

# 宽调谐中红外差频激光及大气水汽浓度探测

汪六三<sup>1,2,3</sup> 曹振松<sup>1,2</sup> 王欢<sup>1,2,3</sup> 赵辉<sup>1,2,3</sup> 高伟<sup>1,2,3</sup> 袁恽谦<sup>1,2</sup>  
陈卫东<sup>4</sup> 张为俊<sup>1,3</sup> 高晓明<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> 中国科学院大气成分与光学重点实验室, 安徽 合肥 230031

<sup>2</sup> 中国科学院安徽光学精密机械研究所大气光学研究中心, 安徽 合肥 230031

<sup>3</sup> 中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光谱学研究室, 安徽 合肥 230031

<sup>4</sup> 法国滨海大学大气物理与化学实验室, 法国 敦刻尔克 59140

**摘要** 基于非线性差频技术, 利用  $\text{AgGaS}_2$  晶体通过二类相位匹配条件( $e+o \rightarrow e$ )产生了  $5 \sim 12.5 \mu\text{m}$  宽调谐差频激光(DFG)输出。抽运光源是一个再生激光放大系统, 它由连续的 Littrow 结构光栅外腔半导体激光器和锥形半导体放大器组成, 调谐范围为  $760 \sim 790 \text{ nm}$ , 最大输出功率可达  $800 \text{ mW}$ ( $780 \text{ nm}$ )。信号光源是连续可调谐钛宝石激光器, 调谐范围为  $790 \sim 910 \text{ nm}$ , 最大输出功率可达  $760 \text{ mW}$ ( $806 \text{ nm}$ )。差频激光在  $7.0 \mu\text{m}$  附近获得的最大输出功率为  $1.076 \mu\text{W}$ 。基于产生的差频激光, 采用直接吸收光谱方法测量了实验室大气中的水汽在  $7.0 \mu\text{m}$  附近( $000 \rightarrow 010$ )吸收带的吸收光谱。在  $19.0 \text{ cm}$  的吸收光程条件下, 依据记录的大气中水汽的吸收光谱获得了实验室大气中水汽的浓度。

**关键词** 非线性光学; 中红外; 差频; 二类相位匹配;  $\text{AgGaS}_2$  晶体; 水汽

**中图分类号** TN212 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.0414003

## A Widely Tunable Mid-Infrared Difference Frequency Generation Laser and Its Detection of Atmospheric Water

Wang Liusan<sup>1,2,3</sup> Cao Zhensong<sup>1,2</sup> Wang Huan<sup>1,2,3</sup> Zhao Hui<sup>1,2,3</sup> Gao Wei<sup>1,2,3</sup>  
Yuan Yiqian<sup>1,2</sup> Chen Weidong<sup>4</sup> Zhang Weijun<sup>1,3</sup> Gao Xiaoming<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China

<sup>2</sup> Center for Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China

<sup>3</sup> Environmental Spectroscopy Laboratory, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China

<sup>4</sup> Laboratoire de Physicochimie de l'Atmosphère, Université du Littoral Côte d'Opale, Dunkerque 59140, France

**Abstract** A widely tunable ( $5 \sim 12.5 \mu\text{m}$ ) continuous wave mid-infrared laser based on difference frequency generation (DFG) in a  $\text{AgGaS}_2$  crystal with type II ( $e+o \rightarrow e$ ) phase matching is reported. The pump laser is a master oscillator power amplifier (MOPA) system which consists of a grating-tuned external-cavity diode laser in Littrow configuration and a tapered semiconductor amplifier, which is tunable from  $760$  to  $790 \text{ nm}$  with a maximum power of  $800 \text{ mW}$ ( $780 \text{ nm}$ ). The signal laser is a Ti:sapphire laser, which is tunable from  $790$  to  $910 \text{ nm}$  with a maximum

**收稿日期**: 2010-10-11; **收到修改稿日期**: 2010-12-03

**基金项目**: 中国科学院重大科研装备研制项目(YZ200818)资助课题。

**作者简介**: 汪六三(1982—), 男, 博士研究生, 主要从事中红外差频激光技术及应用等方面的研究。

E-mail: liusanwang@gmail.com

**导师简介**: 高晓明(1965—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事大气分子光谱、高灵敏度光谱技术、中红外差频激光技术及应用等方面的研究。E-mail: xmgao@aiofm.ac.cn

power of 760 mW (806 nm). A maximum output power of 1.076  $\mu\text{W}$  is obtained near 7.0  $\mu\text{m}$ . Based on the difference frequency generation laser, the direct absorption spectrum of (000 $\rightarrow$ 010) band of water vapor near 7.0  $\mu\text{m}$  in laboratory air is measured. Under the absorption optical path of 19.0 cm in open air, the concentration of water vapor in laboratory air is estimated from the recorded absorption spectrum.

