

О.Г. Бузыкин³, С.В. Иванов², А.А. Ионин¹, А.Ю. Козлов¹,
А.А. Котков¹, Л.В. Селезнев¹

Линейное и нелинейное поглощение излучения обертонного СО-лазера в атмосфере

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва

² Институт прикладных лазерно-информационных технологий РАН, г. Троицк Московской обл.

³ Центральный аэрогидродинамический институт им. Н.Е. Жуковского, г. Жуковский Московской обл.

Поступила в редакцию 6.03.2001 г.

Рассмотрено линейное и нелинейное поглощение излучения обертонного СО-лазера различными атмосферными газами. Выбраны линии генерации для использования в спектроскопической абсорбционной диагностике конкретных молекул. Проведен сравнительный анализ спектральных характеристик излучения и поглощения обертонного СО-лазера и химических HF- и DF-лазеров. Представлены данные о 50 наименее и 50 наиболее поглощаемых в атмосфере частотах излучения обертонного СО-лазера. Измерено поглощение различных частот обертонного СО-лазера в смеси N_2O-N_2 . Показано, что с использованием зависимости коэффициента поглощения N_2O от давления буферного газа можно идентифицировать спектральную линию излучения обертонного СО-лазера и определять ее частоту. Рассчитаны спектры нелинейного поглощения интенсивного многочастотного и одночастотного излучения обертонного СО-лазера в атмосфере с целью демонстрации возможности использования этого лазера в новых перспективных схемах диагностики.

Введение

Лазер на первом колебательном обертоне молекулы СО [1, 2] является эффективным источником когерентного ИК-излучения в спектральной области 2,5–4,2 мкм [3–11]. Экспериментально наблюдаемая и теоретически рассчитанная эффективность генерации импульсного обертонного СО-лазера, действующего в многочастотном режиме излучения, достигает 11 и 20% соответственно [6, 9–11]. Частотно-селективный режим излучения импульсного обертонного СО-лазера был экспериментально реализован более чем на 400 колебательно-вращательных (КВ) переходах с максимальной эффективностью 0,6% [7, 9, 11]. Спектральная область излучения обертонного СО-лазера весьма привлекательна, поскольку она перекрывается с окном прозрачности атмосферы 3–5 мкм и полосою поглощения различных естественных и загрязняющих компонент атмосферы, например H_2O , CO_2 , O_3 , CH_4 , N_2O , NO_2 , NO , SO_2 , HCN , NH_3 , H_2CO , $HOCl$, CH_3Cl , CO , HCl , HF , HBr , HI , OH , C_2H_2 , C_2H_4 , C_2H_6 , C_3H_6 , C_3H_8 , C_6H_6 , C_7H_8 , CH_3OH , C_2H_5OH , $C_2H_8N_2$ и т.п. Обертоновые СО-лазеры, таким образом, являются перспективными устройствами для различных приложений в дистанционном зондировании, спектроскопическом газоанализе, медицине. Они способны конкурировать с известными химическими HF (DF)-лазерами [12, 13] и перестраиваемыми генераторами разностной частоты [14, 15], которые работают в том же спектральном диапазоне.

В данной статье рассматривается линейное и нелинейное поглощение излучения обертонного СО-лазера различными атмосферными газами. Выбраны частоты для спектроскопической абсорбционной диагностики конкретных газов. Проведен сравнительный анализ спектральных характеристик поглощения излучения обертонного СО-лазера и HF (DF)-лазеров атмосферными газами. Представлены важные для практики сведения о 50 наименее и 50 наиболее поглощаемых в атмосфере частотах излучения обертонного СО-лазера. Продемонстрированы спектры нелинейного поглощения интенсивного многочастотного излучения обертонного СО-лазера в атмосфере для иллюстрации возможности применения этого лазера в новых схемах диагностики.

1. Линейное поглощение атмосферных газов в спектральной области обертонного СО-лазера

Лазер на первом колебательном обертоне молекулы $^{12}C^{16}O$ имеет линии генерации в области 2,5–4,2 мкм, соответствующей КВ-переходам $(V+2, J-1) - (V, J)$, где $V = 4 \div 36$, $J = 4 \div 25$ [5–11].

Табл. 1 позволяет сравнить спектральные плотности линий излучения обертонного СО-лазера и HF- и DF-лазеров. Положения линий обертонного СО-лазера $V = 4 \div 36$, $J = 4 \div 25$ (всего 726 линий; пока не на всех из них получена генерация) рассчитывались с

Сравнение особенностей спектров излучения и поглощения лазеров на CO, HF и DF в диапазоне 2,5–4,2 мкм

Лазер и спектральный диапазон, см ⁻¹	<i>N</i>	ρ , линий/см ⁻¹	η_{an} , %	Детектируемые молекулы (по HITRAN-96)	η_w , %	η_s , %	η_{ss} , %
CO 2364,93–4034,06	726	0,43	19	H ₂ O, CO ₂ , N ₂ O, CH ₄ , NO ₂ , NH ₃ , OH, HF, HCl, HBr, H ₂ CO, HOCl, HCN, C ₂ H ₂	41	13	28
HF 2749,49–3693,41	58	0,06	33	N ₂ O, NO ₂ , NH ₃ , OH, HF, HCl, H ₂ CO, HOCl, HCN, C ₂ H ₂	26	16	42
DF 2750,08–2463,33	63	0,22	17	N ₂ O, CH ₄ , HBr, H ₂ CO	91	–	–

Примечание. *N* – общее число рассмотренных лазерных линий; ρ – спектральная плотность лазерных линий; η_{an} – доля аналитических лазерных линий среди рассмотренных; η_w , η_s , η_{ss} – доли слабопоглощаемых, сильнопоглощаемых и очень сильнопоглощаемых в атмосфере линий среди аналитических линий.

