

测温技术中 CARS 谱的模拟计算

虞海平 王庆宇 李郁芬

(复旦大学物理系)

提要: 详细地介绍了 N_2 CARS 光谱的模拟计算过程以及在公式推导和计算中的近似。给出了激光线宽对 CARS 光谱展宽的简化卷积公式, 并拟合给出了 $0\sim 1$ 振动跃迁基带和 $1\sim 2$ 振动跃迁热带带头的波数值。

Computer simulation of CARS spectrum in thermometry

Yu Haiping, Wang Qingyu, Li Yufen

(Department of Physics, Fudan University, Shanghai)

Abstract: The computer simulation method of CARS spectrum is discussed in detail. The effect of laser linewidth is taken into account by convolution. This method has been used to simulate the nitrogen (N_2) CARS spectra at different temperatures. With the laser linewidth used in our CARS experiment, the computer simulated N_2 CARS spectra are in good agreement with the experimental ones. The approximations used in the derivation of the equations and in the theoretical calculations are also discussed.

相干反斯托克斯喇曼散射(CARS)光谱技术是诊断燃烧的有效手段。但在这种诊断中, 被测体系的温度、组分的浓度及粒子布居分布函数等参量必须通过精确的理论模拟计算和实验的拟合, 才能从探针分子 CARS 谱的线型轮廓中获取信息。由于 CARS 过程的非线性和相干性, 光谱轮廓不但受到探针分子喇曼活性模本身特性的影响, 还受到入射激光场统计特性及强度分布的影响, 这又造成了 CARS 谱分析的复杂性, 给理论模拟计算带来了困难。尽管如此, M. A. Yuratich^[1]对 CARS 谱的理论计算作了优秀而全面的讨论, 从原则上解决了这一问题, 但具体计算

极为复杂。后来的文章^[2, 3]对文献[1]作了某些数学简化, 获得了所谓的紧凑(closed-form)计算表达式, 依然还很复杂。基于这种情况, 我们参考了前人的工作, 根据我们的实验条件, 作了简化和近似, 完成了对 CARS 谱的理论计算工作, 编写了计算程序, 所得的计算谱和实验结果基本一致。

一、基本原理

把激光束视作高斯光束, 忽略光与介质相互作用时光能量的损耗及介质能级上粒子

收稿日期: 1986年8月5日。

布居的变化, 且实验满足相位匹配条件, CARS 信号功率可写成^[4]:

$$P_a = (16\pi^3/\lambda_a\lambda_p c)^2 |\chi^{(3)}|^2 P_p^2 P_s \quad (1)$$

这里 P 代表功率, λ 代表波长, c 为光速, $\chi^{(3)}$ 为三阶非线性极化率。对于分子的振转跃迁来说, $\chi^{(3)}$ 可表达成^[5]:

$$\chi^{(3)} = \chi_{NR} + \sum_{V,J} (Nc^2/h\omega_s^4) (d\sigma/d\Omega)_{V,J} \frac{\Delta_{V,J}}{\omega_{V,J} - (\omega_p - \omega_s) - i\Gamma_{V,J}} \quad (2)$$

式中 χ_{NR} 为三阶非共振极化率, $\omega_{V,J}$ 为喇曼活性模频率, 其对应的自发喇曼线宽半宽度为 $\Gamma_{V,J}$, $\Delta_{V,J}$ 为喇曼跃迁的上、下能级的粒子布居几率差, N 为探针分子的总粒子数, 故 $N \cdot \Delta_{V,J}$ 为喇曼跃迁的上、下能级的布居数之差:

$$N \Delta_{V,J} = N_{V,J} - N_{V+1,J} \quad (3a)$$

式中

$$N_{V,J} = N g_J g_V \exp(-E_{V,J}/KT) / Q_V Q_R \quad (3b)$$

这里 g_J 、 g_V 分别为转动能级简并度和核自旋统计权重, T 正是被测体系的热平衡温度; Q_V 、 Q_R 分别为振、转能级配分函数; $E_{V,J}$ 为喇曼跃迁初始能级的能量值。(2) 式中 $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_{V,J}$ 为自发喇曼散射截面, 对于分子的 Q 支 ($\Delta J=0$) 跃迁, 其表达式为^[6]:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{V,J} = (\omega_s/c)^4 (h/2m\omega_0) \times \left[\alpha^2 + \frac{7}{4S} b_J^2 \gamma^2 \right] \cdot (V+1) \quad (4)$$

