

**С.В. Иванов, В.Я. Панченко**

## О ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ МОЛЕКУЛЯРНЫХ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ С ПЛОТНОЙ ВРАЩАТЕЛЬНОЙ СТРУКТУРОЙ СПЕКТРА

Рассматривается линейное и нелинейное поглощения лазерного излучения на колебательных переходах молекул с плотной вращательной структурой спектра, являющейся типичной для изогнутых трехатомных компонент атмосферы. В квазистационарном приближении некогерентных кинетических уравнений для заселенности энергетических уровней исследовано влияние на вероятность оптического возбуждения колебательного перехода следующих факторов: нестабильности частоты излучения, его спектральной ширины, нерегулярности вращательной структуры спектра полосы, формы контура линий поглощения. Сформулированы критерии линейного и нелинейного коллективного поглощения излучения в полосе. Определены условия, при которых зависимость вероятности возбуждения от интенсивности излучения является корневой.

При описании оптического возбуждения ИК активных колебательных переходов молекул обычно используются два приближения: линейного поглощения и вращательного насыщения (приближение эффекта «узкого горла» [1]). В первом случае вероятность вынужденного колебательного перехода линейно зависит от интенсивности излучения, во втором она постоянна и определяется временем  $RT$ -обмена и равновесным вращательным распределением. В работах [2–4] на примере молекул озона была показана возможность существования нового режима возбуждения — подавления эффекта «узкого горла» за счет коллективного поглощения, т. е. вовлечения в поглощение многих квазирезонансных колебательно-вращательных (КВ) переходов. Простота предложенной в этих работах модели взаимодействия излучения фиксированной частоты с эквидистантным набором одинаковых лоренцевских линий (полосой Эльзассера) позволила получить аналитическое решение задачи. В то же время спектр  $O_3$ , как и многих других атмосферных газов, отличается сложной, почти случайной структурой, а форма линий поглощения может отличаться от лоренцевской. Что касается излучения, то оно в большинстве случаев не является частотно-стабилизированным и строго монохроматическим (много-модовый режим работы лазеров, излучение параметрических генераторов света).

В настоящей работе исследуется влияние на вероятность оптического возбуждения колебательных переходов молекул с плотным КВ спектром следующих факторов: частотной нестабильности и ширины спектра лазерного излучения, формы контура линий поглощения, нерегулярности вращательной структуры молекулярной полосы, в которой происходит поглощение.

**Постановка задачи.** Некогерентные кинетические уравнения для заселенности вращательных подуровней  $i$ -го КВ перехода при возбуждении излучением колебательного перехода  $|0\rangle - |1\rangle$  имеют вид [1]

$$\begin{aligned} \frac{dn_1^i}{dt} &= W_{01}^i n_0^i - W_{10}^i n_1^i + \frac{1}{\tau_{RT}} (N_1 q_1^i - n_1^i); \\ \frac{dn_0^i}{dt} &= W_{10}^i n_1^i - W_{01}^i n_0^i + \frac{1}{\tau_{RT}} (N_0 q_0^i - n_0^i), \end{aligned} \quad (1)$$

где  $n_0^i, n_1^i, q_0^i, q_1^i$  — текущие и безразмерные равновесные заселенности вращательных подуровней;  $N_0$  и  $N_1$  — заселенности колебательных состояний;  $\tau_{RT}$  — характерное время вращательно-поступательной релаксации, принятое одинаковым для всех подуровней.