**Key words** nonlinear optics; mid-infrared; difference frequency generation; type II phase matching; AgGaS<sub>2</sub> crystal; water vapor

**OCIS codes** 140.3070; 190.4410; 010.7340

## 1 引 言

许多分子和离子的基频吸收带位于中红外波段(3~20  $\mu\text{m}$ ),具有强的吸收,因此中红外波段的分子气体探测技术在大气污染监测、工业过程控制、医疗诊断等方面有着广泛的应用。产生中红外波段的激光光源目前主要有铅盐激光器、二氧化碳激光器、一氧化碳激光器以及基于非线性频率转换的差频和光学参变振荡器。铅盐激光器可以覆盖3~20  $\mu\text{m}$ 波段,但单个激光器调谐范围有限(约100  $\text{cm}^{-1}$ ),且需要低温冷却工作(小于90 K)<sup>[1]</sup>。二氧化碳激光器(9~11  $\mu\text{m}$ )和一氧化碳激光器(5~6  $\mu\text{m}$ )可以提供很高的激光功率,然而它们是准连续可调(典型的发射线之间距离约为1  $\text{cm}^{-1}$ )<sup>[2]</sup>。自1994年以来,量子级联激光器(QCL)<sup>[3,4]</sup>在中红外波段得到了发展。单个量子级联激光器通常采用分布反馈式结构针对某一特定波长而设计,连续调谐范围有限(小于10  $\text{cm}^{-1}$ )。最近发展的外腔量子级联激光器可以提供宽的调谐范围(大于100  $\text{cm}^{-1}$ )<sup>[5]</sup>。1997年科学家成功推出带间级联激光器(ICL)<sup>[6]</sup>,激光波长主要分布在3~5  $\mu\text{m}$ 波段<sup>[7]</sup>。基于非线性频率转换的差频和光学参变振荡器可以将抽运光的高性能从可见/近红外波段转换到中红外波段,如抽运光的窄线宽、宽调谐范围且连续可调和室温工作等优点。光学参变振荡器可以输出高的激光功率<sup>[8,9]</sup>,但光学参变振荡器需要谐振腔的精确匹配,并且对输入光及非线性晶体的要求高。在现有的中红外激光光源中,差频激光具有窄线宽、宽的波长覆盖范围和连续可调等优点,是目前研究分子高分辨率吸收光谱很有吸引力的激光光源。

1974年,Pine等<sup>[10]</sup>报道了在LiNbO<sub>3</sub>晶体中产生连续差频光,并将其应用到光谱研究方面,其后,随着晶体生长技术的发展和可见/近红外激光技术的逐步成熟,差频技术已经引起了人们的广泛关注,并广泛用于高分辨率光谱和痕量气体探测<sup>[11~19]</sup>。

AgGaS<sub>2</sub>晶体是产生深中红外(大于5  $\mu\text{m}$ )差频光常用的晶体之一,其透射率在透光范围(0.47~13  $\mu\text{m}$ )比较高,非线性有效系数适中( $d_{36}=13.4 \text{ pm/V}$ ),抗损

伤阈值相对较高(10  $\text{MW}/\text{cm}^2$ ,1.064  $\mu\text{m}$ ,脉冲持续时间为20 ns)<sup>[20]</sup>。利用AgGaS<sub>2</sub>晶体一类90°相位匹配产生连续差频光已经有几个小组进行了报道<sup>[11~14]</sup>。由于受90°相位匹配限制,它们的调谐范围有限。使用AgGaS<sub>2</sub>晶体二类相位匹配可以实现宽的调谐范围<sup>[21]</sup>,且AgGaS<sub>2</sub>晶体二类相位匹配的非线性有效系数比一类相位匹配的非线性有效系数大<sup>[22]</sup>。

