосферу или рассеянного в обратном направлении лазерного излучения, посылаемого поочередно на двух частотах ν_1 и ν_2 , одна из которых поглощается в линии зондируемого газа, а другая приходится на крыло линии, где вкладом резонансного поглощения по сравнению с фоном можно пренебречь. Для реализации этого метода нужно использовать лазеры с плавной или дискретной перестройкой частоты и стабильностью остальных характеристик импульса.

Для того чтобы использовать одночастотный и неперестраиваемый лазер, частота которого совпадает с частотой линии поглощения определенного газа для изменения концентрации последнего, можно использовать эффект насыщения. В [21] показано, что в этом случае достаточно варьировать интенсивность излучения, а не частоту.

Суммарный коэффициент поглощения воздуха $k(\nu)$ (или смеси газов) является суммой коэффициента резонансного поглощения $\kappa(\nu)$ газа, концентрацию которого необходимо измерить, и неселективного коэффициента поглощения α , обусловленного поглощением в крыльях линий и полос других газов, аэрозольным поглощением, рассеянием и т.д.:

$$k(\nu) = \kappa(\nu) + \alpha.$$

Если мы переходим от малых значений интенсивностей зондирующего излучения $I \ll I_s$ (I_s – мощность насыщения) к значениям $I \sim I_s$, то мы можем разделить вклады κ , которое меняется с ростом I из-за эффекта насыщения, и α , не зависящего от I при $I \leq I_s$, а следовательно, определить концентрацию поглощающего газа по определенному значению κ из соотношения $\kappa = n \sigma(\nu)$, где $\sigma(\nu)$ – поперечное сечение поглощения на частоте ν , а n – концентрация, см⁻³.

Для однородной горизонтальной трассы длиной l и пучка с малой угловой расходимостью интенсивность излучения в начальной и конечной точках трассы и коэффициенты κ и α связаны соотношением [21]

$$\ln \left(\frac{I_l}{I_0} \right) + \frac{\kappa}{\alpha} \ln \frac{\alpha + \kappa + \alpha (I_0/I_s) (I_l/I_0)}{\alpha + \kappa + \alpha (I_0/I_s)} = l (\alpha + \kappa). \quad (6)$$

В [6] в общем случае входят три неизвестные величины α , μ и I_s . При трехкратной вариации интенсивности излучения в начальной точке трассы ($I_{01} \ll I_s$; $I_{02}, I_{03} \simeq I_s$) из (6) можно определить все неизвестные величины.

Как правило, значение I_s известно (либо может быть рассчитано по известным характеристикам резонансного перехода в поглощающей молекуле [7, 8]). В таком случае для определения α и μ достаточно всего двух вариаций интенсивности.

В методе дифференциального поглощения и рассеяния дальность зондирования определяется величиной коэффициента поглощения зондируемого газа. Если длина волны излучения используемого лазера совпадает с частотой сильных линий поглощения, что типично для таких газов, как NO_2 , CH_4 и молекул органических соединений, то дальность зондирования может быть недостаточной из-за быстрого ослабления энергии излучения на трассе зондирования.

Эффект активно стимулированного комбинационного рассеяния на молекулах N_2 (или O_2) – основных газах атмосферы – может использоваться для подкачки энергии в зондирующий пучок с частотой ν_1 из пучка с частотой ν_2 при их коллинеарном распространении на трассе зондирования. Численные оценки такой возможности выполнены в [22].

Распространение двух коллинеарных пучков импульсного излучения, синхронизованных во времени, один из которых имеет частоту ν_1 , совпадающую с частотой линии поглощения, а другой – ν_2 , удовлетворяющую условию $\nu_2 - \nu_1 \simeq \Omega$ (Ω – частота вращательного или колебательного КР в азоте) и попадающую в интервал между линиями поглощения, может быть описано системой уравнений [23]:

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + i \frac{\Delta_1}{2 k_1 \text{Re } \alpha_1} E_1 = \left(\mu |E_2|^2 - \frac{\alpha_1}{2 \text{Re } \alpha_1} \right) E_1; \quad (7a)$$

$$\frac{\partial E_2}{\partial t} + i \frac{\Delta_1}{2 k_2 \text{Re } \alpha_2} E_2 = - \left(\mu \delta |E_1|^2 + \frac{\gamma}{2} \right) E_2, \quad (7b)$$

где E_1, E_2 – напряженности поля излучения на частотах ν_1 и ν_2 ; $\gamma = \frac{a_2}{\text{Re } \alpha_1}$; α_1 и α_2 – комплексные коэффициенты поглощения на частотах ν_1 и ν_2 ; τ – оптическая толщина среды на частоте ν_1 ; $k_{1,2} = \nu_{1,2}/2\pi c$, c – скорость света, а

$$\delta = \frac{\nu_2}{\nu_1} \frac{|E_{10}|^2}{|E_{20}|^2}; \quad \mu = \frac{g}{\text{Re } \alpha_1} |E_{10}|^2. \quad (8)$$

Здесь g – коэффициент усиления волны с частотой ν_1 за счет перекачки энергии из волны с частотой ν_2 в процессе ВКР; E_{10}, E_{20} – амплитуды поля на входе в среду.