использованием спектроскопических констант молекулы ¹²C¹⁶O [16]. Положения линий H¹⁹F (всего 58 линий) и D¹⁹F (всего 63 линии) брались из [17]. Поглощение рассчитывалось с помощью базы данных HITRAN-96 [18] для условий стандартной атмосферы США 1976 г. (модель № 6 [19]) на высоте *H* = 0 км. Частоты H¹⁹F соответствовали переходам (*V* + 1, *J* – 1) – (*V*, *J*) с *V* = 0 ÷ 5, *J* = 2 ÷ 15, а частоты D¹⁹F – переходам (1, *J* + 1) – (0, *J*) с *J* = 0 ÷ 14 и (*V* + 1, *J* – 1) – (*V*, *J*) с *V* = 0 ÷ 3, *J* = 1 ÷ 17 (при этом для каждой колебательной полосы был свой диапазон вращательных чисел *J*).

На рис. 1 представлены спектры линейного пропускания основных атмосферных газообразных поглощителей в диапазоне 2,5–4,3 мкм. Водяной пар играет основную роль в поглощении излучения обертонового СО-лазера в коротковолновой части спектра. Но лазерное излучение на длинах волн 3,4–4,2 мкм поглощается очень слабо и поэтому пригодно для эффективной передачи лазерной энергии через атмосферу. Следует отметить, что спектр СО-лазера сильно зависит от спектральных характеристик оптического резонатора. Это позволяет управлять выходным спектром излучения в довольно широком диапазоне.

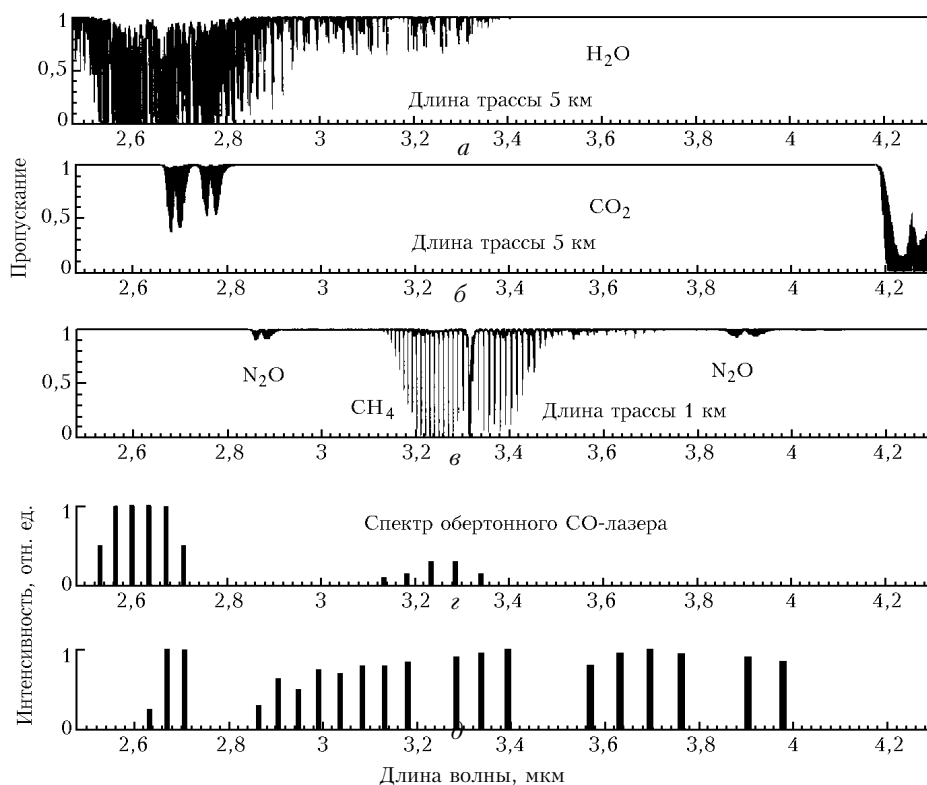


Рис. 1. Спектры линейного пропускания водяного пара (*a*), углекислого газа (*b*), метана и закиси азота (*c*) в области 2,5–4,3 мкм; экспериментально полученные многочастотные спектры обертонового СО-лазера без вращательной структуры (*d*) [5, 6, 9, 10]. Условия стандартной атмосферы на высоте *H* = 0 км: давление 1 атм, температура 288,2 К; концентрации газов: H₂O – 7750, CO₂ – 330, CH₄ – 1,7, N₂O – 0,32 ppmV

1.1. Анализ диагностических возможностей обертоного СО-лазера

Для целей спектроскопической диагностики необходимо иметь резонансные совпадения лазерных частот с сильными линиями детектируемых веществ (такие лазерные частоты называют аналитическими). С помощью базы данных HITRAN-96 [18] был проведен поиск аналитических частот обертоного СО-лазера и HF (DF)-лазеров для детектирования различных атмосферных молекул. Использовались условия стандартной атмосферы США 1976 г. (модель № 6 [19, 20]) на высоте $H = 0$ км: давление 1 атм, температура 288,2 К. Относительные концентрации основных поглощающих газов следующие: $H_2O - 7750$ (относительная влажность 46%), $CO_2 - 330$, $CH_4 - 1,7$, $N_2O - 0,32$ ppmV.