这里 m 、 ω_0 分别为分子的折合质量和纯振动频率, α 、 γ 分别为喇曼极化张量的各向同性和各向异性部分, b_J^2 为喇曼 Q 支转动跃迁强度因子。上述所有式中 V 、 J 分别代表跃迁初始能级的振动和转动量子数。

从 (3) 式中可知, 对热平衡体系, 有一确定的体系温度 T , 就有一对应的探针分子的布居数, 代入 (2)、(1) 两式, 就会有一对应确

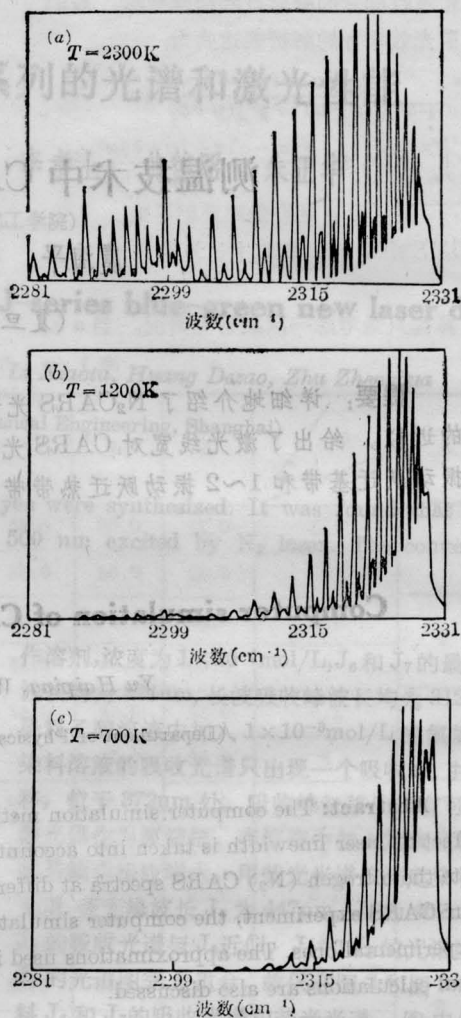


图1 不同温度下 N_2 的 CARS 计算谱
($\Delta\omega_p = \Delta\omega_s = 0.3\text{cm}^{-1}$)

定的 CARS 光谱; 也就是说, 不同的体系温度具有不同的 CARS 谱轮廓。于是从 CARS 光谱中就可找出对应的体系温度。图 1 是三个不同温度下 N_2 的 CARS 计算谱。

从原理上说, 联立方程 (1)~(4) 就已经解决了 CARS 谱的计算, 但是实际上的 CARS 谱受到样品气体压力、探针分子浓度、喇曼活性模半宽度和三阶非共振极化率等的影响, 特别还受到入射激光场光束质量的影响。对于我们的实验条件, 总气压为一大气压, 探针分子 N_2 的浓度为 80%, 因而在我们的模拟计算中主要考虑入射激光场有限宽度

对 CARS 谱的展宽影响和半宽度 $\Gamma_{\nu, J}$ 随温度变化的影响。

二、激光线宽对 CARS 谱轮廓的影响

考虑到有限的激光线宽对 CARS 谱的展宽影响时, (1) 式可写成^[6]:

$$P_a(\omega_a) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_p P_p(\omega_p) \times \int_{-\infty}^{+\infty} d\delta P_p(\omega - \delta) P_s(\omega_p - \delta) \times |\chi^{(3)}(\delta)|^2 \quad (5)$$

式中 $\delta = \omega_p - \omega_s$ 。对于上式可以这样来简化, 虽然我们并不了解激光场的统计性质及其精确的强度分布, 但可以近似地假设激光场是高斯分布:

$$I_p(\omega_p - \omega_p^0) = I_p^0 \exp[-(\omega_p - \omega_p^0)^2 / \Gamma_p^2] \\ \equiv I_p^0 \exp[-A(\omega_p - \omega_p^0)^2] \quad (6)$$

$$I_s(\omega_s - \omega_s^0) = I_s^0 \exp[-(\omega_s - \omega_s^0)^2 / \Gamma_s^2] \\ \equiv I_s^0 \exp[-B(\omega_s - \omega_s^0)^2] \quad (7)$$