Вероятности вынужденного прямого и обратного  $i$ -го перехода имеют вид

$$W_{01}^i = \frac{g_1^i}{g_0^i} W_{10}^i, \quad W_{10}^i = \frac{\sigma_{10}^i I}{h v_i}, \quad \sigma_{10}^i = \frac{c^2 A_i}{8\pi v_i^2 \Delta v_L} F_i; \quad (2)$$

$$F_i = \Delta v_i \int f_i(\nu - \nu_i) f_{\text{лаз}}(\nu - \nu_{\text{лаз}}) d\nu,$$

где  $I$ ,  $f_{\text{лаз}}$  — интегральная интенсивность излучения и его спектральная форма с центром  $\nu_{\text{лаз}}$ ;  $v_i$ ,  $A_i$ ,  $f_i$ ,  $\Delta v_i$  — положение, коэффициент Эйнштейна, форма и ширина  $i$ -й линии поглощения;  $g_1^i \approx g_0^i$  — статистический вес соответствующих КВ уровней;  $c$  — скорость света;  $h$  — постоянная Планка. Интегрирование в (2) ведется по спектру лазерного излучения. Для монохроматического излучения  $F_i$  — просто безразмерный форм-фактор линии поглощения.

Полагая заселенности вращательных подуровней в (1) квазистационарными и суммируя вклад всех линий полосы  $|0\rangle - |1\rangle$ , получаем следующее выражение для вероятности (в единицу времени) оптического возбуждения колебательного уровня  $|1\rangle$  [5]:

$$W_{01} = \sum_i \frac{W_{01}^i q_0^i}{1 + 2 W_{01}^i \tau_{RT}}. \quad (3)$$

Сложные спектры полос поглощения часто удобно рассматривать как квазислучайные структуры со статистически распределенными значениями параметров  $v_i$ ,  $A_i$  и  $q_i^i$  (далее просто  $q_i$ ). В условиях коллективного поглощения необходимо проводить процедуру статистического усреднения величины  $W_{01}$  по указанным параметрам. Если излучение нестабилизировано по частоте, то необходимо дополнительное усреднение по положению центра лазерной линии. С учетом сказанного можно записать

$$\langle W_{01} \rangle_{v_{\text{лаз}}, q_i, A_i, v_i} = \int \sum_i \frac{W_{01}^i q_i}{1 + 2 W_{01}^i \tau_{RT}} p(v_{\text{лаз}}) p(q_i(v_i)) p(A_i(v_i)) p(v_i) d v_{\text{лаз}} dq_i d A_i d v_i, \quad (4)$$

где  $p(x)$  — распределение плотности вероятности случайной величины  $x$ , а интегрирование ведется по области изменения переменных  $v_{\text{лаз}}$ ,  $q_i$ ,  $A_i$ ,  $v_i$ . Если при определении  $\langle W_{01} \rangle$  спектральной зависимостью  $q_i$  и  $A_i$  можно пренебречь (критерий см. ниже), выражение (4) упрощается. В этом случае, например, усреднение по  $q_i$  приводит к появлению среднего значения  $q$  в качестве множителя. Отметим, что если какой-либо параметр интегрирования не является случайной величиной, его функция распределения вырождается в дельта-функцию.

**Нестабилизированное одиночастотное излучение.** Для исследования влияния на  $\langle W_{01} \rangle$  нестабильности частоты излучения и ширины его спектра примем, как и ранее в [4], для перехода  $|0\rangle - |1\rangle$  модель Эльзассера (см. рис. 1). Рассмотрим случай, когда спектр излучения представлен одной частотой (модой), случайно и равновероятно расположенной внутри прямоугольного контура генерации лазера шириной  $\Delta$ . Суммируя в (4) бесконечный ряд и выполняя интегрирование только по  $v_{\text{лаз}}$ , считая все остальные параметры регулярными, получаем

$$\begin{aligned} \langle W_{01} \rangle_{v_{\text{лаз}}} &= \frac{qW}{\beta} \cdot \frac{L}{\Delta} \cdot \left( \frac{\Delta v_L}{L} \right)^2 \cdot \left[ \pi n + \arctg \left( a \cdot \tg \pi \frac{\delta + \frac{\Delta}{2}}{L} \right) - \arctg \left( a \cdot \tg \pi \frac{\delta - \frac{\Delta}{2}}{L} \right) \right]; \quad (5) \\ a &= cth \beta + csch \beta, \quad \beta = \pi \frac{\Delta v_L}{L} \left( 1 + \frac{4}{\pi} W \tau_{RT} \right)^{1/2}, \\ W &= \frac{\sigma I}{hv}, \quad \sigma = \frac{c^2 A}{8\pi \Delta v_L (v_{\text{лаз}}^0)^2}, \quad \delta = v_0 - v_{\text{лаз}}^0, \end{aligned}$$