本文报道了利用再生激光放大系统和连续钛宝石激光器分别作为抽运光源、信号光源,结合角度调谐在AgGaS<sub>2</sub>晶体中通过二类相位匹配(e+o $\rightarrow$ e)产生了宽调谐(5~12.5  $\mu\text{m}$ )中红外差频激光输出。基于这个激光光源,用直接吸收光谱方法对实际大气中水汽的浓度进行了测量。

## 2 差频产生原理

差频产生(DFG)是光场在非线性晶体中发生的三波混频频率下转换过程,两束不同频率的入射光在非线性晶体中通过二阶非线性效应产生新的光场。习惯上把高频的入射光称为抽运光( $\omega_p$ ),低频的入射光称为信号光( $\omega_s$ ),差频产生的光称为空闲光( $\omega_i$ )。在差频过程中,三束光满足能量守恒和动量守恒,可以表示为

$$\omega_i = \omega_p - \omega_s, \quad (1)$$

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i, \quad (2)$$

式中 $\Delta k$ 是波矢的失配, $k_p, k_s, k_i$ 分别为抽运光、信号光、空闲光的波矢, $k_j = n_j \omega_j / c$ ( $j = p, s, i$ ), $\omega$ 为光的圆频率, $n$ 为晶体折射率,可利用Sellmeier方程计算。(2)式也称为相位匹配条件。当 $\Delta k = 0$ 时,就满足相位匹配条件。如果波矢的失配量不为零,则沿着相互作用方向每经过一段距离( $l = \pi / \Delta k$ ),产生的空闲光的相位就发生一次反转,这样前一段时间和后一段时间产生的光波相互抵消,不能形成有效的光强输出。因而,在差频过程中应该使三个波矢满足相位匹配条件。实现相位匹配的方式有两种:1)双折射相位匹配;2)准相位匹配。准相位匹配技术主要局限于LiNbO<sub>3</sub>,RbTiOAsO<sub>4</sub>等铁电晶体<sup>[23]</sup>,这类晶体在中红外波段的使用受到透光范围限制

(小于  $5 \mu\text{m}$ )。对于深中红外波段(大于  $5 \mu\text{m}$ )主要使用双折射相位匹配晶体<sup>[24]</sup>,如  $\text{AgGaS}_2$  晶体。这里采用了  $\text{AgGaS}_2$  晶体共线二类相位匹配( $e+o \rightarrow e$ ),相位匹配条件(2)式可改写为

$$\frac{n_e(\lambda_i, \theta)}{\lambda_i} = \frac{n_e(\lambda_p, \theta)}{\lambda_p} - \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s}. \quad (3)$$

通过调节抽运光波长、抽运光与晶体光轴的夹角就能实现相位匹配。

在小信号平面波近似情况下,产生的差频光功率是 sinc 函数曲线,且它与晶体长度的平方、入射光功率成正比,可以表示为

$$P_i \propto \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_i n_p n_s} \omega_i^2 P_p P_s L^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{|\Delta k| L}{2} \right) \exp(-\alpha L), \quad (4)$$

式中  $d_{\text{eff}}$  为二阶非线性有效系数,  $\omega_i$  为差频光圆频率,  $P_p$  和  $P_s$  分别为入射抽运光功率、入射信号光功率,  $L$  为晶体长度.  $k$  为波矢量,  $\Delta k (\Delta k = k_p - k_s - k_i)$  为相位失谐量,  $\Delta k = 0$  实现相位匹配,功率达到最大值.  $\alpha$  为差频光在晶体中的吸收系数。