式中 I^0 是强度幅值, ω^0 是中心频率, ω 为任意频率, Γ 为强度下降到 $1/e$ 时的高斯半宽度。如果用强度半值宽度 $\Delta\omega_p$ 、 $\Delta\omega_s$ 来表示高斯半宽度, 则两者的关系式有:

$$A = 1/\Gamma_p^2 = 4 \ln 2 / \Delta\omega_p^2 \quad (8a)$$

$$B = 1/\Gamma_s^2 = 4 \ln 2 / \Delta\omega_s^2 \quad (8b)$$

CARS 过程是四波混频过程, 一般地三阶极化率中含有 ω_p 、 ω_s 、 ω'_p 、 ω_s 因子, 但对于只存在喇曼共振情况下, 其三阶极化率的共振项中只含一个共振因子 $\omega_{\nu, J} - (\omega_p - \omega_s)$ 或 $\omega_{\nu, J} - (\omega'_p - \omega_s)$ ^[7]。当共振因子为 $\omega_p - \omega_s$ 时, $\chi^{(3)}$ 中不含 ω'_p , 则 ω'_p 的积分可从 $\chi^{(3)}$ 中提出; 反之, 当共振因子为 $\omega'_p - \omega_s$ 时, 则 ω_p 的积分可以提出, 两者完全等价。我们假设 $\chi^{(3)}$ 中只含 $\omega_{\nu, J} - (\omega_p - \omega_s)$ 的共振因子, 则经过

附录 I^[8] 中的简化, 用激光线宽全宽度 $4\omega_p$ 、 $4\omega_s$ 来表示。(1) 式经卷积 (5), 可表达成:

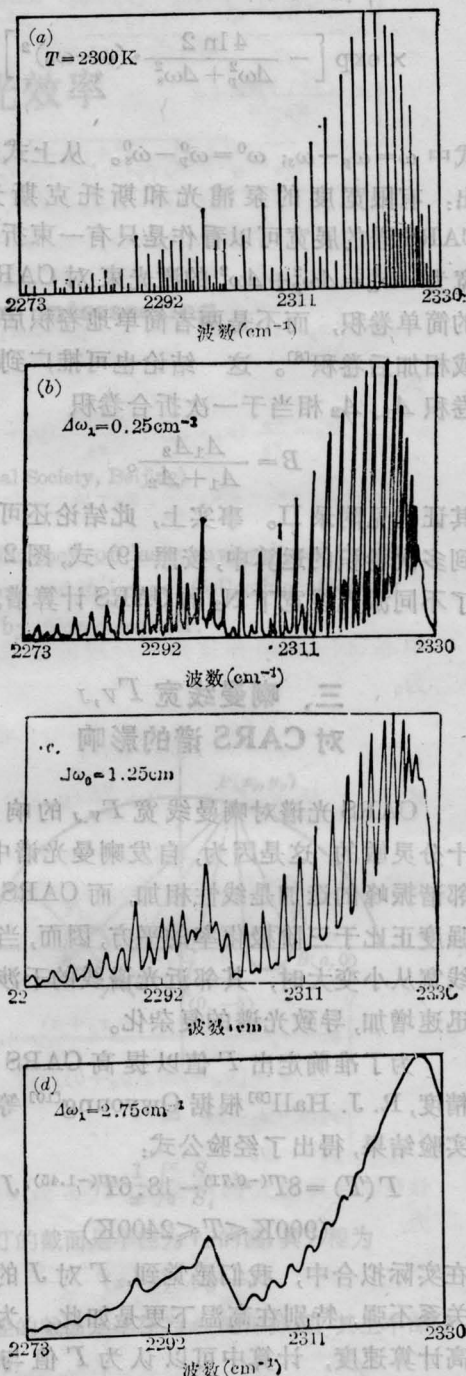


图 2 不同激光线宽下 N_2 的 CARS 卷积计算谱
(温度 $T=2300K$, $\Delta\omega_p=0.3cm^{-1}$)
其中 (a) 为未卷积谱

$P_a(\omega_a)$

$$= K \int |\chi^{(3)}(\omega)|^2 \times \exp \left[-\frac{4 \ln 2}{\Delta\omega_p^2 + \Delta\omega_s^2} \cdot (\omega - \omega_0)^2 \right] d\omega \quad (9)$$