где  $v_{\text{лаз}}^0$  — центр интервала разброса лазерной частоты;  $a$ ,  $\Delta v_L$  — коэффициент Эйнштейна и ширина линий;  $L$  — расстояние между ними;  $\delta$  — расстройка  $v_{\text{лаз}}^0$  с ближайшей линией поглощения;  $n$  — количество особенностей функции  $\tg x$  в интервале  $\frac{\pi}{L} \left( \delta - \frac{\Delta}{2} \right) < x < \frac{\pi}{L} \left( \delta + \frac{\Delta}{2} \right)$ . С точностью до единицы число  $n$  можно считав равным целой части  $\Delta/L$ .

Из формулы (5) следует, что с ростом разброса частоты вероятность возбуждения испытывает затухающие осцилляции, связанные с возможным «захватом» все более отдаленных линий. Отметим, что параметр  $\beta$  характеризует вклад квазирезонансных переходов в возбуждение колебаний и представляет собой произведение фактора их линейного вклада и параметра насыщения эффективного резонансного перехода. При  $\beta \gg 1$  имеет место коллективное поглощение (КП), которое в случае  $W \tau_{RT} \ll 1$  является линейным (ЛКП), а в противном — нелинейным (НКП).

Рассмотрим предельные случаи выражения (5):

а) если  $\Delta \ll \delta$ , то излучение можно считать стабилизированными (5) переходит в формулу, полученную ранее в [3];

б) при  $\Delta \gg L$ , когда интервал разброса частоты содержит многолиний поглощения, зависимость вероятности возбуждения от  $\delta$  и  $\Delta$  пропадает:

$$\langle W_{01} \rangle_{v_{\text{лаз}}} = \pi \frac{qW}{\beta} \left( \frac{\Delta v_L}{L} \right)^2; \quad (6)$$

в) при  $\beta \gg 1$  в возбуждение вносят вклад многие квазирезонансные линии. Вероятность  $\langle W_{01} \rangle$  так же, как и в случае «а», оказывается независящей от  $\delta$  и  $\Delta$ : с точностью до множителя порядка

двух (численное значение которого зависит от того, какое из неравенств выполняется —  $\Delta < L$  или  $\Delta > L$ ) получаем результат (6).

В режиме НКП имеет место сильное насыщение ближайших к лазерной частоте переходов и (6) переходит в

$$\langle W_{01} \rangle_{\text{лаз}} = \frac{q \Delta v_L}{2L} \left( \frac{\pi W}{\tau_{RT}} \right)^{1/2} \sim \left( \frac{I}{\tau_{RT}} \right)^{1/2}; \quad (7)$$

г) при  $\beta \ll 1$  возбуждение уровня  $|1\rangle$  определяется лишь одним ближайшим к частоте излучения КВ переходом. В этом случае (если только не  $\Delta \gg L$ , см. случай «а»)  $\langle W_{01} \rangle$  сильно зависит от  $\delta$  и  $\Delta$ . Если  $|2\delta \pm \Delta| \ll L$ , можно считать, что излучение поглощается одной линией, ближайшей к  $v_{\text{лаз}}^0$ .

