

分子环境变化对振动退相时间影响的实验研究

林子扬 万辉 尹君 侯国辉 牛憨笨

Experimental study on vibration dephasing time varying with molecular surroundings

Lin Zi-Yang Wan Hui Yin Jun Hou Guo-Hui Niu Han-Ben

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 143301 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.143301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I14>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

拉曼散射与自陡峭效应对皮秒孤子传输特性的影响

Influence of Raman scattering effect and self-steepening effect on the propagation characteristic of picosecond solitons

物理学报.2015, 64(5): 054207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.054207>

氘含量对 DKDP 晶体横向受激拉曼散射增益系数的影响

Influence of deuteration degree on the transverse stimulated Raman scattering gain coefficient of DKDP crystal

物理学报.2015, 64(3): 034213 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.034213>

相干瑞利散射海水水下温度测量技术的理论研究

Theoretical study on measuring underwater temperature based on coherent Rayleigh scattering

物理学报.2014, 63(8): 083302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.083302>

多色宽带相干反斯托克斯拉曼散射过程的理论与实验研究

Theoretical and experimental study on the multi-color broadband coherent anti-Stokes Raman scattering processes

物理学报.2014, 63(7): 073301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.073301>

(R)-13 丁二醇的手性不对称性: 微分键极化率的研究

The chiral asymmetry of R(-)-13-butanediol as revealed by its Raman differential bond polarizabilities

物理学报.2013, 62(15): 153301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.153301>

分子环境变化对振动退相时间影响的实验研究*

林子扬^{1)†} 万辉²⁾ 尹君¹⁾ 侯国辉¹⁾ 牛憨笨^{1)‡}

1)(深圳大学光电工程学院, 光电子器件与系统(教育部/广东省)重点实验室, 深圳 518060)

2)(斯图加特大学第三物理研究所, 德国 斯图加特 70550)

(2015年2月9日收到; 2015年3月20日收到修改稿)

物质分子振动退相时间测量是一种非标记无损分子检测方法, 用超连续谱时间分辨相干反斯托克斯拉曼散射方法可同时获得分子振动谱和退相时间. 实验以苯甲腈和甲醇为样品, 研究当分子环境变化时, 其主要振动谱的振动退相时间变化情况. 将苯甲腈与无水乙醇混合, 测量了苯甲腈分子 1017, 2247 和 3085 cm^{-1} 三个典型分子振动的退相时间随环境变化的规律, 并得到了变化后的振动退相时间. 测量了甲醇分子 2851, 2960 cm^{-1} 两个相邻分子振动的退相时间随环境的变化情况, 给出实验变化规律. 这种方法具有检测分子所处环境变化和分子相互作用的能力, 在生命科学、分子生物学和材料科学等研究领域具有重要的应用前景.

关键词: 相干反斯托克斯拉曼散射, 振动退相时间, 时间分辨, 分子振动光谱**PACS:** 33.20.Fb, 42.65.Dr**DOI:** 10.7498/aps.64.143301

1 引言

由于物质分子振动退相过程与分子所处环境变化有关, 因此, 分子振动退相时间的变化也可以反映物质分子所处环境的变化, 而这种变化可用作研究某种分子与其周边分子的相互作用, 并受到关注^[1]. 在常温条件下, 物质分子的振动退相时间随分子状态不同而不同, 在几百飞秒至数皮秒范围. 研究物质分子的振动退相过程可以分别在时域或频域中进行, 这两种方法实际上是等价的. 时域研究方法有时间分辨相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)^[2,3]和光子回波法^[4], 频域方法主要有拉曼线型分析法^[5]. 在时域中, 测量振动退相时间将不易受峰值分布引起的光谱非均匀展宽的影响^[6], 而在频域中测量混合物质分子振动退相时间容易受到这种干扰. 另外, 在频域中测量需要高分辨率光谱进行线型分析, 而通常要获得高分辨率光谱需要测量较长的时间.

利用时间分辨 CARS 方法对化合物分子振动弛豫过程进行研究已有报道^[7,8], 但都是对分子某一个振动退相时间进行测量. 本文将采用作者先前发表的超连续谱激发时间分辨 CARS 方法^[9,10], 同时对分子多个振动退相时间进行同时测量^[11], 从实验方面对分子环境变化时分子振动退相时间的变化情况做进一步探索研究. 与传统 CARS 时域方法只能测量一个振动频率不同, 利用超连续谱激发时间分辨 CARS 方法一次可测得待测物质分子多个 CARS 谱的振动退相时间. 分子振动退相时间的差异可以用来辅助区分具有微小差异成分和结构的分子, 研判分子所处环境变化和分子是否与其他分子发生了相互作用. 文中通过对苯甲腈和甲醇溶液的分子主要振动模式的振动退相时间随环境的变化进行实验测量, 给出实验结果并进行分析, 进一步认识分子相邻振动谱和非相邻振动谱振动退相时间变化规律的差别, 并弄清楚苯甲腈分子振动退相时间^[12]变化的规律.