式中 $\omega = \omega_p - \omega_s$; $\omega^0 = \omega_p^0 - \omega_s^0$ 。从上式中得出: 有限宽度的泵浦光和斯托克斯光对 CARS 谱的展宽可以看作是只有一束折合线宽为 $\Delta\omega_r^2 = \Delta\omega_p^2 + \Delta\omega_s^2$ 的激光束对 CARS 谱的简单卷积, 而不是两者简单地卷积后相加或相加后卷积^[8]。这一结论也可推广到两次卷积 A_1 、 A_2 相当于一次折合卷积

$$B = \frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2}$$

其证明见附录 II。事实上, 此结论还可推广到多次卷积的运算中, 按照 (9) 式, 图 2 给出了不同激光线下 N_2 的 CARS 计算谱。

三、喇曼线宽 $\Gamma_{V,J}$ 对 CARS 谱的影响

CARS 光谱对喇曼线宽 $\Gamma_{V,J}$ 的响应是十分灵敏的, 这是因为, 自发喇曼光谱中, 相邻谐振峰的迭加是线性相加, 而 CARS 信号强度正比于三阶极化率的平方, 因而, 当喇曼线宽从小变大时, 其邻近光谱线的干涉效应迅速增加, 导致光谱的复杂化。

为了准确定出 Γ 值以提高 CARS 测温精度, R. J. Hall^[9] 根据 Owyong^[10] 等人的实验结果, 得出了经验公式:

$$\Gamma(T) = 8T^{(-0.71)} - 18.6T^{(-1.45)} \cdot J \quad (900K \leq T \leq 2400K) \quad (10)$$

在实际拟合中, 我们感觉到, Γ 对 J 的依赖关系不强, 特别在高温下更是如此。为了提高计算速度, 计算中可以认为 Γ 值与 J 无关, 而且, Hall 公式的适用范围也不够大, 有必要拟合出更为简单的经验公式。对于分子体系来讲, 喇曼线宽值主要取决于压力碰撞加宽的程度, 只在低压时, 才显示出多普勒加

宽的效应。假设标准压力和温度下的喇曼宽度值为 $\Gamma(T_0)$, 则不同温度下的喇曼值应为 $\Gamma(T) = \Gamma(T_0) (T_0/T)^y$ 。按经典碰撞理论, 碰撞频率 $Z \propto P/\sqrt{T}$, 则指数 y 应为 0.5。由于量子效应的修正, 喇曼线宽对温度的依赖可写成^[11] $\Gamma(T) \propto T^{-(n+4)/2n}$ 。对于甲醇拟合结果为 $n=12$, 则 $y=2/3$ 。按照上述式子和理论, 我们通过对 Hall 式子的拟合, 得到 N_2 分子的喇曼线度对温度的依赖关系为:

$$\Gamma(T) = \Gamma(300) (300/T)^{0.62} \quad (300K \leq T \leq 2400K) \quad (11)$$

式中 $\Gamma_{N_2}(300) = 0.12 \text{cm}^{-1}$ (FWHM), 取自文献[10]。

四、计算程序

按照 (9) 式, 先计算 $|\chi^{(3)}|^2$, 再计算卷积。

为了计算方便, 我们可以把 $|\chi^{(3)}|^2$ 写成虚部和实部, 并假设 χ_{NR} 为一实数, 则有:

$$|\chi^{(3)}|^2 = |\chi_{NR} + \chi'_R + i\chi''_R|^2 = (\chi_{NR} + \chi'_R)^2 + (\chi''_R)^2 \quad (12)$$

其计算步骤为:

1. 在确定的温度 T 、频率 ω_s^0 下, 计算半宽度值 $\Gamma_{V,J} = \Gamma(T)$ 。
2. 计算确定 V, J 能级的 $E_{V,J}$ 和 $E_{V+1,J}$, 频率 $\omega_{V,J}$ 及 $\chi'_R(V, J)$ 和 $\chi''_R(V, J)$, 改变 J, V , 重新再计算一遍, 并先对 J 求和, 再对 V 求和, 最后得到:

$$|\chi^{(3)}|^2 = [\chi_{NR} + \sum_{V,J} \chi'_R(V, J)]^2 + [\sum_{V,J} \chi''_R(V, J)]^2$$