### 3 实验装置

中红外差频实验装置示意图如图 1 所示。抽运光源是再生激光放大系统,它由外腔半导体激光器

(ECDL)和锥形放大器构成。外腔半导体激光器为 Littrow 结构(DL Pro, Toptinics AG),调谐范围为  $760 \sim 790 \text{ nm}$ ,线宽约为  $100 \text{ kHz}$ ,最大输出功率为  $40 \text{ mW}$ 。外腔半导体激光器输出光经过保偏光纤耦合进入锥形放大器,最后输出功率最大可以达到  $800 \text{ mW}$ ( $780 \text{ nm}$ )。信号光源为钛宝石激光器(Coherent, CR899-29),调谐范围为  $790 \sim 910 \text{ nm}$ ,线宽为  $500 \text{ kHz}$ ,最大输出功率为  $760 \text{ mW}$ ( $806 \text{ nm}$ )。为了实现相位匹配,抽运光通过半波片偏振态由垂直变成水平。抽运光和信号光通过偏振合束器在空间充分重叠,然后使用一个透镜( $f=250 \text{ mm}$ )聚焦进入  $\text{AgGaS}_2$  晶体。两光束聚焦后光束束腰半径均约为  $60 \mu\text{m}$ 。  $\text{AgGaS}_2$  晶体被安放在一个旋转台上。实验中使用的  $\text{AgGaS}_2$  晶体尺寸为  $8 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ ,晶体切割角为  $\theta=59^\circ, \phi=0^\circ$ ,晶体两端面镀有增透膜( $760 \sim 1065 \text{ nm}$ )。从  $\text{AgGaS}_2$  晶体出射的差频光使用一个透镜( $f=50 \text{ mm}$ )聚焦进入液氮冷却的  $\text{HgCdTe}$  光导型探测器。一个  $1 \text{ mm}$  厚的锗片被放置在探测器前过滤抽运光和信号光。探测器输出信号经过前置放大器放大,然后送入锁相放大器解调。解调后的信号由  $12 \text{ bit}$  A/D 数据采集卡采集。

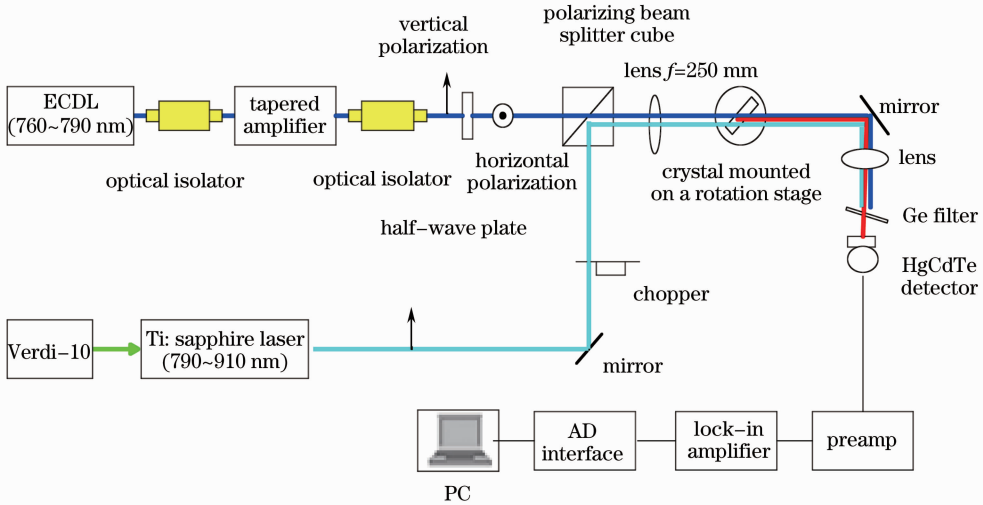


图 1 中红外差频实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the mid-infrared DFG system

## 4 实验结果和数据分析

### 4.1 系统性能

为了产生宽调谐差频激光输出,研究了  $\text{AgGaS}_2$  二类相位匹配( $e+o \rightarrow e$ )产生  $5 \sim 12.5 \mu\text{m}$  的差频激光的条件。图 2(a)给出了相位匹配外角

和产生的差频光波长的关系。图中点为实验数据,实线为根据 K. Kato 的 Sellmeier 方程<sup>[25]</sup>计算的理论值。“-”表示入射光和晶体光轴位于法线异侧,如图 2(a)中插图,另外,插图中还定义了相位匹配外角  $\theta$ ,折射内角  $\theta'$  和相位匹配内角  $\Theta$ 。从图中可以

看出实验值与理论值吻合得很好。图 2(b) 记录了与图 2(a) 中相位匹配外角(晶体外角)对应的抽运光和信号光波长。在实验过程中, 固定抽运光波长在 764.98 nm 附近, 把晶体外角旋转到所要产生的

差频光理论的相位匹配外角, 然后调节信号光波长产生差频光, 再在产生差频光的信号光波长附近扫描信号光波长, 采集的数据使用 sinc 函数拟合得到相位匹配时的信号波长, 最后计算出差频光波长。