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB825802)、国家重大科学仪器设备开发专项(批准号: 2012YQ150092)和国家自然科学基金重点项目(批准号: 61235012)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lzy@szu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: hbniu@szu.edu.cn

2 测量装置与方法

图 1 所示为实验装置布局. 激光器输出的功率 1.2 W、波长 782 nm、脉宽 140 fs、重复频率 76 MHz; 隔离器阻止回射光对激光器锁模的影响; 分束镜将激光光束分成两部分, 一束抽运光子晶体光纤产生超连续谱光, 再经显微物镜收集和准直, 另一束作为探测光 $E_{P'}$, 通过由移动精度 1 μm 微位移平台和一组全反镜所组成的时间延迟系统, 再通过中心波长为 782 nm、带宽 0.7 nm 的窄带通滤光片; 超连续谱光通过截止波长为 800 nm 的长波通滤光片后作为产生 CARS 信号所需的抽运光 E_P 和斯托克斯光 E_S ; 时间延迟系统调节探测光与抽运光之间的延迟时间, 实现时间分辨方法, 延迟系统的调节精度可达 6.7 fs; 合束镜将超连续谱光与探测光合成一束, 共线耦合进消色差显微物镜, 消色差显微物镜放大倍率 40 倍, 数值孔径 0.75 NA; 再使用相同的消色差显微物镜收集前向 CARS 信号; 在收集显微物镜后安装了截止波长为 790 nm 的短波通滤光片, 消除探测光、激发光和荧光对 CARS 信号探测的影响; 用一台热电制冷电荷耦合器件 (CCD) 光纤光谱仪探测 CARS 信号, 光谱仪光谱分辨率为 0.27 nm (4 cm^{-1}). 入射样品的超连续谱光中的光谱成分之间满足分子多个 (甚至所有) 振动谱 $\omega_v = \omega_P - \omega_S$ 的条件时, 将同时激发物质中分子的这些振动模式. 入射到待测样品中的探测光的平均功率为 10 mW, 超连续谱光平均功率为 3 mW.

时间延迟系统和光谱仪由计算机控制, 测量时, 在不同延迟时间处光谱仪记录 CARS 谱的信号强度, 从而记录下振动弛豫过程, 实现对分子的各种振动模式振动退相时间的测量. 在测量过程中, 将时间轴的 0 时刻定义为出现任何可探测 CARS 信号的时刻, 正的时间延迟表示 $E_{P'}$ 比 E_P 和 E_S 晚到. 微位移平台精确改变 $E_{P'}$ 的光程, 即调节 $E_{P'}$ 与 E_P , E_S 之间的光程差, 实现时间延迟. 为实现对振动退相时间进行精确测量, 时间延迟变 0.12 ps, 即微位移平台每移动 0.018 mm 采集一次光谱数据.

为获得振动退相时间, 需要对所记录的振动弛豫过程的光谱数据进行处理, 在对光谱数据处理时, 需先确定振动弛豫衰减的起始时刻, 而振动弛豫衰减发生在对应的光谱强度达到最大强度之后, 于是分别把各个振动弛豫衰减起始时刻定为对应的光谱强度达到最大强度时刻, 对每一个振动波

数, 提取相应测量数据中最大强度之后的强度随延迟时间变化的数据作为处理所需数据. 振动弛豫过程通常是指指数衰减过程, 振动退相时间与光谱强度之间满足指数衰减的关系 [13]:

$$I(t) = A \exp(-2t/T),$$

其中 I 为强度, A 为常数, T 为振动退相时间, t 为延迟时间. 因此, 在后续的实验数据处理中都采用单指数拟合方法对提取的所需处理数据进行数值拟合, 得到振动退相时间 T 或 $T/2$.