其中 J, V 量子数的最大值要视第一步确定的温度的高低而定。

3. 把卷积式 (9) 式化成求和, 并计算之, 得到确定 ω_s^0 下的 CARS 信号功率 $P_a(\omega_a)$ 。

4. 改变斯托克斯频率 ω_s^0 , 重新计算步骤 (2) 和 (3), 可得到另一对应 ω_s^0 下的 CARS 信号 $P_a(\omega_a)$, 这样, 在 ω_s 扫描内, 求出所有对应的 $P_a(\omega_a)$, 并把 $\omega_p^0 - \omega_s^0$ 作为横坐标,

$P_e(\omega_e)$ 作为纵坐标作图, 即得确定温度下的 CARS 光谱。

在实际计算中, 为了减少计算时间, 避免不必要的重复计算, 可以先计算所有 ω_s^0 扫描范围内的三阶极化率 $|\chi^{(3)}(\omega_p - \omega_s^0)|^2$, 并存储之, 再进行 ω_s^0 扫描下的卷积运算, 而且卷积因子化作求和时的分割也只需运算一次, 以后调用就是了。

五、所用的近似、参数及其修正

1. 在探针分子为 N_2 , 且其浓度为 80% 时, 信号主要由三阶非线性极化率的共振部分贡献, 由于一般不能精确定出 χ_{NR} 的值, 故在数量级近似的范围内, 选取 χ_{NR} 为一实数, 且为共振部分的五分之一到三十分之一。在我们的计算中, 取 $\chi_{NR}/|\chi_k^{(3)}| = 1/50$ 。

2. 配分函数 Q_V 、 Q_R 尽管是温度的函数, 但可以很好近似地认为它只影响共振项的幅值, 不影响光谱结构, 故可并入常系数之内。

3. Q 支跃迁的 CARS 信号主要由喇曼极化张量的各向同性部分贡献, 故可近似认为与 J 无关, 则有

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{V,J} \cong K \cdot (V+1),$$

K 为 (4) 式中所有与 V, J 无系数的乘积。

4. 从实验 CARS 谱中发现, 当温度 $T < 1000K$ 时, 根本不出现热带, 而当 $T > 1200K$ 时才有一点略略可见的热带。所以, 在计算中, 当 $T \leq 1000K$, 可只计及基带, 当 $T \geq 1200K$ 且 $\leq 2400K$, 则除基带外, 还应计算热带的贡献。当温度更高时, V 的求和更多, 还应计算 $V=2 \rightarrow V=3$ 的跃迁, 对应 J 的求和分别为 $J=0 \rightarrow 80$ 和 $J=0 \rightarrow 120$ 等等。

5. 能级的计算按照下式:

$$E_{V,J} = hc \left\{ \left[\omega_e \left(V + \frac{1}{2} \right) - \omega_e x_e \left(V + \frac{1}{2} \right)^2 \right] + \left[B_e - \alpha_e \left(V + \frac{1}{2} \right) \right] J \cdot (J+1) + D_e [J(J+1)]^2 \right\} \quad (13)$$

频率的计算按照下式:

$$\omega_{V,J} = \nu_{V,V+1} - \alpha_1 J \cdot (J+1) - \alpha_2 [J(J+1)]^2 - \alpha_3 [J(J+1)]^3 \quad (14)$$

