

Diss. ETH No. 9957 2x.8

**NEW PHENOMENA RELATED TO PULSED FAR-INFRARED  
SUPERRADIANT AND RAMAN EMISSIONS**

A DISSERTATION

submitted to the  
SWISS FEDERAL INSTITUTE  
of  
TECHNOLOGY ZURICH  
ETH

for the degree of  
Doctor of Natural Sciences

presented by  
DAMIEN PHILIPPE SCHERRER  
Dipl. Phys. ETH  
born February 12, 1963  
citizen of Geneva

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. F. K. Kneubühl, ETH Zurich, referee  
PD. Dr. H. J. Schötzau, AEW Aarau, Switzerland, co-referee

Zurich, November 1992

## SUMMARY

In order to produce ultrashort far-infrared (FIR) laser pulses we have investigated the superradiance and Raman emission of various molecular transitions, e.g.  $496\ \mu\text{m-CH}_3\text{F}$ ,  $385\ \mu\text{m-D}_2\text{O}$ ,  $373\ \mu\text{m-CH}_3\text{CN}$ ,  $291\ \mu\text{m-}$  and  $151\ \mu\text{m-NH}_3$ , optically pumped by rapidly truncated  $10\ \mu\text{m-CO}_2$  laser pulses produced by an optical-free-induction decay (OFID)  $10\ \mu\text{m-CO}_2$  laser system. Forward and backward superradiance, i.e. emission parallel and anti-parallel to the propagation direction of the  $\text{CO}_2$  pump pulses, has been confirmed by the measurement of the pressure dependence of the pulse intensity as well as duration and delay versus the pump pulses. We have found that the durations of the superradiant FIR pulses are considerably shorter than the conventional pulsewidth limit given by the inverse linewidth of the transition. Thus, we have demonstrated that the fast truncation of about 10 ps of the plasma shutter used in our OFID  $10\ \mu\text{m-CO}_2$  laser system is essential for the reduction of the duration of FIR superradiant pulses. We have found that the backward FIR emissions are superradiant over the whole range of our experimental investigations and show high quality with respect to stability and reproducibility. This is important for applications. For the forward emissions we have observed as expected theoretically the onset of swept-gain superradiance and the appearance of Raman emission with increasing pressure in the FIR cell. This implies line competition between the superradiant emission and the Raman emission and results therefore in different emission regimes which we have systematically investigated. Thus, we have found emission regimes ideal to produce well-defined nano- and subnanosecond FIR single pulses which are among the shortest produced hitherto. In the case of  $\text{CH}_3\text{F}$  we have found that the short pulses exhibit the K-multiplet of this molecule which thus allowed us to study the variation of the contribution of the different K-subbranches for changing experimental conditions.

Subsequently, we have also investigated the possibility to generate ultra-short FIR single pulses by optical pumping of the strong  $496\ \mu\text{m-CH}_3\text{F}$  and  $291\ \mu\text{m-NH}_3$  emissions with ps-OFID- $\text{CO}_2$  pulses. Thus, we have found limitations for the realization such as the low energy and the frequency structure of the OFID pulses which have been analysed.

In our experiments we have furthermore investigated systematically the evolution of the truncated  $\text{CO}_2$ -pump pulses in the FIR superradiant cell. On this occasion we have found that the  $\text{CO}_2$ -pump radiation and the generated FIR emission interact mutually in the case of their simultaneous presence, i.e. in the forward emission configuration when the FIR emission occurs principally as Raman emission. This interaction results in anticorrelated fluctuations of the two fields. We have been able to interpret this

phenomenon as a result of periodic back-and-forth fluctuations of the  $\Lambda$ -like three-level molecular systems.

Our investigations on the evolution of the  $\text{CO}_2$ -pump pulses in the FIR superradiant cell have also revealed the development of OFID of the truncated  $\text{CO}_2$ -pump pulses in the FIR-laser gases. Thus, we have demonstrated that OFID is observed for all  $\text{CO}_2$ -laser-pump lines which induce FIR Raman emission. In addition, we have discovered that OFID can also occur for  $\text{CO}_2$ -laser lines which do not generate FIR Raman emission in our system depending on the absorption characteristics of the FIR-laser gas. As a result of these studies, we have generated for the first time ps-10  $\mu\text{m}$ - $\text{CO}_2$ -OFID pulses with FIR-laser gases instead of the usual hot  $\text{CO}_2$  gas as spectral filter. The advantages of our new OFID system based on FIR laser gases over the standard ps- $\text{CO}_2$ -OFID working with hot  $\text{CO}_2$  gas as spectral filter are the relevant wavelength selectivity and a compacter and simpler experimental design.