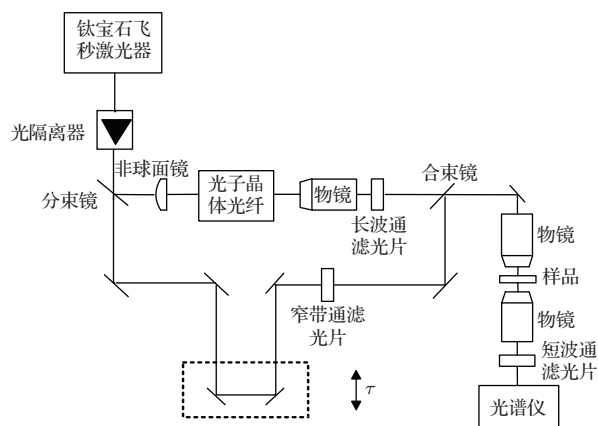


图 1 超连续谱激发时间分辨 CARS 实验系统示意图

Fig. 1. Schematic diagram of supercontinuum excitation time-resolved experiment system for CARS.

3 实验结果与讨论

在室温条件下, 用纯苯甲腈 (密度为 1.004 g/mL, 质量分数 >98.5%) 与无水乙醇 (密度为 0.79 g/mL, 质量分数 >99%) 混合成摩尔数之比为 1 : 1, 1 : 5 两种溶液作为实验样品. 苯甲腈三个较强的分子振动谱 1017, 2247 和 3085 cm^{-1} 分别对应于分子键 C—H 伸缩振动, C≡N 的伸缩振动, C—H 转动的情况. 依据文中的方法所得纯苯甲腈 CARS 光谱如图 2 (a) 所示, 分别提取三个较强的振动 CARS 信号强度随时间变化的数据进行处理, 所得三个振动的振动退相时间如图 2 (b)—图 2 (d) 所示.

对苯甲腈和无水乙醇的混合溶液做同样的数据处理, 所得的振动退相时间结果如图 3 所示.

如图 2 (b) 所示, 所测苯甲腈振动波数 1017 cm^{-1} 的振动退相时间为 5.81 ps, 这与已报道的值一致 [14], 说明通过搭建的超连续光谱作为抽运光源的时间分辨 CARS 测试系统所获得的实验数据是可靠的. 通过数据拟合处理, 得到苯甲腈的其他两个典型的分子振动退相时间分别为 1.2 ps

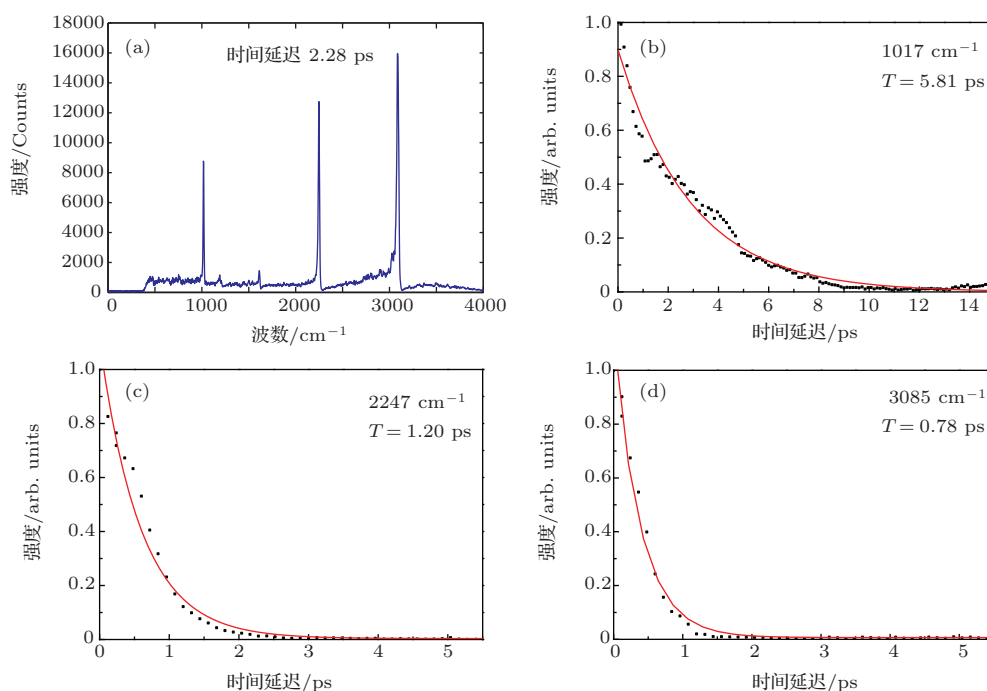


图2 (a) 纯苯甲腈 CARS 光谱; (b), (c), (d) 振动波数分别为 1017, 2247 和 3085 cm^{-1} 的分子振动退相时间
 Fig. 2. (a) The CARS spectra of benzonitrile; (b), (c), (d) relaxation process and dephasing time for 1017 cm^{-1} , 2247 cm^{-1} and 3085 cm^{-1} band.