当我们按上面两式、从文献 [12] 中取出常数进行计算时, 计算谱和实测谱在热带结构中较大的差别。我们进行了修正, 得到

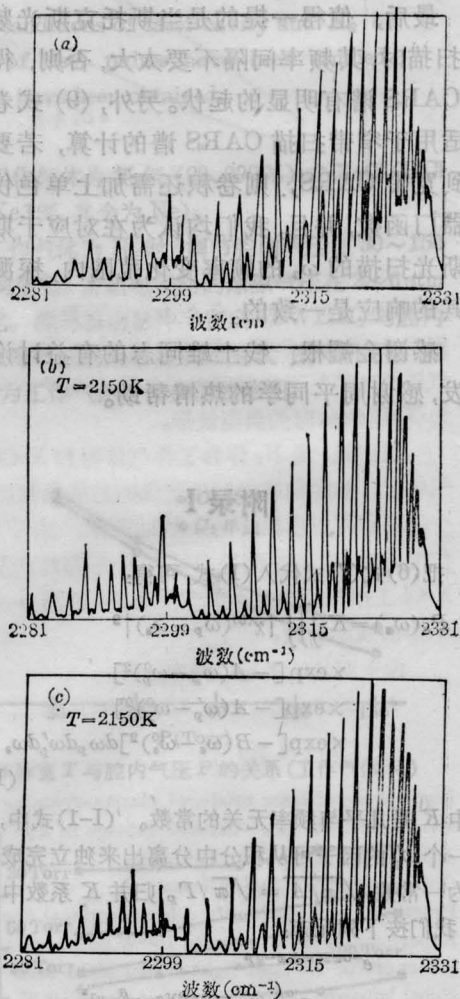


图3 不同参量下的 N_2 CARS 计算谱与实验谱的比较

(a) 实验谱; (b) 经拟合后的计算谱; (c) 参量取自文献 [12] 的计算谱

了一组拟合后的参数, 用它们来计算得到的结果和实测谱符合得较好, 其中基带跃迁带头值 $\nu_{0,1} = 2329.92 \text{ cm}^{-1}$ 和热带带头值 $\nu_{1,2} = 2301.27 \text{ cm}^{-1}$ 与文献[13]中算出的带头值比较接近。用拟合后的一组参数及用文献[12]的一组参数分别得到的 CARS 谱与实验谱, 列于图 3 中。实验谱的获得详见 CARS 测温技术研究 I^[4]。按照上述近似和我们拟合的参量如: $\Gamma_{V,J}, \nu_{0,1}, \alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ 等, 则计算所得的 N_2 CARS 谱精度估计在 2% 左右。

最后, 值得一提的是当斯托克斯光频率 ω_s 扫描时, 其频率间隔不要太大, 否则, 得到的 CARS 谱有明显的起伏。另外, (9) 式卷积只适用于窄带扫描 CARS 谱的计算, 若要推广到宽带 CARS, 则卷积还需加上单色仪的仪器门函数, 并且, 我们均认为在对应于斯托克斯光扫描的 ω_s 的频率变化范围内, 探测器对其的响应是一致的。

感谢金耀根、钱土雄同志的有益讨论和启发, 感谢周平同学的热情帮助。

附录 I

把(6)式(7)式代入(1)式, 可得:

$$P_a(\omega_s) = K \iiint |\chi^{(3)}(\omega_p - \omega_s)|^2 \times \exp[-A(\omega_p - \omega_p^0)^2] \times \exp[-A(\omega'_p - \omega_p^0)^2] \times \exp[-B(\omega_s - \omega_s^0)^2] d\omega_p d\omega'_p d\omega_s \quad (\text{I-1})$$

式中 K 是几乎与频率无关的常数。(I-1)式中, 只含一个 ω_p 的因子可从积分中分离出来独立完成, 结果为一常数 $\sqrt{\pi/A} = \sqrt{\pi}/\Gamma_p$, 归并 K 系数中。然后, 我们按下列配方:

$$e^{-\alpha x^2} e^{-\beta(x-y)^2} = e^{-\frac{\alpha\beta}{\alpha+\beta}y^2} e^{-\frac{(\alpha+\beta)[x-\frac{\beta}{\alpha+\beta}y]^2}{\alpha+\beta}} \quad (\text{I-2})$$

即:

$$\alpha x^2 + \beta(x-y)^2 = (\alpha+\beta) \left[x^2 - \frac{2\beta xy}{\alpha+\beta} + \left(\frac{\beta}{\alpha+\beta}\right)^2 y^2 \right]$$

$$-\left(\frac{\beta}{\alpha+\beta}\right)^2 y^2 + \frac{\beta}{\alpha+\beta} y^2 \Big] = (\alpha+\beta) \left[x - \frac{\beta}{\alpha+\beta} y \right]^2 + \left(\beta - \frac{\beta^2}{\alpha+\beta} \right) y^2 = (\alpha+\beta) \left(x - \frac{\alpha}{\alpha+\beta} y \right)^2 + \frac{\alpha\beta}{\alpha+\beta} y^2 \quad (\text{I-3})$$