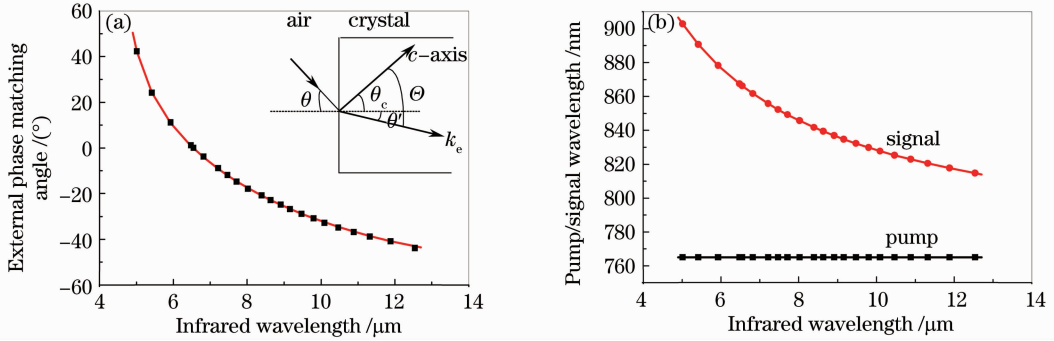


图 2 AgGaS<sub>2</sub> 晶体的二类相位匹配曲线。(a) 外角相位匹配曲线, 实线为理论值, 点为实验值; (b) 波长相位匹配曲线  
Fig. 2 Type II phase matching curve of AgGaS<sub>2</sub> crystal. (a) External phase matching angle dependent phase matching curve; the solid curve corresponds to the calculated values, and the dots are experimental data; (b) wavelength dependent phase matching curve

差频激光输出功率大小对实际应用十分重要。图 3(a) 给出了差频光功率与差频光波长的关系。在实验过程中, 抽运光的入射功率固定在 170 mW, 信号光的入射功率与波长的关系如图 3(b) 所示。在图 3(a) 中, 当波长小于 7 μm (对应信号光波长大于 857.517 nm) 时, 由于信号光的输出功率随着输

出波长的增加而逐渐减小[如图 3(b) 所示]导致差频功率下降; 当波长大于 7 μm 时, 差频功率的下降是由于非线性耦合效率的减小[差频功率反比于差频光波长的平方, 如(4)式]和晶体透射率的下降[如图 3(c) 所示]。

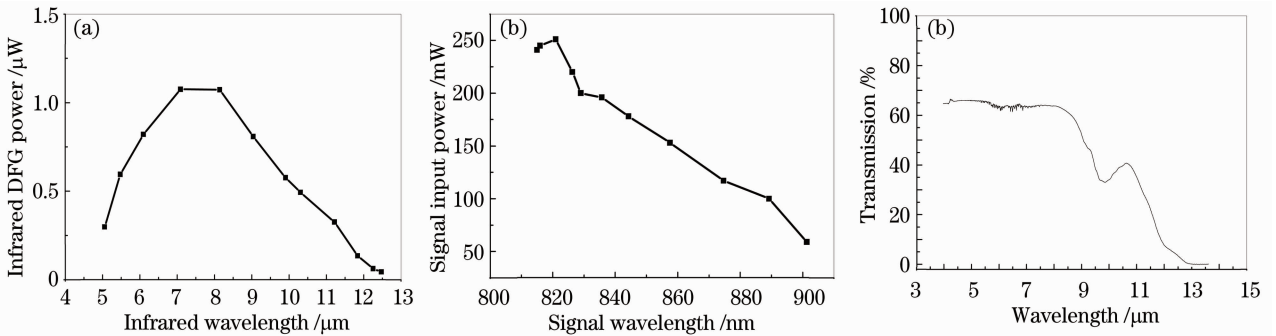


图 3 (a) AgGaS<sub>2</sub> 红外差频功率与红外波长的关系曲线; (b) 入射的信号光功率与信号波长的关系曲线; (c) AgGaS<sub>2</sub> 晶体透射率曲线

Fig. 3 (a) Dependence of infrared DFG power on the infrared wavelength for AgGaS<sub>2</sub>; (b) dependence of input signal power on the signal wavelength; (c) transmission curve of AgGaS<sub>2</sub> crystal