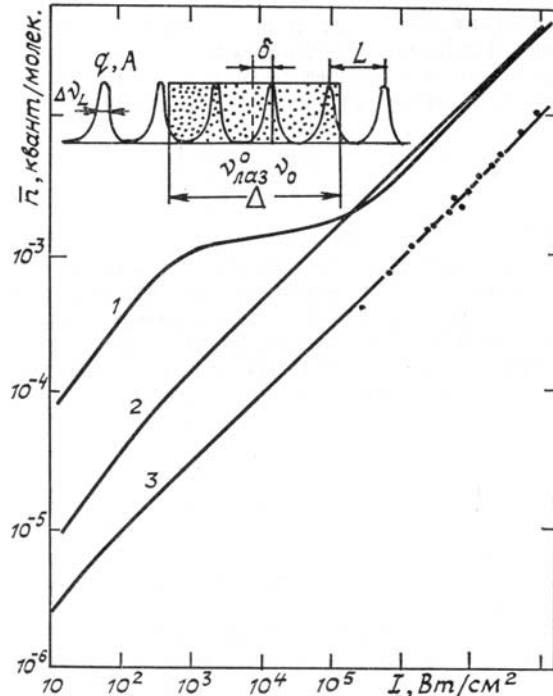


Рис. 1. Зависимость от интенсивности излучения среднего числа поглощенных молекулами  $O_3$  квантов 9Р(30)  $CO_2$ -лазера. Давление 3 мм рт. ст.,  $T = 300$  К. Точки — результаты эксперимента [4]. 1 — расчет для фиксированной частоты  $1037,4341 \text{ см}^{-1}$  (центр линии 9Р(30) $CO_2$ ) с использованием реального спектра полосы (000)–(001)  $O_3$ ; 2 — расчет по формуле (5) для нестабилизированного излучения с  $v_{\text{лаз}}^0 = 1037,4341 \text{ см}^{-1}$ ,  $\Delta = 0,03 \text{ см}^{-1}$ ,  $\delta = 3 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ , 3 — то же, что кривая 2, но с  $\tau_{RT} = 20\tau_{RT}^0$ , где  $\tau_{RT}^0 = 0,127 \text{ мкс}\cdot\text{мм рт. ст.}$  — значение, принятое для кривых 1 и 2. Параметры модели Эльзассера (см. вверху) для кривых 2 и 3 соответствуют усредненным по 100 линиям реального спектра значениям:  $q = 2,63 \cdot 10^{-3}$ ,  $A = 2,77 \text{ с}^{-1}$ ,  $L = 3,03 \cdot 10^{-2} \text{ см}^{-1}$ ,  $\Delta v_L = 6,95 \cdot 10^{-4} \text{ см}^{-1}$

Формула (5) может применяться для интерпретации экспериментальных данных по ИК возбуждению простых молекул в столкновительных условиях. В качестве примера на рис. 1 приведены экспериментальные и расчетные зависимости от интенсивности излучения среднего числа поглощенных в  $O_3$  квантов  $CO_2$ -лазера. Расчетные кривые получены для прямоугольного импульса, площадь которого совпадала с площадью реального импульса. Экспериментальные точки и зависимость 1 на рис. 1 взяты из работы [4]. Кривая 1 рассчитана для излучения фиксированной частоты с использованием экспериментальной информации о спектре поглощающего перехода (000)–(001)  $O_3$  [6] и фойгтовских контуров для линий поглощения. Зависимость 2 получена по формуле (5) при типичной ширине линии усиления ТЕА– $CO_2$  лазера [4]. Параметры  $q$ ,  $A$ ,  $L$  вычислялись как средние, исходя из реального спектра  $O_3$  в районе лазерной частоты. Величина  $\delta$  полагалась равной реальному расстоянию от центра линии 9Р(30) $CO_2$  до ближайшего КВ перехода  $O_3 16_{88} \rightarrow 16_{89}$ . Сильное отличие кривой 1 от результатов измерений в области малых  $I$  качественно объяснялось в [4] нестабильностью мод внутри линии усиления, приводящей к нарушению точного резонанса с ближайшим переходом  $O_3$ . Формула (5) позволяет количественно анализировать этот эффект. В области малых интенсивностей зависимость 2 гораздо лучше, чем 1 отражает ход экспериментальных точек, а при  $I > 0,1 \text{ МВт}/\text{см}^2$  ( $\beta \gg 1$ ) влияние нестабильности частоты излучения пропадает: кривые 1 и 2 практически сливаются. В этом случае имеет место режим НКП, и зависимость  $\bar{n}$  (1) принимает корневой характер в соответствии с (7).