Для атмосферных условий, как правило, $g < \text{Re } \alpha_1$ при $I_1 \sim 10^6 - 10^8 \text{ Вт/см}^2$ [24]. В этом случае для пучков с аксиальной симметрией решение может быть представлено в виде

$$E_1(\tau) = E_{1L}(\tau) \left\{ 1 + \frac{\mu}{\text{Re } \gamma} (1 - e^{-\text{Re } \gamma \tau}) + \frac{\mu^2}{2 \text{Re } \gamma} (1 - e^{-\text{Re } \gamma \tau})^2 + \dots \right\}; \quad (9a)$$

$$E_2(\tau) = E_{2L}(\tau) \{ 1 - \mu \delta (1 - e^{-\tau}) + \dots \}, \quad (9b)$$

где E_{1L}, E_{2L} описывают изменение амплитуды обоих пучков в линейном случае.

Для передачи энергии из пучка с частотой ν в зондирующий пучок наиболее целесообразно использовать ВКР на вращательных переходах в N_2 или O_2 . В этом случае частоты ν_1 и ν_2 близки и условия синхронизма выполняются на больших дистанциях [25].

Требуемая для реализации измерений по методу дифференциального поглощения и рассеяния частотная отстройка $\Omega = \nu_2 - \nu_1 \simeq (5-10)\Gamma$, где Γ – ширина линии поглощения зондируемого газа, достигается легко. Критерием увеличения дальности зондирования примем отношение длины трассы, на которой интенсивность пучка с частотой ν_1 ослабляется до опреде-

ленного уровня при подкачке вторым пучком, к длине трассы, на которой первый пучок испытывает то же ослабление без подкачки.

На рис. 3 представлены результаты оценок увеличения оптической толщи, которое может быть обеспечено путем взаимодействия первой и второй волны в процессе ВКР при различных значениях параметра μ , который характеризует отношение коэффициента усиления волны с частотой ν_1 за счет ВКР к коэффициенту поглощения на трассе зондирования.

Значения $\mu \approx 0,1 \div 0,3$ могут быть получены при использовании импульсных лазеров видимого и ИК-диапазонов с интенсивностью от 1 до $5 \cdot 10^2$ МВт/см², которые не являются экзотическими.

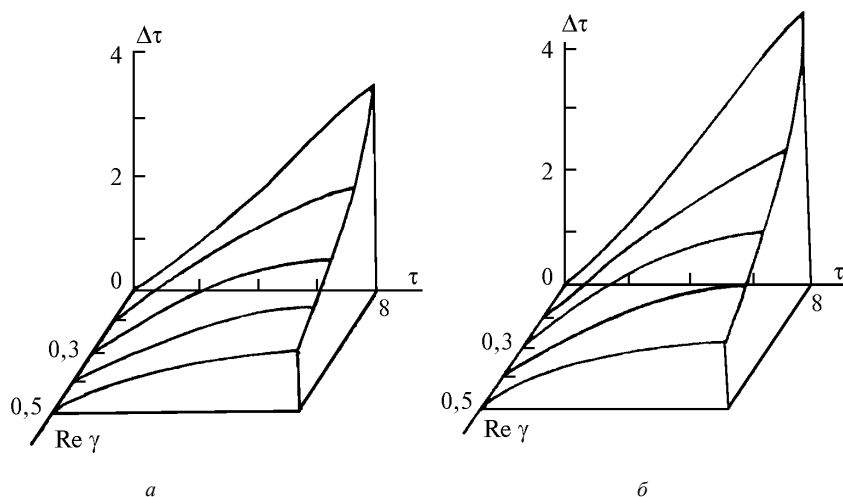


Рис. 3. Зависимость увеличения дальности зондирования резонансно-поглощающего газа при подкачке энергии в зондирующий лазерный пучок: *a* – $\mu = 0,2$, *б* – $\mu = 0,4$

Заключение

Нелинейные спектроскопические эффекты, такие как насыщение на колебательно-вращательных переходах атмосферных молекул, просветление далекого крыла спектральной линии; изменение скорости колебательной релаксации в поле интенсивного излучения и стимулированное двухчастотным излучением ВКР на вращательных и колебательно-вращательных переходах, характеризуются пороговыми интенсивностями, которые ниже, чем пороговая интенсивность оптического пробоя воздуха. Современные импульсные лазеры, применяемые для диагностики газового состава атмосферы, развивают необходимые мощности даже в нефокусированных пучках. Имеющиеся экспериментальные данные и теоретические оценки позволяют предложить использование этих эффектов для расширения возможностей имеющихся методов зондирования газового состава атмосферы. Изменение скорости колебательной релаксации при изменении вида взаимодействия излучения с газовой молекулярной средой от резонансного к нерезонансному должно учитываться при анализе самовоздействия излучения мощных лазеров ИК-диапазона при его распространении в атмосфере.