图 4 记录了 6.45 μm 处差频光功率转换效率。在实验过程中, 抽运光波长和信号光波长分别固定在 764.983 nm 和 867.924 nm, 晶体外角固定在 1.13°, 优化系统使差频光功率达到最大。在信号光光路中放入连续可调衰减器, 改变入射信号光功率, 抽运光功率固定在 130 mW。通过最小二次拟合, 得到在 6.45 μm 处差频光功率转换效率为 22.1 μW/W<sup>2</sup>。

8.64 μm (约 1158.0 cm<sup>-1</sup>) 附近相位失谐曲线。在这个实验过程中, 抽运光波长固定在 764.989 nm, 信号光在 839.216 nm 附近扫描, 相位匹配外角固定在 22.87°。平面波拟合, 可得接受带宽为 4.24 cm<sup>-1</sup>。依据这个实验值, 计算得到两光束相互作用长度为 0.941 cm<sup>[26]</sup>, 比晶体有效长度(1.012 cm)小, 可能是由于走离效应引起的。

接受带宽是差频系统的重要参数之一。图 5 为

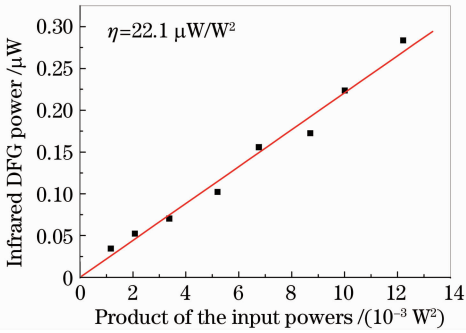


图 4 红外差频功率作为入射抽运光功率乘积的函数，实线为对实验数据的最小二次拟合

Fig. 4 Infrared DFG power as a function of the product of two incident pumping powers, the solid line is a least-squares linear fit to the experimental data

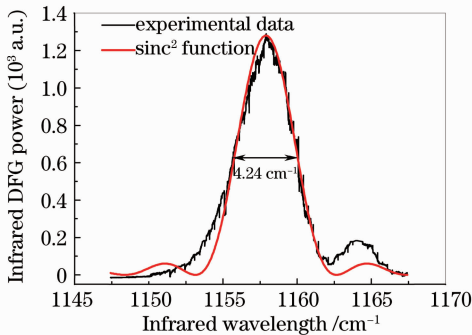


图 5 1158.0 cm<sup>-1</sup> (约 8.64 μm) 附近波长相位失谐曲线  
Fig. 5 Wavelength dependent phase mismatching curve near 1158.0 cm<sup>-1</sup> (about 8.64 μm)

#### 4.2 大气中水汽浓度的探测

在 5.5~7.5 μm 波长范围,水汽有很强的吸收。这里选择 7.0 μm 附近水汽强的吸收谱线来探测大气中水汽浓度。在这个实验过程中,晶体相位匹配外角固定在 6.87°,抽运光波长为 764.985 nm,信号光在 858.719 nm 附近扫描。扫描方式采用了信号光(钛宝石激光器)自带的快速扫描(最大扫描范围 1 cm<sup>-1</sup>,扫描频率为 1 Hz)。锁相放大器积分时间设定在 1 ms。AgGaS<sub>2</sub> 晶体出射端面与探测器间的距离为 19.0 cm。图 6 记录了 7.055 μm (约 1417.5 cm<sup>-1</sup>)附近水汽在实际大气中的吸收光谱。图 6(a)为实验数据值,实线为 Lorentz 线型拟合曲线,图 6(b)Lorentz 线型与实验数据值之差,为振幅残差。参考 Hitran2008<sup>[27]</sup>可知该条吸收线属于(010↔000)吸收带,谱线积分线强为 1.533 × 10<sup>-20</sup> cm<sup>-1</sup> / (molecule • cm<sup>-2</sup>) (1417.499 cm<sup>-1</sup>)。依据 Lambert-Beer 定律,拟合可以获得实验室大气中水汽体积分数