Вероятность возбуждения зависит от времени вращательной релаксации. Поскольку для молекул О<sub>3</sub> не имеется надежных данных о процессах вращательного обмена, нельзя претендовать на количественное совпадение результатов теории и эксперимента. Наилучшее согласие с экспериментом при высоких интенсивностях получается, если положить  $\tau_{RT} \approx 20\tau_{RT}^0$  (см. зависимость 3 на рис. 1), где  $\tau_{RT}$  — время релаксации молекул О<sub>3</sub> [1]. Отклонение экспериментальных точек от 3 при  $I < 0,1 \text{ МВт/см}^2$ , когда в  $\langle W_{01} \rangle$  вносит вклад лишь один резонансный переход, объясняется, по-видимому, отличием  $\tau_{RT}$  и других параметров этого перехода от усредненных значений.

**Квазимохроматическое излучение со сплошным спектром.** Рассмотрим другой предельный случай — взаимодействие полосы Эльзассера с излучением, имеющим сплошной спектр конечной ширины  $\Delta$ . Для прямоугольного контура линии излучения имеем

$$F_i = \frac{\Delta\nu_L}{\pi\Delta} \left( \arctg \frac{\Delta - 2\delta_i}{\Delta\nu_L} + \arctg \frac{\Delta + 2\delta_i}{\Delta\nu_L} \right), \quad \delta_i = \nu_i - \nu_{\text{лаз.}}$$

Рис. 2 иллюстрирует различия в  $W_{01}$  при воздействии на переход  $|0\rangle - |1\rangle$  нестабилизированного в интервале  $\Delta$  монохроматического излучения и при воздействии излучения с непрерывным спектром шириной  $\Delta$ . Видно, что эти различия существенны в области средних интенсивностей, когда насыщение КВ переходов, попавших в  $\Delta$ , не слишком велико. С ростом ширины сплошного спектра расширяется область интенсивностей, где поглощение можно считать линейным. Основной вклад в  $W_{01}$  при этом вносят линии, попавшие в  $\Delta$ . В случае  $\Delta \gg \Delta\nu_L$   $F_i \approx \frac{\Delta\nu_L}{L}$ , и вероятность возбуждения можно оценить величиной, независящей от  $\Delta$  и  $\delta$ :

$$W_{01}^\infty \approx q W \frac{\Delta\nu_L}{L}. \quad (8)$$

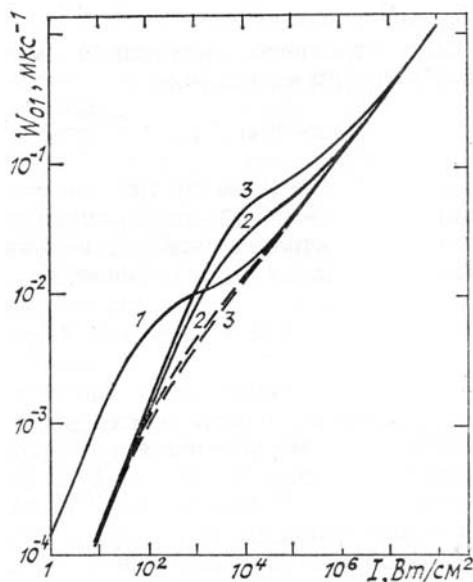


Рис. 2. Зависимость вероятности возбуждения колебательного перехода от интенсивности для излучения со сплошным спектром шириной  $\Delta$  (сплошные кривые) и нестабилизированного в интервале монохроматического излучения (штриховые). Кривые 1, 2, 3 соответствуют  $\Delta = 0, 0,1 \text{ см}^{-1}, 0,2 \text{ см}^{-1}$ . Для колебательного перехода принята модель Эльзассера:  $\delta = 0, \Delta\nu_L = 2,24 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}, \tau_{RT} = \tau_{RT}^0$ . Остальные параметры те же, что и на рис. 1