Спектральная форма линий поглощения считалась лоренцевской. Учитывались все изотопные модификации молекул. Для аналитических лазерных частот был использован достаточно строгий критерий отбора: 1) почти точный резонанс лазерной частоты с молекулярной линией поглощения (в пределах полуширины линии поглощения); 2) вклад рассматриваемой молекулярной линии в полное сечение поглощения на данной частоте больше 10^{-20} см². Дополнительно рассчитывались также коэффициенты поглощения отобранных аналитических частот в атмосфере. При детектировании загрязнений в атмосфере эти коэффициенты должны быть малыми. Все аналитические частоты разделены на четыре категории: частоты с малым поглощением (коэффициент поглощения $\alpha_{air} < 0,1$ км⁻¹), со средним ($0,1 < \alpha_{air} < 1$ км⁻¹), с большим ($1 < \alpha_{air} < 10$ км⁻¹) и очень большим ($\alpha_{air} > 10$ км⁻¹). Поглощение вычислялось без учета вклада континуумов H_2O и CO_2 , а также аэрозолей.

Из табл. 1, которая суммирует полученные результаты, видно, что: 1) спектральная область излучения обертоного СО-лазера значительно шире, чем HF- и DF-лазеров; 2) спектральная плотность линий излучения для обертоного СО-лазера больше, чем для HF- и DF-лазеров; 3) число аналитических частот ($N \cdot \eta_{ан}$) обертоного СО-лазера (138) заметно превышает число аналитических частот HF (19) и DF (11); 4) доля слабопоглощаемых в атмосфере линий обертоного СО-лазера достаточно высокая, однако она является промежуточной в сравнении с HF- и DF-лазерами (лидер – DF-лазер); 5) общая доля сильно и очень сильнопоглощаемых аналитических линий для обертоного СО-лазера меньше, чем у HF-лазера (у DF-лазера таких линий нет); 6) обертоный СО-лазер, безусловно, лидирует по разнообразию детектируемых газов. Таким образом, обертоный СО-лазер обладает значительными возможностями для приложений в спектроскопическом газоанализе, причем эти возможности в целом больше, чем у HF- и DF-лазеров.

Для практического использования лазеров в атмосферной оптике весьма важно определить частоты, поглощение которых в воздухе максимально и минимально. Результаты для 50 таких частот обертоного СО-лазера представлены в табл. 2 и 3. Условия расчета

были те же, что и для табл. 1, однако дополнительно учитывался вклад континуумов H_2O и CO_2 . Из приведенных данных следует, что для слабопоглощаемых лазерных линий вклад континуума весьма существенный.

Таблица 2

Пятьдесят наиболее поглощаемых частот излучения обертоного СО-лазера

Лазерная линия	$\nu, \text{см}^{-1}$	$\alpha_{air}, \text{км}^{-1}$	
		С континуумом	Без континуума
8-6 P(21)	3853,96327	10043,0	10036,0
9-7 P(6)	3870,07913	7503,0	7497,0
12-10 P(25)	3629,55301	4155,0	4151,0
12-10 P(17)	3668,72055	3075,0	3069,0
38-36 P(24)	2369,18124	2924,0	2924,0
8-6 P(23)	3843,75541	2797,0	2790,0
9-7 P(10)	3853,59929	2038,0	2032,0
9-7 P(16)	3826,82768	1405,0	1397,0
13-11 P(8)	3656,48902	1378,0	1372,0
7-5 P(17)	3925,17210	1150,0	1148,0
14-12 P(7)	3609,43154	1125,0	1121,0
10-8 P(14)	3784,62486	717,0	710,0
9-7 P(15)	3831,45951	690,0	683,0
12-10 P(21)	3649,67172	581,0	575,0
9-7 P(8)	3861,97677	554,0	547,0
12-10 P(12)	3691,01304	553,0	547,0
10-8 P(11)	3797,80367	546,0	539,0
10-8 P(20)	3756,43786	524,0	517,0
10-8 P(21)	3751,50457	514,0	508,0
9-7 P(5)	3874,02676	508,0	502,0
10-8 P(23)	3741,43748	506,0	499,0
38-36 P(25)	2364,92918	483,0	483,0
13-11 P(17)	3617,90477	472,0	467,0
9-7 P(17)	3822,12824	464,0	456,0
11-9 P(23)	3690,51185	406,0	399,0
15-13 P(5)	3566,13858	398,0	396,0
10-8 P(10)	3802,06014	388,0	381,0
12-10 P(7)	3711,60138	377,0	370,0
8-6 P(24)	3838,55148	334,0	327,0
16-14 P(12)	3488,03866	312,0	312,0
10-8 P(24)	3736,30397	283,0	277,0
9-7 P(20)	3807,62563	274,0	267,0
11-9 P(8)	3758,91458	268,0	262,0
7-5 P(21)	3905,41978	261,0	258,0
38-36 P(23)	2373,36532	258,0	258,0
11-9 P(16)	3724,32725	244,0	237,0
14-12 P(11)	3593,37840	240,0	238,0
10-8 P(18)	3766,10319	239,0	232,0
8-6 P(17)	3873,57501	235,0	229,0
10-8 P(5)	3822,31232	232,0	224,0
9-7 P(21)	3802,65716	226,0	219,0
9-7 P(7)	3866,06242	224,0	218,0
15-13 P(15)	3525,67663	221,0	221,0
8-6 P(13)	3892,10702	210,0	205,0
11-9 P(10)	3750,67740	208,0	202,0
11-9 P(11)	3746,45604	202,0	195,0
8-6 P(10)	3905,29186	199,0	196,0
10-8 P(9)	3806,24812	189,0	182,0
12-10 P(13)	3686,69029	178,0	171,0
13-11 P(10)	3648,39215	174,0	168,0

Примечание. Рассмотрено 726 KB-переходов молекулы $^{12}C^{16}O$ ($V + 2, J - 1 \rightarrow (V, J)$ с $J = 4 + 25$ и $V = 4 + 36$. Стандартная атмосфера США 1976 г. (модель № 6 [19]) на высоте $H = 0$ км.