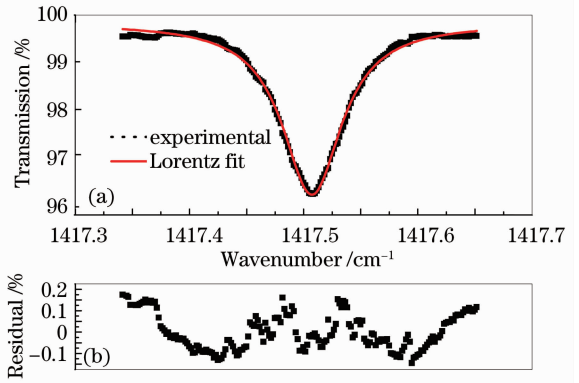


图 6 (a)水汽在实际大气中 1417.499 cm<sup>-1</sup>附近的吸收光谱;(b)通过 Lorentz 线型拟合值与实验数据值相减得到的拟合残差

Fig. 6 (a) Water spectrum in ambient air at 1417.499 cm<sup>-1</sup>; (b) fit residual obtained by subtracting the Lorentzian lineshape from the measured absorption spectrum

约为 1.0649 × 10<sup>-2</sup>。

## 5 结 论

报道了基于差频产生技术,利用再生激光放大系统、钛宝石激光器分别作为抽运光源和信号光源,使用 AgGaS<sub>2</sub> 晶体二类相位匹配(e+o→e)结合调谐波长和晶体外角实现了 5~12.5 μm 差频激光输出。在 7.0 μm 附近获得了最大输出功率,最大输出功率为 1.076 μW。差频激光的输出功率仍可以提高。根据理论计算,增加入射功率可以增加输出功率。另外,使用两个透镜分别对抽运光、信号光聚焦使两光束束腰位置尽量接近消除由于一个透镜聚焦引起的色散,给 AgGaS<sub>2</sub> 晶体输出端镀红外增透膜(5~12.5 μm),均可以增加差频激光输出功率。这个连续激光光源具有波长调谐范围宽(约 1200 cm<sup>-1</sup>)、连续无跳模工作、光谱分辨率高等优点。相对于铅盐激光器和量子级联激光器,它是中红外波段很有吸引力的光源。基于这个激光光源,在短吸收光程(19.0 cm)条件下,利用直接吸收光谱的方法测量了实验室实际大气中的水汽浓度。

## 参 考 文 献

- 1 F. K. Tittel, D. Richter, A. Fried. Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy, I. T. Sorokina, K. L. Vodopyanov (Ed.), Solid-State Mid-Infrared Laser Sources [M]. Berlin: Springer, 2003. 445~510
- 2 S.-C. Hsu, R. H. Schwendeman, G. Magerl. Infrared microwave sideband laser spectroscopy in the CO laser region [J]. IEEE J. Quant. Electron., 1988, QE-24(11): 2294~2301