和 0.78 ps. 在同一分子中, 组成分子的化学键具有不同形式的振动模式, 当外加抽运光场消失后, 各个振动模式具有恢复到原始的振动状态的趋势. 分析实验数据可知, 在外加抽运光场强度保持不变的情况下, 由于不同振动模式的共振增强不同, 故恢复到原始振动状态的时间也不同, 即振动退相时间不同. 图 3 的结果显示, 在无水乙醇中, 苯甲腈分子主要的三个振动模式的振动退相时间减小, 1 : 1 配置时变为 2.98, 1.16, 1.00 ps, 而 1 : 5 配置时变为 1.86, 0.9, 0.92 ps. 这说明苯甲腈分子所处周边环境发生变化时, 苯甲腈分子各振动模式振动退相时间也发生了变化, 而且这种变化的大小与趋势都与分子的振动模式有关.

另一组实验测量了甲醇与水在不同混合比下振动退相时间的变化, 对混合溶液中甲醇的两个较明显的振动模式进行了测量. 用质量分数为 97.5%、密度为 0.792 g/mL 的甲醇与水混合, 配置成体积分

数分别为 100%, 80%, 66%, 50%, 40%, 25%, 20%, 10% 的甲醇溶液. 甲醇分子的分子振动模式主要是 C—H 的拉伸振动, 这种拉伸振动又分为对称拉伸振动和非对称拉伸振动, 分别对应于振动谱中振动波数为 2851, 2960 cm^{-1} 的位置. 分别测量这几种不同体积分数的甲醇溶液的 C—H 的拉伸振动的振动退相过程, 并测量其振动退相时间. 所得到的体积分数为 100% 的甲醇溶液的 CARS 光谱如图 4 所示, 利用单指数拟合的数据处理方法, 对甲醇溶液的 CARS 信号强度随时间变化的数据进行处理, 得各振动模式的振动退相时间如图 5 所示.

同理, 可分别测出其他体积分数的甲醇溶液中甲醇的 C—H 的对称拉伸振动和非对称拉伸振动的情况, 其测量结果列于表 1. 甲醇溶液中 C—H 拉伸振动的振动弛豫过程的变化与体积分数之间的关系如图 6 所示.

表 1 甲醇分子 C—H 拉伸振动退相时间随体积分数变化数据

Table 1. The data of relaxation process and dephasing time varying with volume fractions for methanol molecule C—H stretching vibration.

2 \ 1 \ 3	10%	20%	25%	40%	50%	66%	80%	100%
2851 cm^{-1}	764	498	445	280	240	540	560	688
2960 cm^{-1}	726	601	551	348	292	400	530	942

1, 体积分数; 2, 退相时间 ($T/2$), 单位为 fs; 3, 波数.