Интересно отметить, что этот результат совпадает с (6) при  $W\tau_{RT} \ll 1$ . Отсюда следует, что при  $\Delta \gg \Delta\nu_L, L$  в режиме линейного поглощения вероятность  $W_{01}$  не зависит от ширины и нестабильности спектра излучения и оценивается по (8). В случае НКП структура спектра излучения также несущественна. Сказанное подтверждается рис. 3, где представлены зависимости  $W_{01}(\Delta)$  для двух различных полных интенсивностей излучения. Легко видеть, что оценка (8) в данном случае обеспечивает хорошую точность.

**Хаотическая вращательная структура спектра поглощения.** Исследуем теперь, как влияет на возбуждение перехода  $|0\rangle - |1\rangle$  случайность параметров линий поглощения. Для простоты будем считать излучение монохроматическим (частоты  $\nu$ ), а контуры линий лоренцевскими. Примем для спек-

тра полосы модель Гуди [7]:  $N$  одинаковых линий распределены случайно с одинаковой плотностью вероятности  $1/NL$  внутри интервала  $[v-NL/2, v+NL/2]$ , при этом  $L$  имеет смысл среднего расстояния между линиями. Проведя усреднение в (4) по  $q_i$  и  $v_i$ , получим

$$\langle W_{01} \rangle_{q_i v_i} = 2 \frac{qW}{\beta} \left( \frac{\Delta v_L}{L} \right)^2 \arctg \pi \xi, \quad \xi = \frac{N}{\beta}. \quad (9)$$

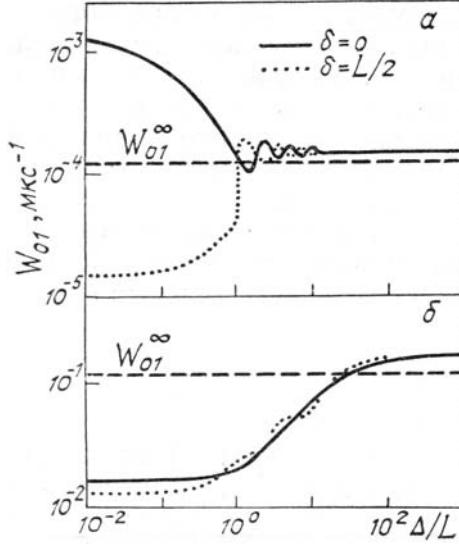


Рис. 3. Зависимость вероятности возбуждения колебательного перехода, моделируемого полосой Эльзассера, от ширины сплошного спектра излучения при фиксированной полной интенсивности:  $\alpha - I = 10 \text{ Вт}/\text{см}^2$ ,  $\delta - I = 10 \text{ кВт}/\text{см}^2$ . Параметры полосы те же, что и на рис. 2

Параметр  $\beta$  имеет тот же смысл, что и ранее, а  $\xi$  характеризует влияние на  $\langle W_{01} \rangle$  ограниченности полосы. При  $\xi \gg 1$  полосу можно считать неограниченной, а вероятность возбуждения не зависящей от  $N$ . В этом случае выражение для  $\langle W_{01} \rangle$  совпадает с формулой (6):

$$\langle W_{01} \rangle_{q_i v_i} = \pi \frac{qW}{\beta} \left( \frac{\Delta v_L}{L} \right)^2. \quad (10)$$

При  $\xi < 1$  конечность числа линий в полосе ограничивает возбуждение колебательного перехода. Если  $W\tau_{RT} \gg 1$ , то колебательный переход насыщается и появляется эффект «узкого горла». В случае линейного поглощения из (9) следует соотношение (8), отличающееся от полученного в [4] для модели Эльзассера лишь численным коэффициентом, возникающим из-за усреднения по расстройкам.