Таблица 3

Пятьдесят наименее поглощаемых в атмосферном воздухе частот излучения обертоного СО-лазера

Лазерная линия	ν , см^{-1}	α_{air} , км^{-1}	
		С континуумом	Без континуума
31-29 P(9)	2760,68731	0,0106	0,0026
34-32 P(9)	2616,37580	0,0107	0,0014
31-29 P(13)	2746,45306	0,0113	0,0034
33-31 P(22)	2615,02977	0,0118	0,0024
31-29 P(16)	2735,06054	0,0120	0,0040
31-29 P(24)	2701,70687	0,0131	0,0050
30-28 P(18)	2775,11382	0,0131	0,0051
34-32 P(13)	2602,54833	0,0136	0,0035
28-26 P(23)	2849,91696	0,0137	0,0052
29-27 P(22)	2806,26756	0,0138	0,0056
34-32 P(4)	2632,10366	0,0138	0,0048
32-30 P(16)	2687,10766	0,0141	0,0057
33-31 P(19)	2627,44142	0,0142	0,0051
32-30 P(4)	2728,56865	0,0144	0,0064
32-30 P(15)	2690,93954	0,0147	0,0064
33-31 P(23)	2610,75792	0,0149	0,0054
33-31 P(18)	2631,44358	0,0151	0,0062
32-30 P(11)	2705,58525	0,0153	0,0072
33-31 P(14)	2646,77331	0,0153	0,0064
33-31 P(8)	2667,71626	0,0157	0,0069
32-30 P(24)	2654,01934	0,0163	0,0074
33-31 P(12)	2654,02896	0,0165	0,0076
31-29 P(25)	2697,23596	0,0166	0,0084
34-32 P(15)	2595,22263	0,0172	0,0068
33-31 P(25)	2602,01305	0,0174	0,0073
29-27 P(25)	2792,85529	0,0177	0,0096
33-31 P(13)	2650,43535	0,0177	0,0088
32-30 P(9)	2712,49707	0,0178	0,0097
27-25 P(23)	2898,10094	0,0178	0,0081
34-32 P(11)	2609,59976	0,0181	0,0086
29-27 P(8)	2860,84429	0,0184	0,0099
34-32 P(14)	2598,91970	0,0186	0,0084
32-30 P(18)	2679,24032	0,0187	0,0102
29-27 P(14)	2839,08263	0,0190	0,0106
34-32 P(23)	2563,19871	0,0193	0,0063
33-31 P(7)	2670,96560	0,0193	0,0107
34-32 P(10)	2613,02227	0,0194	0,0099
34-32 P(5)	2629,09721	0,0195	0,0105
31-29 P(12)	2750,11431	0,0198	0,0118
33-31 P(6)	2674,14565	0,0204	0,0118
27-25 P(25)	2888,95738	0,0204	0,0111
33-31 P(21)	2619,23439	0,0204	0,0112
29-27 P(12)	2846,60978	0,0205	0,0121
29-27 P(6)	2867,54936	0,0205	0,0118
34-32 P(17)	2587,62375	0,0207	0,0098
34-32 P(18)	2583,72221	0,0207	0,0094
32-30 P(23)	2658,39071	0,0207	0,0119
35-33 P(17)	2539,92998	0,0208	0,0045
32-30 P(17)	2683,20788	0,0209	0,0125
34-32 P(6)	2626,02105	0,0213	0,0122

Примечание. Рассмотрено 726 КВ-переходов молекулы $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$ ($V+2, J-1 \rightarrow V, J$) с $J = 4 + 25$ и $V = 4 + 36$. Стандартная атмосфера США 1976 г. (модель № 6 [19]) на высоте $H = 0$ км.

1.2. Поглощение излучения обертоного СО-лазера в закиси азота

Высокая плотность спектральных линий излучения обертоного СО-лазера усложняет идентификацию лазерного КВ-перехода, поэтому в экспериментах по исследованию генерационных характеристик импульсного обертоного СО-лазера для идентификации лазерного перехода проводилось измерение линейного поглощения излучения в закиси азота. Молекула N_2O – несимметричная трехатомная молекула с хорошо известными спектральными характеристиками [18]. Смесь N_2O с N_2 напускалась в кювету длиной 2 м. В кювету направлялось излучение обертоного СО-лазера, работавшего в режиме генерации излучения на одной спектральной линии. Коэффициент поглощения определялся по соотношению энергии импульсов прошедшего и падающего излучения с калибровкой по прохождению в чистом азоте и вакууме.

Лазерное излучение с длиной волны 3,9 мкм поглощается закисью азота при возбуждении симметричной моды колебаний 20^{00} . Частота центра обертоного перехода $35 \rightarrow 33 P(13)$ СО ($2554,7228 \text{ см}^{-1}$) отстоит от центра ближайшей сильной линии поглощения основного изотопа $^{14}\text{N}_2^{16}\text{O}$ ($P10E, \nu_0 = 2554,6535 \text{ см}^{-1}$) на $\sim 0,07 \text{ см}^{-1}$ [18]. Полуширина этой линии составляет примерно $0,08 \text{ см}^{-1} \cdot \text{атм}^{-1}$. Вследствие уширения линии поглощения с увеличением давления азота (при постоянном парциальном давлении закиси азота 0,01 атм) коэффициент поглощения возрастал до 1 м^{-1} (рис. 2,а), что согласуется с расчетным значением поглощения.