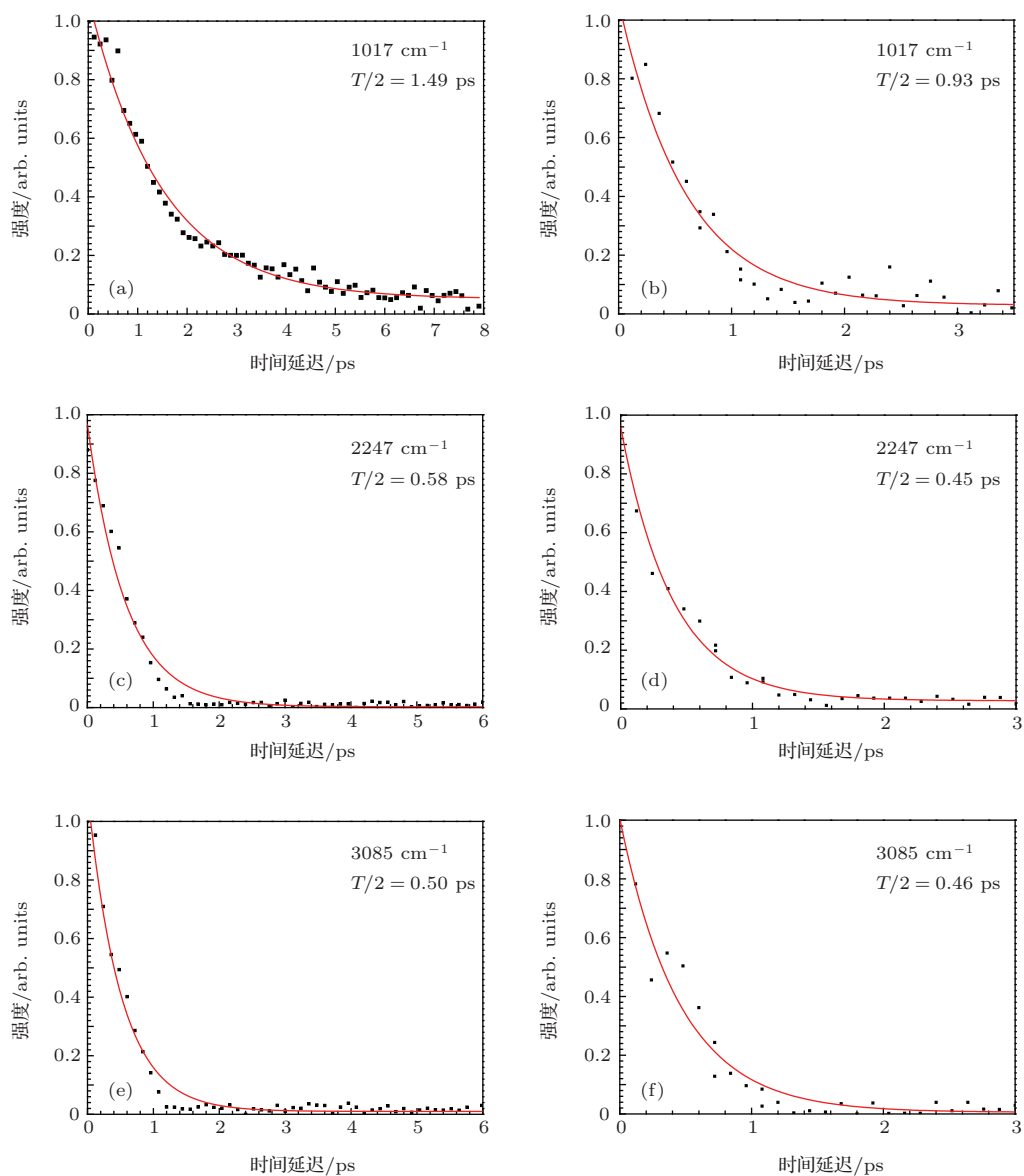


图3 苯甲腈分子振动波数 1017, 2247 和 3085 cm^{-1} 振动模式的单指数拟合曲线 (a), (c), (e) 对应摩尔数之比为 1 : 1; (b), (d), (f) 对应摩尔数之比为 1 : 5

Fig. 3. Benzonitrile molecular vibrational wave numbers 1017 cm^{-1} , 2247 cm^{-1} and 3085 cm^{-1} vibration modes of a single exponential fitted curve: (a), (c), (e) for mol ratio 1 : 1; (b), (d), (f) for mol ratio 1 : 5.

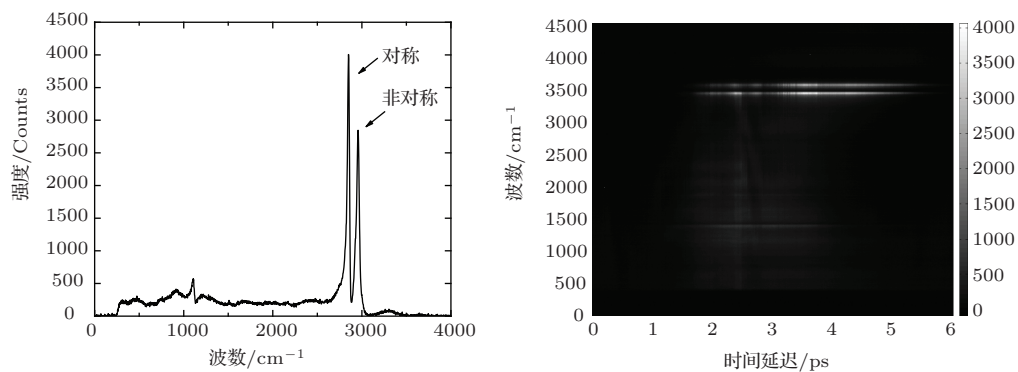


图4 时间延迟为 3.50 ps 时纯甲醇溶液的 CARS 光谱和强度变化

Fig. 4. Time delay for 3.50 ps, the pure methanol CARS spectrum and intensity.