В обобщенной случайной модели полосы статистически распределены все три параметра:  $q_i$ ,  $v_i$ ,  $A_i$ . Распределения вероятности этих величин при вычислении  $\langle W_{01} \rangle$  можно приближенно считать спектрально однородными, если характерные масштабы  $\Omega_x$  их изменения по частоте удовлетворяют условию, следующему из (4):

$$\Omega_x \gg \Delta v_L \left( 1 + \frac{4}{\pi} W\tau_{RT} \right)^{1/2} = \beta \frac{L}{\pi}, \quad x = q_i, v_i, A_i. \quad (11)$$

Подчеркнем, что это условие является достаточным, но не необходимым.

Выражение для вероятности перехода  $|0\rangle - |1\rangle$  в обобщенной модели неограниченной полосы получаем, усредняя (10) по  $A_i$  в пределах  $A_1 < A_2$ . Рассмотрим два предельных случая — узкого и широкого распределений  $pA_i$  на фоне зависимости (10) от  $A$ . В первом случае для  $\langle W_{01} \rangle$  получаем формулу (10) с  $A = A_0$ , где  $A_0$  — координата максимума  $p(A_i)$ , а во втором, считая  $pA_i \approx p(A_0)$ , имеем

$$\begin{aligned} \langle W_{01} \rangle_{q_i v_i A_i} &= q \frac{\Delta v_L}{L} \cdot \frac{\pi}{6\tau_{RT} b} \cdot p(A_0) \cdot (1 + bA_i)^{1/2} \cdot (bA_i - 2) \Big|_{A_1}^{A_2}. \\ b &= \frac{c^2 I\tau_{RT}}{2\pi^2 \Delta v_L h v^3} \end{aligned} \quad (12)$$

При  $W\tau_{RT} \ll 1$  (10) и (12) не зависят от  $\tau_{RT}$  и линейно зависят от  $I$  а в режиме НКП с точностью до множителя получается результат (7). Полученные в [5] аналитические выражения для  $\langle W_{01} \rangle$  с конкретными функциями  $p(A_i)$  удовлетворяют тем же закономерностям.

Не зависящие от частоты распределения вероятности случайных параметров линий хорошо описывают реальные КВ полосы в целом или их сравнительно большие участки [7], но при этом отдельные интервалы могут быть спектрально неоднородны. Расчеты, проведенные с использованием модельных функций  $A_i \sim |v - v_i|^\alpha$  и  $p(v_i) \sim |v - v_i|^\alpha$ , где  $0 \leq \alpha \leq 1$ , показали, что зависимость  $A_i$  от частоты и неравномерность плотности линий в полосе могут заметно влиять на степень зависимости  $\langle W_{01} \rangle$  от  $I$  и  $\tau_{RT}$ . Например, для неограниченной полосы одинаковых лоренцевских линий с  $p(v_i) \sim |v - v_i|^\alpha$  в режиме НКП

$$\langle W_{01} \rangle_{qv_i} \sim (I/\tau_{RT})^{1/2} \cdot (I\tau_{RT})^{\alpha/2}. \quad (13)$$

Видно, что лишь в случае  $\alpha = 0$  из (13) следует (7).

**Роль формы линий поглощения.** Если поглощение линейно, форма линий влияет лишь на величину вероятности возбуждения, но не на ее зависимость от  $I$ . При нелинейном поглощении  $\langle W_{01} \rangle$  определяется крыльями квазирезонансных линий, которые при столкновительном уширении и смещенной частоте меньше десяти  $\text{см}^{-1}$  можно считать лоренцевскими [8]. Отличие экспериментальной зависимости  $W_{01}(I)$  от корневой будет поэтому указывать на выраженную частотную зависимость параметров линий спектра. Далекие крылья линий (смещенная частота — десятки и сотни  $\text{см}^{-1}$ ), как показывают простые оценки, в нелинейном поглощении при реально достижимых интенсивностях излучения не проявляются. В случае экспоненциального спада крыльев (доплеровский контур) выраженного эффекта КП нет и вероятность колебательного возбуждения хорошо описывается в приближении вращательного «узкого горла» с учетом нескольких ближайших к частоте излучения КВ переходов.