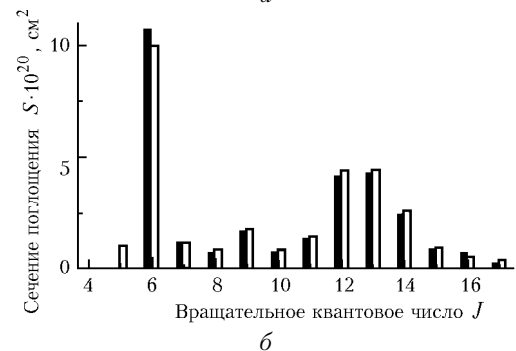
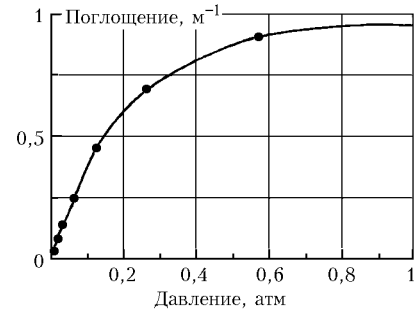


Рис. 2. Зависимость коэффициента поглощения излучения обертоного СО-лазера, действующего на переходе $35 \rightarrow 33 P(13)$, от давления смеси газов закиси азота N_2O и азота N_2 при постоянном парциальном давлении закиси азота 0,01 атм (а) и сечение поглощения закисью азота N_2O излучения обертоного СО-лазера для вращательных компонент колебательно-го перехода $35 \rightarrow 33 P(J)$ (б); ■ – эксперимент; □ – теория

Коэффициент поглощения был измерен для одиннадцати вращательных компонент колебательной полосы $35 \rightarrow 33$ (от $J = 6$ до $J = 17$). На основе этих измерений были определены сечения поглощения, которые оказались в хорошем согласии с расчетными данными (рис. 2, б). Эти эксперименты показали, что частота излучения обертонового СО-лазера даже на таком высоко возбужденном переходе, как $35 \rightarrow 33$, совпадает с расчетным значением с точностью, по крайней мере, порядка 10^{-5} , т.е. с точностью до нескольких сотых обратного сантиметра.

2. Нелинейное поглощение излучения обертонового СО-лазера

Самосогласованная теоретическая модель и компьютерная программа для моделирования атмосферных спектров поглощения в условиях воздействия интенсивного ИК-излучения были описаны ранее в [21–24]. Модель и программа состоят из двух взаимосвязанных частей – спектроскопической и кинетической. В спектроскопической части вычисляются спектры сечения и коэффициента поглощения смеси H_2O , CO_2 , N_2 , O_2 с использованием сведений о заселенностях колебательных уровней рассматриваемых молекул, газовой температуре и давлении, которые зависят от кинетики лазерного возбуждения и релаксации. В свою очередь, данные о сечении поглощения интенсивного лазерного излучения служат входной информацией для кинетической части.

Расчеты нелинейного поглощения многочастотного излучения обертонового СО-лазера проводились для спектра лазерного излучения, представленного на рис. 1, з, для условий тропической атмосферы (модель № 1 [19, 20]) на высотах $H = 0$ и 10 км. Для $H = 0$ км давление составляет 1 атм, температура 299,7 К; концентрации газов H_2O и CO_2 – 25900 и 330 ppmV. Для $H = 10$ км давление составляет 0,282 атм, температура 237 К; концентрации газов H_2O и CO_2 – 191 и 330 ppmV. Учитывались только основные изотопные модификации молекул.

Рис. 3 иллюстрирует временные эволюции коэффициентов поглощения в отдельных лазерных линиях обертонового СО-лазера и показывает значительное изменение поглощения в процессе лазерной накачки воздуха. Для некоторых линий коэффициент поглощения увеличивается, в то время как для других уменьшается. Анализ показал, что этот эффект обусловлен лазерным нагревом воздуха (в рассматриваемом случае при длительности импульса излучения ~3 мс температура достигает 548 К). Такой нагрев будет приводить к заметной деформации спектра излучения в процессе распространения лазерного импульса, а также к соответствующему изменению показателя преломления и тепловому расплыванию лазерного пучка.

Результаты моделирования нелинейного поглощения излучения обертонового СО-лазера в атмосфере представлены на рис. 4, 5. В расчетах использовался

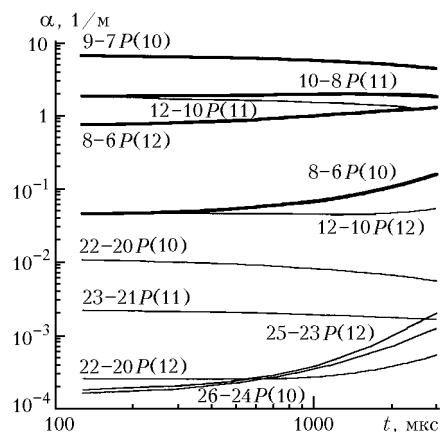


Рис. 3. Временная эволюция коэффициентов поглощения в атмосфере для отдельных колебательно-вращательных линий излучения обертонового СО-лазера. Интенсивность излучения 10 кВт/см^2 для типичного лазерного спектра (см. рис. 1, з). Условия тропической атмосферы на высоте $H = 0$ км. Континуальное поглощение не учитывается. Жирные кривые соответствуют лазерным линиям обертонового СО-лазера, обладающим значительной относительной интенсивностью в спектре излучения