## ZUSAMMENFASSUNG

Mit dem Ziel, ultrakurze ferninfrarote (FIR) Laserpulse zu erzeugen, haben wir die Superstrahlung und die Raman-Strahlung verschiedener molekularer Uebergänge untersucht, z.B.  $496\ \mu\text{m-CH}_3\text{F}$ ,  $385\ \mu\text{m-D}_2\text{O}$ ,  $373\ \mu\text{m-CH}_3\text{CN}$ ,  $291\ \mu\text{m-}$  und  $151\ \mu\text{m-NH}_3$ . Diese Uebergänge wurden optisch gepumpt mit innerhalb 10 ps abgeschnittenen  $10\ \mu\text{m-CO}_2$  Laserpulsen, die von einem auf optisch freiem Induktionszerfall (OFID) basierenden Kurzpuls-Lasersystem erzeugt sind. Vorwärts- und Rückwärts-Superstrahlung, d.h. Strahlung parallel und antiparallel zur Fortpflanzungsrichtung der  $\text{CO}_2$ -Pumpulse, wurde bestätigt durch Messungen der Druckabhängigkeit der Pulseintensität, der Pulsdauer sowie der Verzögerung gegenüber den Pumpulsen. Wir haben festgestellt, dass die Dauer der FIR Superstrahlungspulse beträchtlich kürzer ist als die übliche Pulsdauergrenze, welche gegeben ist durch das Inverse der Uebergangslinienbreite. Wir haben somit bewiesen, dass das schnelle Abschneiden innerhalb von 10 ps durch den in unserem OFID  $10\ \mu\text{m-CO}_2$  Lasersystem benützten Plasmaschalter wesentlich ist für die Reduzierung der FIR Superstrahlungspulsdauer. Ebenso haben wir festgestellt, dass die FIR Rückwärts-Strahlung über den ganzen Bereich unserer experimentellen Untersuchungen superstrahlend ist und hohe Qualität bezüglich Stabilität und Reproduzierbarkeit aufweist, was für Anwendungen wichtig ist. Für die FIR Vorwärts-Strahlung haben wir, wie theoretisch zu erwarten ist, das Einsetzen von "swept-gain" Superstrahlung und die Entwicklung von Raman-Strahlung mit zunehmenden Druck in der FIR Gaszelle beobachtet. Daraus ergibt sich Linien-Wettbewerb zwischen Superstrahlung und Raman-Strahlung, was in verschiedenen von uns definierten und systematisch untersuchten Strahlungstypen resultiert. Wir haben Strahlungstypen gefunden, die ideal sind um gut definierte Nano- und Subnanosekunden FIR Einzelpulse zu produzieren, welche zu den bisher kürzesten FIR Laserpulsen gehören. Im Falle von  $\text{CH}_3\text{F}$  haben wir nachgewiesen, dass die kurzen Pulse die K-Multiplett-Stuktur dieser Moleküle widerspiegeln. Dies ermöglichte uns die Beitragsvariationen der verschiedenen K-Sublinien für veränderliche experimentelle Bedingungen zu studieren.

Nachträglich haben wir auch die Möglichkeit untersucht, ultrakurze FIR Pulse zu produzieren durch optisches Pumpen der starken  $496\ \mu\text{m-CH}_3\text{F}$  und  $291\ \mu\text{m-NH}_3$  Uebergänge mit ps-OFID- $\text{CO}_2$  Pulsen. Daraus ergaben sich Begrenzungen für die Realisierung solcher Experimente wie zum Beispiel die ungenügende Energie oder das für OFID Pulse typische Frequenzspektrum.

In unseren Experimenten haben wir ferner die Verformung der abgeschnittenen  $\text{CO}_2$ -Pumpulse in der FIR Superstrahlungsgaszelle systematisch untersucht. Dabei haben wir erstmals festgestellt, dass die  $\text{CO}_2$ -Pumpstrahlung und die erzeugte FIR

Laserstrahlung bei gleichzeitiger Präsenz gegenseitig wechselwirken, d.h. in der Vorwärtsstrahlungskonfiguration sofern die FIR Laserstrahlung hauptsächlich als Raman-Strahlung auftritt. Diese Wechselwirkung erzeugt antikorrelierte Oszillation beider Felder. Wir konnten diese Erscheinung als Ergebnis von periodischen Photonen-Fluktuationen zwischen den drei Energieniveaux in  $\Lambda$ -ähnlichen molekularen Systemen deuten.

Als weiteres Resultat unserer Untersuchungen konnten wir als Erste ps-10  $\mu\text{m}$ -CO<sub>2</sub>-OFID Pulse erzeugen mit FIR-Lasergasen anstatt des gewöhnlichen heissen CO<sub>2</sub> Gases als Spektralfilter. Wir konnten zeigen, dass OFID für alle CO<sub>2</sub>-Laser Pumplinien die FIR Raman Strahlung indizieren, entsteht. Im weiteren haben wir entdeckt, dass je nach Absorptionseigenschaften der FIR-Lasergasen OFID auch entstehen kann für CO<sub>2</sub> Laserlinien, die in unserem System keine FIR Raman-Strahlung indizieren. Die Vorteile unseres neuen OFID Systems sind die Wellenlängenselektivität sowie der kompakte und einfachere experimentelle Aufbau.