В заключение сформулируем особенности, характерные для лазерного возбуждения колебательных переходов с плотным спектром.

1. Режим коллективного поглощения имеет место при выполнении условия  $\beta = \pi \frac{\Delta v_L}{L} \left( 1 + \frac{4}{\pi} W \tau_{RT} \right)^{1/2} \gg 1$ . При этом, если  $W \tau_{RT} \ll 1$ , режим носит линейный характер, а в противоположном случае — нелинейный. Подчеркнем, что эффект „узкого горла“ реализуется в сильных лазерных полях при  $\beta \ll 1$ .

Вероятность возбуждения колебательного перехода при коллективном поглощении нечувствительна к расстройке частоты излучения с ближайшим КВ переходом, к ширине спектра излучения и к его стабилизации (см. рис. 1 и 2 при  $I \gtrsim 0,1 \text{ МВт}/\text{см}^2$ ). С ростом ширины  $\Delta$  сплошного спектра излучения насыщение вовлекаемых переходов падает и при  $\Delta \gg \Delta v_L$  в условиях линейного поглощения вероятность колебательного возбуждения оказывается независящей от  $\Delta$  и оценивается величиной (8).

2. В режиме нелинейного коллективного поглощения степень зависимости  $W_{01}$  от  $I$  определяется формой крыльев линий поглощения и частотной зависимостью параметров  $A(v_i)$  и  $q(v_i)$  и плотностью линий спектра. Влияние неравномерной плотности линий в полосе на зависимость  $W_{01}$  от  $I$  иллюстрируется формулой (13). Для контуров, имеющих лоренцевские крылья, при выполнении неравенства (12) вероятность  $W_{01} \sim (I/\tau_{RT})^{1/2}$ .

В заключение авторы выражают благодарность А.П. Сухорукову за интерес к работе и полезные обсуждения.

1. Гордиец Б.Ф., Осипов А.И., Шелепин Л.А. Кинетические процессы в газах и молекулярные лазеры. М: Наука. 1980. 512 с.
2. Иванов С.В., Панченко В.Я., Сухоруков А.П. // Вестник Московского университета, сер. 3. Физика. Астрономия. 1984. Т. 25. № 2. С. 64.
3. Chugunov A.V., Djidjoev M.S., Ivanov S.V., Panchenko V.Ya. // Opt. Lett. 1985. V. 10. № 12. P. 615–617.
4. Джиджоев М.С., Иванов С.В., Панченко В.Я., Чугунов А.В. // Квантовая электроника. 1986. Т. 13. № 4. С. 740.
5. Иванов С.В., Панченко В.Я. Статистика спектра поглощения, форма контура колебательно-вращательных линий и модовая структура излучения в задаче лазерного возбуждения колебательного перехода молекул. 1987. 33 с. (Препринт/НИЦТЛАН, № 28).
6. Vaghe A., Seegouin C., Jouve P. et al. // J. Mol. Spectrosc. 1977. V. 64. P. 343.
7. Гуди Р.М. Атмосферная радиация. Ч. I. Основы теории. М.: Мир. 1966. 522 с.
8. Фомин В.В. // В кн.: Спектральные проявления межмолекулярного взаимодействия в газах/Под ред. Ю.С. Макушкина. Новосибирск: Наука. 1982. С. 5–40.

**S . V . I v a n o v , V . Ya . P a n c h e n k o . On Laser Excitation of Molecular Vibrational Transitions with Dense Rotational Spectral Structure.**

Linear and nonlinear absorption of laser radiation at molecular vibrational transitions with dense rotational spectral structure typical for bent triatomic atmospheric molecules have been considered. In quasistationary approximation of incoherent rate equations for populations of energy levels the influence of following factors on optical excitation probability has been studied: frequency instability of radiation, spectral width of radiation, random rotational structure of absorption band, shape of absorption lines. Criteria of linear and nonlinear collective absorption of radiation in a band have been formulated. Conditions of square root dependence of excitation probability upon laser intensity have been determined.