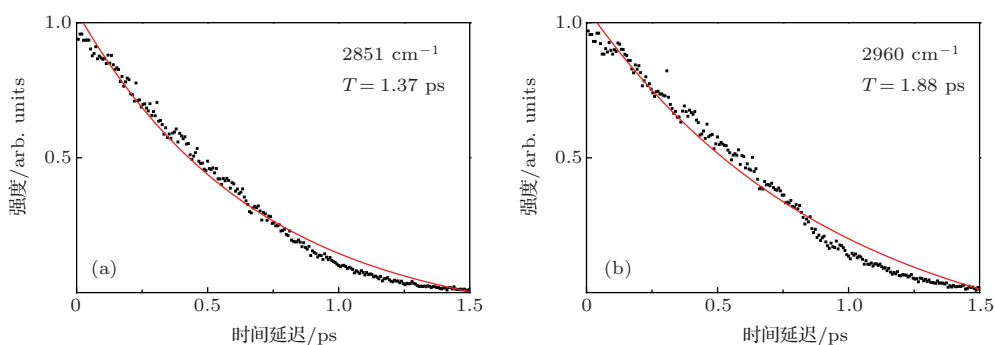


图5 甲醇分子C—H的振动退相时间 (a) 对称拉伸振动; (b) 非对称拉伸振动

Fig. 5. Relaxation process and dephasing time for vibrational bands of methanol molecule C—H: (a) symmetrical stretching vibration; (b) dissymmetric stretching vibration.

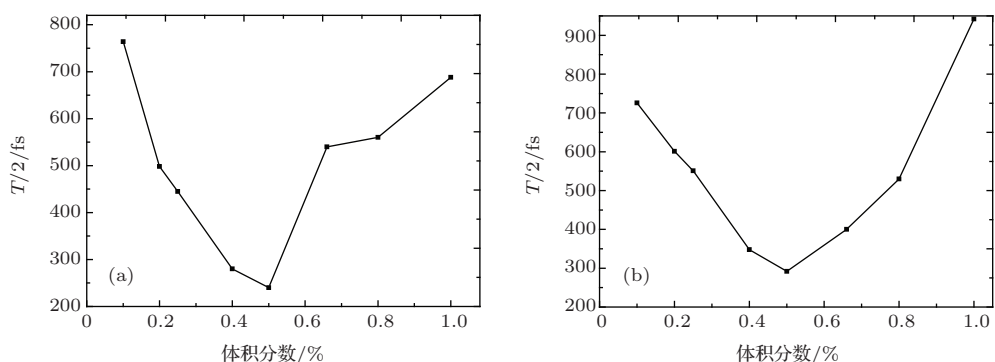


图6 甲醇分子C—H的振动退相时间与体积分数的关系 (a) 对称拉伸振动; (b) 非对称拉伸振动

Fig. 6. Relations of relaxation process and dephasing time varying with volume fractions for vibrational bands of methanol molecule C—H: (a) symmetrical stretching vibration; (b) dissymmetric stretching vibration.

表2 对称拉伸与非对称拉伸振动拉曼强度比随体积分数变化的数据

Table 2. The data of intensity ratio on symmetrical stretching vibration and dissymmetric stretching vibration varying with volume fractions.

1 \ 2	1	10%	20%	25%	40%	50%	66%	80%	100%
I_{2851}/I_{2960}		0.81	0.89	1.03	0.87	1.30	1.54	1.57	2.32

1, 体积分数; 2, 光强度比.

图6显示甲醇的C—H的对称拉伸振动和非对称拉伸振动的振动退相时间随甲醇溶液的体积分数呈双向变化. 产生这种规律主要是由于甲醇分子与周围分子的相互碰撞引起的分子振动弛豫所引起. 甲醇与水在任何比例混合下都能够互溶, 特别是在体积分数从45%到73%的溶液中, 甲醇与水混合后能够形成(extended structures)扩展结构, 而更大的结构通常能够引起更多的碰撞, 所以这种复杂的扩展结构能够加速分子振动弛豫过程^[15,16]. 反之, 从分子振动弛豫时间可以分析有关分子聚合的有关信息.

为进一步研究混合溶液中甲醇分子的性质, 对

甲醇分子的C—H键对称拉伸振动和非对称拉伸振动的拉曼强度比与溶液的体积分数的关系进行了分析, 其关系数据如表2所列.

对称拉伸与非对称拉伸振动拉曼强度比随体积分数的变化趋势如图7所示. 在拉曼频率没有发生偏移的情况下, C—H键的对称拉伸振动和非对称拉伸振动拉曼强度比呈单向变化, 但C—H键拉曼强度随着体积分数的减小有增加非对称振动强度的趋势. 产生这种趋势的原因主要是溶液中甲醇分子的结构发生变化从而导致电荷受到原子核的约束程度发生改变. 甲醇分子结构变化的原因是其周围的水分子的分布不对称, 导致甲醇分子

周围的势场不对称,从而导致极化率不对称.此外甲醇分子有可能与周围的氢键相结合形成非对称结构,这种非对称的结构导致甲醇分子自身的结构发生改变.这两个潜在的因素都有可能使得C—H键的非对称拉伸振动获得加强.因此,拉曼峰强度也能够作为研究物质分子和所处环境变化的一种方法.