- 3 J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco *et al.*. Quantum cascade laser [J]. *Science*, 1994, **264**(5158): 553~556
- 4 C. Sirtori, P. Kruck, S. Barbieri *et al.*. GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub> as quantum cascade lasers [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(24): 3486~3488
- 5 G. Wysocki, R. Lewicki, R. F. Cur *et al.*. Widely tunable mode-hop free external cavity quantum cascade lasers for high resolution spectroscopy and chemical sensing [J]. *Appl. Phys. B*, 2008, **92**(3): 305~311
- 6 C. H. Lin, R. Q. Yang, D. Zhang *et al.*. Type-II interband quantum cascade laser at 3.8 μm [J]. *Electron. Lett.*, 1997, **33**(7): 598~599
- 7 I. Vurgaftman, C. L. Canedy, C. S. Kim *et al.*. Mid-infrared interband cascade lasers operating at ambient temperatures [J]. *New J. Phys.*, 2009, **11**(12): 125015
- 8 E. V. Kovalchuk, D. Dekorsy, A. I. Lvovsky *et al.*. High-resolution doppler-free molecular spectroscopy with a continuous-wave optical parametric oscillator [J]. *Opt. Lett.*, 2001, **26**(18): 1430~1432
- 9 Xiong Bo, Ma Jianli, Lin Xunchun *et al.*. Continuous tuning of a 3.85~3.95 μm, 1.35 W optical parametric oscillator based on PPMgLN [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(s2): 7~10  
熊波, 马建立, 林学春等. 1.35 W, 3.85~3.95 μm 连续调谐周期极化掺镁铌酸锂光参量振荡器[J]. *中国激光*, 2009, **36**(s2): 7~10
- 10 A. S. Pine. Doppler-limited molecular spectroscopy by difference-frequency mixing [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1974, **64**(12): 1683~1690
- 11 W. C. Eckhoff, R. S. Putnam, S. Wang *et al.*. A continuously tunable long-wavelength CW IR source for high-resolution spectroscopy and trace-gas detection [J]. *Appl. Phys. B*, 1996, **63**(5): 437~441
- 12 P. Canarelli, Z. Benko, R. Curl *et al.*. Continuous-wave infrared laser spectrometer based on difference frequency generation in AgGaS<sub>2</sub> for high-resolution spectroscopy [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1992, **9**(2): 197~202
- 13 W. Chen, C. Przygodzki, H. Delbarre *et al.*. Difference-frequency infrared generation and application to the water vapor trace monitoring [J]. *Infrared Physics & Technology*, 1998, **39**(6): 415~421
- 14 J. J. Zondy, V. Vedenyapine, T. Kaing *et al.*. Doppler spectroscopy of NH<sub>3</sub> and SF<sub>6</sub> in the 10-μm range with a tunable AgGaS<sub>2</sub> difference-frequency spectrometer [J]. *Appl. Phys. B*, 2004, **78**(3-4): 457~463
- 15 J. Henningsen, J. Hald. Quantitative analysis of dilute mixtures of SO<sub>2</sub> in N<sub>2</sub> at 7.4 μm by difference frequency spectroscopy [J]. *Appl. Phys. B*, 2003, **76**(4): 441~449
- 16 Deng Lunhua, Gao Xiaoming, Cao Zhensong *et al.*. Difference frequency generation in PPLN and water vapor detection in air [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2007, **27**(11): 2186~2189  
邓伦华, 高晓明, 曹振松等. 中红外差频光源应用于实际大气水汽浓度测量[J]. *光谱学与光谱分析*, 2007, **27**(11): 2186~2189
- 17 Z. Cao, X. Gao, L. Deng *et al.*. A difference frequency generation spectrometer and its detection of atmospheric N<sub>2</sub>O [J]. *Spectrosc. Acta Pt. A-Molec. Biomolec. Spectr.*, 2007, **68**(1): 74~77
- 18 S. Vasilyev, S. Schiller, A. Nevsky *et al.*. Broadly tunable single-frequency CW mid-infrared source with milliwatt-level output based on difference-frequency generation in orientation-patterned GaAs [J]. *Opt. Lett.*, 2008, **33**(13): 1413~1415
- 19 J. Cousin, W. Chen, D. Bigourd *et al.*. Telecom-grade fiber laser-based difference-frequency generation and ppb-level detection of benzene vapor in air around 3 μm [J]. *Appl. Phys. B*, 2009, **97**(4): 919~929
- 20 V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan. Handbook of Nonlinear Optical Crystals [M]. Berlin: Springer, 1999. 132~136
- 21 V. Pertrov, C. Rempel, K. P. Stolberg *et al.*. Widely tunable continuous-wave mid-infrared laser source based on difference-frequency generation in AgGaS<sub>2</sub> [J]. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(21): 4925~4928
- 22 K. Kato. High-power difference-frequency generation at 5~11 μm in AgGaS<sub>2</sub> [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1984, **QE-20**(7): 698~699
- 23 Chen Dong, Liu Wenqing, Zhang Yujun. Tuning characteristic of PPLN based difference frequency generation laser system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(3): 761~766  
陈东, 刘文清, 张玉钧. PPLN 晶体差频中红外激光系统调谐特性研究[J]. *光学学报*, 2009, **29**(3): 761~766
- 24 Li Guang, Wang Li. Tuning properties and conversion efficiency in mid-infrared laser using ZnGeP<sub>2</sub>-difference frequency generation [J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(1): 54~58  
李光, 王丽. ZnGeP<sub>2</sub>-差频中红外激光器的角调谐特性及转化效率[J]. *中国激光*, 2010, **37**(1): 54~58
- 25 A. Harasaki, K. Kato. New data on the nonlinear optical constant, phase-matching and optical damage of AgGaS<sub>2</sub> [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1997, **36**(2): 700~703
- 26 R. L. Byer, R. L. Hebst. Parametric Oscillation and Mixing, in: Y. R. Shen (Ed.), Nonlinear Infrared Generation [M]. Springer-Verlag, 1977. 81~137
- 27 L. S. Rothman, I. E. Gordon, A. Barbe *et al.*. The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database [J]. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.*, 2009, **110**(9-10): 533~572