спектр генерации, перекрывающийся с полосой ν_3 H_2O . Отметим, что только высокочастотная группа лазерных линий ($3680\text{--}3960 \text{ см}^{-1}$) эффективно взаимодействует с этой полосой. Из рис. 4 видно, что лазерное воздействие на водяной пар проявляется не только в уменьшении поглощения (лазерное просветление), но также и в его увеличении (лазерно-индуцированное поглощение). Поскольку природа изменений поглощения в данном случае чисто тепловая, то естественно, что изменения в поглощении воздуха обнаруживаются не только в районе частот накачки, но и в отдаленных спектральных областях. Заметное уменьшение (вплоть до 3 раз) поглощения происходит в районе центров полос ν_2 и ν_3 H_2O (≈ 1600 и 3800 см^{-1}), а также в полосе ν_3 CO_2 . Значительное увеличение поглощения (вплоть до десятков раз для слабых линий), вызванное лазерным нагревом, имеет место для многих линий водяного пара. Сложные изменения поглощения происходят в области $1200\text{--}2200 \text{ см}^{-1}$ (уменьшение и «фиолетовый» сдвиг поглощения в области полосы ν_2 H_2O , увеличение и «красный» сдвиг поглощения в области полосы $2\nu_2 - \nu_2$ H_2O). Расчеты показали, что лазерно-индуцированные изменения в атмосферном поглощении сильно зависят от спектрального состава излучения и высоты. Например, уже на высоте $H = 10$ км изменения в спектре поглощения незначительны (изменение температуры для тех же параметров излучения, что и на рис. 4, незначительно из-за малого поглощения на данной высоте).

Совместное действие лазерного нагрева и эффекта насыщения поглощения проявляется на малых временах при больших интенсивностях излучения. Высокая пиковая интенсивность при малой длительности импульса может быть получена в режиме модуляции добротности лазера. На рис. 5 представлены

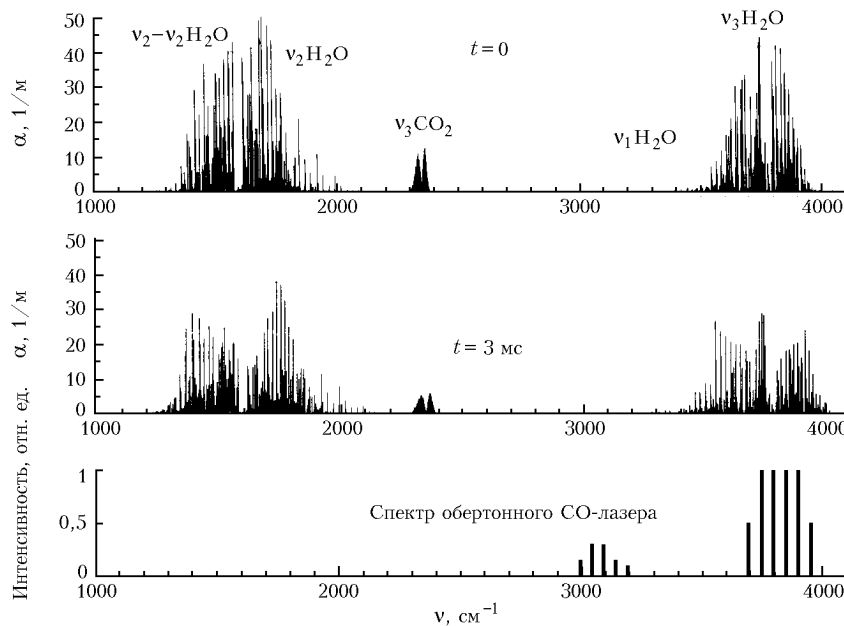


Рис. 4. Атмосферное поглощение в области 1000–4000 см^{-1} до ($t = 0$) и после ($t = 3$ мс) действия излучения СО-лазера. Интенсивность излучения 10 $\text{кВт}/\text{см}^2$. Условия тропической атмосферы на высоте $H = 0$ км. Континуальное поглощение не учитывается. Спектр лазерного излучения без вращательной структуры показан внизу

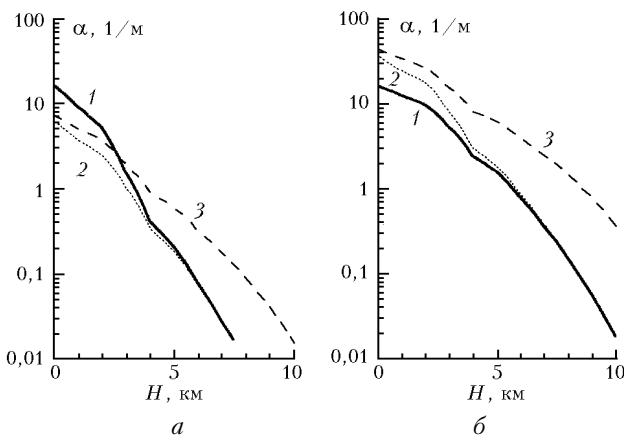


Рис. 5. Высотные профили коэффициента поглощения для тропической атмосферы на частотах зондирования 3546,9 см^{-1} (а) и 3752,2 см^{-1} (б) при воздействии на пары воды излучения обертоного СО-лазера (линия 8–6 $P(21)$, $\nu = 3853,9633$ см^{-1}). Интенсивность излучения $I = 1$ $\text{МВт}/\text{см}^2$, длительность импульса 1 мкс. Континуальное поглощение учтено. 1 – учет насыщения поглощения и роста температуры; 2 – учет только насыщения поглощения, температура воздуха в пучке постоянна и равна температуре атмосферы на данной высоте; 3 – линейное поглощение ($I = 0$)

зависимости коэффициента поглощения от высоты в атмосфере для двух зондирующих частот. Лазерный нагрев, обусловленный поглощением частоты накачки, с ростом высоты уменьшается (на высоте $H = 0$ км температура достигает 490 К, а уже при $H > 7$ км нагрев незначителен). Что касается эффекта насыщения поглощения, то он для рассматриваемой частоты накачки усиливается с ростом высоты из-за увеличения сечения поглощения и времени

столкновительной релаксации уровней H_2O . На частоте зондирования 3546,9 см^{-1} поглощение растет с ростом температуры, а на 3752,2 см^{-1} – падает, эффект же насыщения поглощения накачки уменьшает поглощение на обеих зондирующих частотах. Сказанное объясняет поведение высотных профилей $\alpha(H)$ на рис. 5. В частности, становится ясно, почему зависимость $\alpha(H)$ для случая (б) оказывается в целом более пологой, чем для случая (а).