1. Папуловский В. Ф. // Оптика и спектроскопия. 1974. Т. 37. N 2. С. 246–249.
2. Голгер А. Л., Летохов В. С., Федосеев С. П. // Квантовая электроника. 1976. Т. 3. N 7. С. 1457–1470.
3. Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света. М.: Наука, 1981. 544 с.
4. Агеев Б. Г., Гордов Е. П., Пономарев Ю. Н., Творогов С. Д. // Изв. АН СССР. Сер. Физика. 1985. Т. 49. N 3. С. 459–465.
5. Агеев Б. Г., Никифорова О. Ю., Пономарев Ю. Н. и др. // Оптика атмосферы. 1989. Т. 2. N 1. С. 49–54.
6. Зуев В. Е., Землянов А. А., Копытин Ю. Д., Кузиковский А. В. Мощное лазерное излучение в атмосферном аэрозоле. Новосибирск: Наука, Сиб. отд.-е. 1984. 233 с.
7. Агеев Б. Г., Пономарев Ю. Н., Тихомиров Б. А. Нелинейная оптико-акустическая спектроскопия молекулярных газов. Новосибирск: Наука, Сиб. отд.-е. 1987. 128 с.
8. Летохов В. С., Макаров А. А., Рябов Е. А. // ДАН СССР. 1973. Т. 212. N 1. С. 75–78.

9. Рябов Е. А. // Квантовая электроника. 1975. Т. 2. N 1. С. 138–140.
10. Макогон М. М., Пономарева С. Б., Пономарев Ю. Н. // Квантовая электроника. 1980. Т. 7. N 7. С. 1589–1591.
11. Агеев Б. Г., Пономарев Ю. Н., Чистякова Л. К. // Изв. вузов СССР. Сер. Физика. 1982. N 10. С. 749–751.
12. Лопасов В. П., Пономарев Ю. Н., Тихомиров Б. А. // Квантовая электроника. 1982. Т. 9. N 8. С. 1724–1727.
13. Ponomarev Yu. N. // *Infrared Phys.* 1991. V. 32. P. 377–384.
14. Кондратьев В. Н., Никитин Е. Е. Кинетика и механизм газофазных реакций. М.: Наука, 1974. 558 с.
15. Мицель А. А., Пономарев Ю. Н. Оптические модели молекулярной атмосферы. Новосибирск: Наука, Сиб. отд-е, 1988. 128 с.
16. Нечаев С. Ю., Пономарев Ю. Н. // Квантовая электроника. 1975. Т. 2. N 7. С. 1400–1402.
17. Уэст Г., Бэррет Д., Зиберт Д., Редди К. // Приборы для научных исследований. 1983. N 7. С. 3–27.
18. Антипов А. Б., Капитанов В. А., Пономарев Ю. Н. // Оптика и спектроскопия. 1981. Т. 50. С. 563–565.
19. Капитанов В. А., Никифорова О. Ю., Пономарев Ю. Н., Тихомиров Б. А. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т. 7. N 11. С. 1463–1470.
20. Лазерный контроль атмосферы / Под ред. Э. Д. Хинкли. М.: Мир, 1979. 416 с.
21. Zuev V. V., Ippolitov I. I., Mitsel A. A., Ponomarev Yu. N. // *Proceedings of the 13th International Laser Radar Conference. Toronto, Canada, August 11–15, 1986.*
22. Кистенев Ю. В., Пономарев Ю. Н., Шевчук И. А. // Оптика атмосферы и океана. 1992. Т. 5. N 2. С. 143–145.
23. Сухоруков А. П. Нелинейные волновые взаимодействия в оптике и радиофизике. М.: Наука, 1988. 231 с.
24. Martin W. E. // *Appl. Optics.* 1988. V. 27. N 3. P. 567–577.
25. Садовников В. П., Стрелков Г. М., Шаляев М. Ф. // Оптика атмосферы. 1989. Т. 2. N 11. С. 1123–1130.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
9 августа 1996 г.

Ju. N. Ponomarev. Nonlinear Spectroscopic Phenomena in Molecular Gases and Their Influence upon Laser Beam Propagation through the Atmosphere.

The results of investigation of such low-threshold nonlinear spectroscopic phenomena in atmospheric gases as saturation, «clearing up» in absorption line wing, vibration relaxation versus intense laser radiation, and Raman scattering stimulated by two-frequency radiation are treated in the paper. Consideration and practical use of the phenomena in the problems of intense optical radiation transfer and remote sensing of gaseous and aerosol composition of the atmosphere are also discussed.