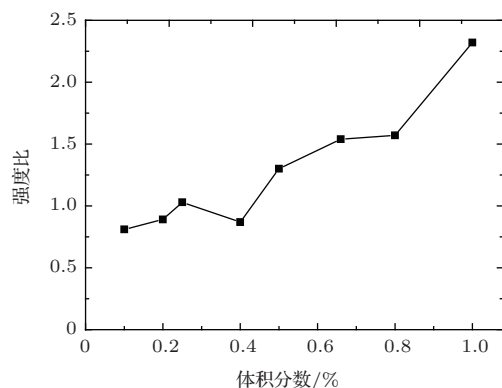


图7 对称拉伸与非对称拉伸振动拉曼强度比随体积分数的关系

Fig. 7. The Relations of intensity ratio on symmetrical stretching vibration and dissymmetric stretching vibration varying with volume fractions.

从实验结果可看出,超连续谱激发的CARS方法同时能够获得多个振动模式(或全部振动模式)的分子振动弛豫过程和退相时间,该方法具有一次获得分子振动弛豫过程和退相时间全貌的能力.

4 结 论

对苯甲腈分子的三个较强振动模式,利用超连续谱激发的时间分辨CARS测量方法进行了振动弛豫过程的同时实验测量.通过实验测量得到了各个振动模式在不同环境下(苯甲腈与无水乙醇混合)的振动退相时间,并对甲醇两个相邻较强的振动模式在不同环境下(甲醇与水混合)的振动退相时间也进行了实验测量.实验结果表明:1)分子的振动退相时间在不同环境下会发生明显的变化;反之,分子的振动退相时间的变化反映了分子所处环境的变化;2)当分子所处环境发生单向变化时,苯甲腈分子波数为1017, 2247和3085 cm^{-1} 的振动退相时间呈单向变化,而甲醇分子波数为2851, 2960 cm^{-1} 的两个振动退相时间呈非单向变化,这说明当分子所处环境发生单向变化时,分子的振动退相时间变化不一定是单向;3)甲醇波数为2851, 2960 cm^{-1} 的两个振动强度比 I_{2851}/I_{2960} 随所处环境发生单向变化而呈单向变化.

从实验结果可看出,分子振动退相时间的变化能够反映其所处环境的变化,也反映出与周边分子相互作用的变化,因此它可能成为一种研究细胞内环境变化和溶质-溶剂分子相互作用的手段.由于采用近红外飞秒激光,对生物细胞杀伤很小,又无须对生物样品进行标记,故具有无损识别细胞内各种组分和监测细胞中环境变化的潜在能力.因此,可以通过测量分子振动退相时间的变化推断出细胞样品中目标分子所处环境的变化,或不同分子间有无相互作用.另一方面,可看出分子振动退相时间随分子环境变化的复杂性,要使振动退相时间成为测量分析的工具,需要具体问题具体分析,通过实验对具体问题积累相关数据,确定分析方法.

上述实验是初步的探索,但随着利用超连续谱激发时间分辨CARS法测量分子振动退相时间对具体问题的深入研究、积累数据和进一步完善分析方法,它将会成为一种新的无损分析细胞内分子相互作用或检测细胞变化的工具,这在分子生物学、细胞生物学和医学等领域具有重要的应用.