Выводы

1. Сравнительный анализ спектральных характеристик излучения обертоного СО-лазера и лазеров на HF и DF показал, что спектральная область излучения обертоного СО-лазера 2,5–4,2 $\mu\text{м}$ перекрывает области HF- и DF-лазеров, причем плотность частот излучения для СО-лазера значительно выше. Возможности обертоного СО-лазера весьма привлекательны для разнообразных приложений в дистанционном зондировании, спектроскопическом газоанализе и медицине, причем эти возможности в целом больше, чем HF- и DF-лазеров.

2. Водяной пар играет основную роль в ослаблении излучения обертоного СО-лазера в атмосфере. Многие частоты испытывают сильное поглощение (для некоторых из них коэффициент поглощения превышает 1 м^{-1}). Такое поглощение пока не достижимо для HF- и DF-лазеров. Линии обертоного СО-лазера с сильным поглощением в H_2O могут использоваться для лазерного нагрева сред, содержащих воду, например в медицине. С другой стороны, линии излучения данного лазера с $\lambda \geq 3,4$ $\mu\text{м}$ удобны для эффективной передачи энергии через атмосферу.

3. Измерен коэффициент поглощения в записи азота для одиннадцати вращательных компонент колебательной полосы CO $35 \rightarrow 33$ ($J = 6 \dots 17$). Определены сечения поглощения, оказавшиеся в хорошем согласии с расчетными данными. Эксперименты также показали, что частота излучения обертонового СО-лазера даже на таком высоко возбужденном переходе, как $35 \rightarrow 33$, совпадает с расчетным значением с точностью, по крайней мере, порядка 10^{-5} , т.е. с точностью до нескольких сотых обратного сантиметра.

4. Характер изменения коэффициентов поглощения для различных частот в процессе поглощения мощного многочастотного излучения обертонового СО-лазера в атмосфере может быть различным – увеличение или уменьшение (для некоторых частот изменения достигают нескольких раз). Интенсивное излучение обертонового СО-лазера может сильно изменить спектр поглощения атмосферного воздуха. Расчеты показали, что лазерно-индуцированные нелинейные изменения в атмосферном поглощении сильно зависят от интенсивности и спектрального состава излучения, высоты в атмосфере, поглощающего вещества и его концентрации. Обнаружено также взаимодействие эффектов нагрева воздуха излучением накачки и насыщения поглощения накачки, имеющее место на малых временах действия излучения при больших интенсивностях. Это взаимодействие по-разному проявляется на различных зондирующих частотах, что заметно сказывается на соответствующих высотных профилях коэффициента поглощения.

Нелинейные лазерно-индуцированные трансформации спектра поглощения воздуха могут использоваться в будущем для разработки новых методов спектроскопической диагностики молекулярных газов.

1. Bergman R.C., Rich J.W. Overtone band lasing at 2.7 – 3.1 μm in electrically excited CO // Appl. Phys. Lett. 1977. V. 31. P. 597–599.
2. Басов Н.Г., Данильчев В.А., Ионин А.А., Казакевич В.С., Ковш И.Б. Охлаждаемый электроионизационный лазер на двухквантовых переходах молекулы CO // Квант. электрон. 1978. Т. 5. № 8. С. 1855–1857.
3. Ionin A.A., Klimachev Yu.M., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Sinityn D.V., Turkin N.G. Experimental and Theoretical Study on First-Overtone Carbon Monoxide Laser Physics. Preprint / P.N. Lebedev Physics Institute (Moscow). 1998. № 11. 55 p.
4. Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G. Parametric study of first-overtone CO-laser with suppressed fundamental band lasing: experiment and theory // Opt. Commun. 1998. V. 155. № 1–3. P. 197–205.
5. Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G. Pulsed first-overtone CO-laser: effective source of IR radiation in spectral range of 2.5 – 4.0 μm // Opt. Commun. 1999. V. 160. P. 255–260.
6. Basov N., Hager G., Ionin A., Kotkov A., Kurnosov A., McCord J., Napartovich A., Seleznev L., Turkin N. Pulsed first-overtone CO-laser with output efficiency higher than 10% // Opt. Commun. 1999. V. 171. P. 107–112.

