

# Abstract

Quantum cascade lasers (QCLs) are attractive for high-resolution spectroscopy because they can provide high power and a narrow linewidth. They are particularly promising in the terahertz (THz) range since they can be used as local oscillators for heterodyne detection as well as transmitters for direct detection. However, THz QCL-based technologies are still under development and are limited by the lack of frequency tunability as well as the frequency and output power stability for free-running operation. In this dissertation, frequency tuning and linewidth of THz QCLs are studied in detail by using rotational spectroscopic features of molecular species. In molecular spectroscopy, the Doppler effect broadens the spectral lines of molecules in the gas phase at thermal equilibrium. Saturated absorption spectroscopy has been performed that allows for sub-Doppler resolution of the spectral features. One possible application is QCL frequency stabilization based on the Lamb dip. Since the tunability of the emission frequency is an essential requirement to use THz QCL for high-resolution spectroscopy, a new method has been developed that relies on near-infrared (NIR) optical excitation of the QCL rear-facet. A wide tuning range has been achieved by using this approach. The scheme is straightforward to implement and, the approach can be readily applied to a large class of THz QCLs. The frequency and output stability of the local oscillator has a direct impact on the performance and consistency of the heterodyne spectroscopy. A technique has been developed for a simultaneous stabilization of the frequency and output power by taking advantage of the frequency and power regulation by NIR excitation. The results presented in this thesis will enable the routine use of THz QCLs for spectroscopic applications in the near future.

# Zusammenfassung

Quantenkaskadenlaser (QCLs) sind für die hochauflösende Spektroskopie attraktiv, da sie eine hohe Leistung und eine schmale Linienbreite bieten können. Sie sind im THz-Bereich besonders vielversprechend, da sie als lokale Oszillatoren (LO) für Heterodynspektroskopie sowie als Strahlungsquellen für direkte Detektion eingesetzt werden können. THz-QCL-basierte Technologien befinden sich jedoch noch in der Entwicklung und sind durch die mangelnde Frequenzabstimmbarkeit sowie die Frequenz- und Ausgangsleistungsstabilität im frei laufenden Betrieb begrenzt. In dieser Dissertation werden Frequenzabstimmung und Linienbreite von THz-QCLs unter Verwendung rotationspektroskopischer Merkmale molekularer Spezies detailliert untersucht. Im thermischen Gleichgewicht verbreitert der Doppler-Effekt die Spektrallinien von Molekülen in der Gasphase. Mit Hilfe von Sättigungsspektroskopie konnte in dieser Arbeit eine Auflösung der Spektralmerkmale unterhalb des Doppler-Limits erreicht werden. Eine mögliche Anwendung ist die Lamb-Dip-basierte Frequenzstabilisierung. Eine wesentliche Voraussetzung für die Verwendung von THz QCL für hochauflösenden Spektroskopie ist die Abstimmbarkeit der Emissionsfrequenz. Hierfür wurde eine neue Methode entwickelt, die auf der optischen Anregung der QCL-Rückseite im nahen Infrarot (NIR) beruht. Mit diesem Ansatz wurde ein breiter Abstimmbereich erreicht. Das Schema ist einfach zu implementieren und kann leicht auf eine große Klasse von THz-QCLs angewendet werden. Da die Frequenz- und Ausgangsleistungsstabilität des lokalen Oszillators sich unmittelbar auf die Auflösung und Empfindlichkeit eines Heterodynspektrometers auswirkt, wurde eine Technik zur gleichzeitigen Stabilisierung von Frequenz und Ausgangsleistung entwickelt. Hierfür wurde die Frequenz- und Leistungsregelung durch NIR-Anregung ausgenutzt. Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse werden in naher Zukunft die häufige Verwendung von THz-QCLs für spektroskopische Anwendungen ermöglichen.