参考文献

- [1] Pigliucci A, Duvanel G, Daku I M, Vauthey E 2007 *J. Phys. Chem.* **111** 6135
- [2] Volker A, Book I D, Xie X S 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1505
- [3] Dmitry P, Zhi M C, Zoe-Elizabeth S, Nikolai G K, Alexander K, Robert M, Yuri V R, Vladimir A S, Alexei V S, Marlan O S 2006 *J. Raman Spectrosc.* **37** 392
- [4] Yeremenko S, Pshenichnikov M S, Wiersma D A 2003 *Chem. Phys. Lett.* **369** 107
- [5] Watanabe D, Hamaguchi H 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 034508
- [6] Bartoli F J, Litovitz T A 1972 *J. Phys. Chem.* **56** 404
- [7] Schmitt M, Knopp G, Materny A, Kiefer W 1997 *Chem. Phys. Lett.* **270** 9
- [8] Roy S, Richardson D, Kinnius P J, Lucht R P, Gord J R 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 144101
- [9] Yu L Y, Yin J, Wan H, Liu X, Qu J L, Niu H B, Lin Z Y 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5406 (in Chinese) [于凌尧, 尹君, 万辉, 刘星, 屈军乐, 牛憨笨, 林子扬 2010 物理学报 **59** 5406]
- [10] Yin J, Yu F, Hou G H, Liang R F, Tian Y L, Lin Z Y, Niu H B 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 073301 (in Chinese) [尹君, 余锋, 侯国辉, 梁闰富, 田宇亮, 林子扬, 牛憨笨 2014 物理学报 **63** 073301]
- [11] Yin J, Yu L Y, Liu X, Wan H, Lin Z Y, Niu H B 2011 *Chin. Phys. B* **20** 014206
- [12] Wan H, Yin J, Yu L Y, Liu X, Qu J L, Lin Z Y, Niu H B 2011 *Spectrosc. Spectr. Anal.* **31** 314 (in Chinese) [万辉, 尹君, 于凌尧, 刘星, 屈军乐, 林子扬, 牛憨笨 2011 光谱学与光谱分析 **31** 314]

- [13] Hamaguchi H, Gustafson T L 1994 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **45** 593
 [14] Hubble H W, Lai T S, Berg M A 2001 *J. Chem. Phys.* **114** 3662
 [15] Pestov D, Zhi M, Sariyanni Z E, Kalugin N G, Kolomen-skii A, Murawski R, Rostovtsev Y V, Sautenkov V A, Sokolov A V, Scully M O 2006 *J. Raman Spectrosc.* **37** 392
 [16] Dougan L, Bates S P, Hargreaves R, Fox J P, Crain J, Finney J L, Reat V, Soper A K 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 6456

Experimental study on vibration dephasing time varying with molecular surroundings*

Lin Zi-Yang^{1)†} Wan Hui²⁾ Yin Jun¹⁾ Hou Guo-Hui¹⁾ Niu Han-Ben^{1)‡}

1) (College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems of Ministry of Education and Guangdong Province, Shenzhen 518060, China)

2) (3rd Institute of Physics, University of Stuttgart, Pfaffenwaldring 57, 70550 Stuttgart, Germany)

(Received 9 February 2015; revised manuscript received 20 March 2015)

Abstract

Measuring the vibration dephasing time in molecular vibration is the free-mark method for detecting molecules harmlessly. Since molecular vibration refund processes are associated with molecular environment change, molecular vibration dephasing time also may reflect the substance's molecular environment change, which can be used to study the interaction between a certain molecule and its neighboring molecules. The molecular vibration spectrum and vibration dephasing time are obtained from the time-resolved coherent anti-stokes Raman scattering (CARS) simultaneously. Benzonitrile and methanol are used as samples for studying, the vibration dephasing time changes for the main vibration spectra when the environment changes. With benzonitrile mixed with anhydrous alcohol, its vibration dephasing time changes with environment are measured in three typical benzonitrile molecular vibrations 1017 cm^{-1} , 2247 cm^{-1} and 3085 cm^{-1} . For adjoining methanol molecular vibrations 2851 cm^{-1} , and 2960 cm^{-1} , vibration dephasing time changes are measured under environmental conditions. Results show that significant changes of molecular vibration dephasing time will take place in different environments. For a unidirectional molecular environment change, the molecular vibration dephasing time of benzonitrile is a one-way change, while the methanol molecule is of non-unidirectional vibration dephasing time change. But methanol molecules with vibration intensity ratios between two unidirectional changes with environment for I_{2851}/I_{2960} are of a one-way change.

By experimental measurement the vibration dephasing time of the main vibration mode of benzonitrile and methanol molecules varies with the changes in the environment, further understanding of differences on vibration dephasing time of molecular vibration spectra of adjacent and non-adjacent variations can explain the variation of vibration dephasing time of methanol molecules. This method has the ability of detecting molecular environment change and molecular interactions, and has an important application prospect in the field of life science, molecular biology, and material science etc..

Keywords: coherent anti-Stokes Raman scattering, vibrational dephasing time, time-resolved method, molecular vibrational spectrum

PACS: 33.20.Fb, 42.65.Dr

DOI: 10.7498/aps.64.143301

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2012CB825802), the Specially Funded Program on National Key Scientific Instruments and Equipment Development of China (Grant No. 2012YQ150092), and the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61235012).

† Corresponding author. E-mail: lzy@szu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: hbniu@szu.edu.cn