7. Basov N.G., Hager G.D., Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., McCord J.E., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G. Frequency tunable single-line pulsed first-overtone carbon monoxide laser // Opt. Commun. 2000. V. 180. P. 285–300.
8. Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G. Alternation of vibrational band intensities in multiline pulsed first-overtone CO-laser spectrum // Opt. Commun. 2000. V. 178. P. 377–381.
9. Basov N.G., Hager G.D., Ionin A.A., Kotkov A.A., Kurnosov A.K., McCord J.E., Napartovich A.P., Seleznev L.V., Turkin N.G. Efficient pulsed first-overtone CO-laser operating within the spectral range of 2.5–4.2 μm // IEEE J. Quantum Electron. 2000. V. 36. P. 810–823.
10. Басов Н.Г., Ионин А.А., Котков А.А., Курносков А.К., МакКорд Дж.Е., Напартович А.П., Селезнев Л.В., Туркин Н.Г., Хагер Г.Д. Импульсный лазер на первом обертоне молекулы CO, действующий в спектральном диапазоне 2,5–4,2 мкм. 1. Многочастотный режим генерации // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 9. С. 771–777.
11. Басов Н.Г., Ионин А.А., Котков А.А., Курносков А.К., МакКорд Дж.Е., Напартович А.П., Селезнев Л.В., Туркин Н.Г., Хагер Г.Д. Импульсный лазер на первом обертоне молекулы CO, действующий в спектральном диапазоне 2,5–4,2 мкм. 2. Частотно-селективный режим генерации // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 10. С. 859–866.
12. Agroskin V.Ya., Bravy B.G., Kirianov V.I., Papin V.G., Vasiliev G.K. Mobile pulsed chain HF/DF laser: prospects for remote analysis of atmosphere // Proc. Int. Conf. «LASERS'98», 7–11 Dec. 1998. Tucson, AZ, USA / Ed. by V. Corcoran & T. Goldman. STS Press, McLean, VA, USA, 1999. P. 469.
13. Великанов С.Д., Елутин А.С., Кудряшов Е.А., Пегов И.Н., Синьков С.Н., Фролов Ю.Н. Применение DF-лазера для анализа углеводородов в атмосфере // Квант. электрон. 1997. Т. 24. № 3. С. 279–282.
14. Красников В.В., Пшеничников М.С., Разумихина Т.Б., Соломатин В.С., Холодных А.И. Трассовый газоанализ атмосферы с помощью лазерного ИК-спектрометра трехмикронного диапазона с разрешением 0,1 cm^{-1} // Оптика атмосфер. 1990. Т. 3. № 4. С. 436–443.
15. Ivanov S.V., Novoderezhkin V.I., Panchenko V.Ya., Solomatina V.S., Kholodnykh A.I. Laser Infrared Spectrometer for Atmosphere Gas Analysis and Medicine // Opt. Eng. 1994. V. 33. № 10. P. 3202–3205.
16. Guelachvili G., Villeneuve D., Farrenq R., Urban W., Verges J. Dunham coefficients for seven isotopic species of CO // J. Mol. Spectrosc. 1983. V. 98. № 1. P. 64–79.
17. Sengupta U.K., Das P.K., Rao K.N. Infrared laser spectra of HF and DF // J. Mol. Spectrosc. 1979. V. 74. № 2. P. 322–326.
18. Rothman L.S., Gamache R.R., Tipping R.H., Rinsland C.P., Smith M.A.H., Chris Benner D., Malathy Devi V., Flaud J.-M., Camy-Peyret C., Perrin A., Goldman C., Massie S.T., Brown L.R., Toth R.A. The HITRAN molecular database: editions of 1991 and 1992 // J. Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer. 1992. V. 48. P. 469–507. [Update HITRAN-96 version on CD-ROM.]
19. Anderson G., Clough S., Kneizys F., Chetwynd J., and Shettle E. AFGL Atmospheric Constituent Profiles (0 – 120 km) // Air Force Geophysics Laboratory, AFGL-TR-86-0110, Environmental Research Paper. 1986. № 954.
20. De Bièvre P., Gallet M., Holden N.E., Barnes I.L. Isotopic Abundances and Atomic Weights of the Elements // J. Phys. and Chem. Ref. Data. 1984. V. 13. P. 809–891.

21. *Ivanov S.V., Buzykin O.G., Rusyanov D.A.* Atmospheric transmission control with infrared lasers // Proc. SPIE. 1998. V. 3688. P. 501–507.
22. *Buzykin O.G., Ionin A.A., Ivanov S.V., Kotkov A.A., Seleznev L.V., Shustov A.V.* Resonant absorption of first-overtone CO-laser radiation by atmospheric water vapor and pollutants. Preprint / P.N. Lebedev Physics Institute (Moscow). 2000. № 12. 31 p.
23. *Buzykin O.G., Ionin A.A., Ivanov S.V., Kotkov A.A., Seleznev L.V., Shustov A.V.* Propagation of overtone CO-laser radiation through the atmosphere // Proc. Int. Conf. «LASERS 2000», 4–8 Dec. 2000. Albuquerque, NM, USA. STS Press, McLean, VA, USA, 2001.
24. *Бузыкин О.Г., Ионин А.А., Иванов С.В., Козлов А.Ю., Котков А.А., Селезнев Л.В., Шустов А.В.* Резонансное поглощение излучения обертонового СО-лазера в газообразных средах // Материалы Научной сессии МИФИ-2001. Т. 4. С. 45.

O.G. Buzykin, S.V. Ivanov, A.A. Ionin, A.Yu. Kozlov, A.A. Kotkov, L.V. Seleznev. **Linear and nonlinear absorption of first-overtone CO-laser radiation in the atmosphere.**

Linear and nonlinear absorption of first-overtone CO-laser radiation by different atmospheric gases is considered. Emission lines are selected for using in spectroscopic absorption diagnostics of particular molecules. Comparative analysis of emission and absorption spectral features is made for first-overtone CO-laser and chemical HF- and DF-lasers. The information on 50 the least and 50 the most absorbing frequencies of first-overtone CO-laser radiation in the atmosphere is presented. The absorption is measured for different frequencies of overtone CO-laser in N₂O–N₂ mixture. It is shown that with using the dependence of N₂O absorption coefficient on foreign gas pressure it is possible to identify the spectral line of overtone CO-laser and define its frequency. Spectra of nonlinear absorption of intense multifrequency and monochromatic radiation of first-overtone CO-laser in the atmosphere are calculated to demonstrate the possibility of using this laser in new advanced diagnostics schemes.