并令 $\omega = \omega_p - \omega_s$, $\omega_0 = \omega_p^0 - \omega_s^0$, 则(I-1)式可写成:

$$P_a(\omega_s) = K \iint |\chi^{(3)}(\omega)|^2 \cdot \exp \left[-\frac{AB}{A+B} (\omega - \omega_0)^2 \right] \times \exp \left[-(A+B) \cdot \left\{ \omega_p - \left[\omega_p^0 + \frac{B}{A+B} (\omega - \omega_0) \right] \right\}^2 \right] d\omega_p d\omega \quad (\text{I-4})$$

从(I-4)式中看出 ω_p 的积分与 $\chi^{(3)}(\omega)$ 无关, 故可独立完成, 得一常数 $\sqrt{\pi/(A+B)}$, 仍可并入 K 系数中, 其结果为:

$$P_a(\omega_s) = K \int |\chi^{(3)}(\omega)|^2 e^{-\frac{AB}{A+B}(\omega - \omega_0)^2} d\omega = K \int |\chi^{(3)}(\omega)|^2 e^{-\frac{4 \ln 2}{4\omega_p^2 + 4\omega_s^2}(\omega - \omega_0)^2} d\omega \quad (\text{I-5})$$

这就是(9)式。

附录 II

两次卷积 A_1, A_2 相当于一折合卷积

$$B = \frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2}$$

的结论证明如下:

设 $g(\omega)$ 是函数 $F(x)$ 的二次卷积的结果, 作为一次折合卷积, 可写成:

$$g(\omega) = \iint F(x) e^{-A_1(\omega - \omega_0)^2} e^{-A_2(x - \omega_0)^2} d\omega_0 dx = C \int F(x) e^{-B(x - \omega)^2} dx \quad (\text{II-1})$$

式中 C 为振幅。按照附录 I, 把上述恒等号后的式子展开:

$$C e^{-B(x - \omega)^2} = \int e^{-A_1(\omega - \omega_0)^2} e^{-A_2(x - \omega_0)^2} d\omega_0 = \int e^{-\frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2} (x - \omega)^2} e^{-(A_1 + A_2) \left[\omega_0 - \frac{A_1 x + A_2 \omega}{A_1 + A_2} \right]^2} d\omega_0 = e^{-\frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2} (x - \omega)^2} \cdot \int e^{-(A_1 + A_2) \left[\omega_0 - \frac{A_1 x + A_2 \omega}{A_1 + A_2} \right]^2} d\omega_0 = \sqrt{\frac{\pi}{A_1 + A_2}} \cdot e^{-\frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2} (x - \omega)^2} \quad (\text{II-2})$$

对照等式两边, 可得:

$$B = \frac{A_1 A_2}{A_1 + A_2} \quad (\text{II-3})$$

(下转第 734 页)

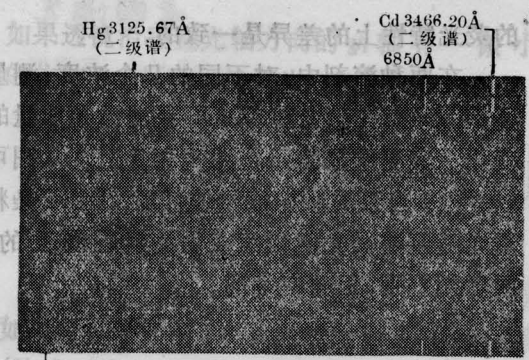


图6 DCM染料的丙二醇碳酸酯溶液的调谐激光谱

摄谱条件: 狭缝宽 10 μm, 光谱仪离激光器 7 m(下同)

的调谐范围。当DMSO作为溶剂时,调谐范围从624nm到695nm;当以PO作为溶剂时,调谐范围从609nm到685nm。表明DCM染料在PO溶剂中的调谐范围略宽于在DMSO溶剂,并且向紫端移动了约15nm。

4. DCM染料激光线宽

我们用标准具测量了DCM染料的丙二

(上接第730页)

$$C = \sqrt{\frac{\pi}{A_1 + A_2}} \quad (II-4)$$

显然, C 大小只影响幅值, 对包络结构均无影响, 它只是把包络结构上下按比值放大、缩小或平移, 因而, 在我们重视光谱包络结构, 而对谱的绝对大小无兴趣的情况下, 可不考虑 C 值, 只考虑卷积因子的折合半宽度 $\frac{1}{B} = \frac{1}{A_1} + \frac{1}{A_2}$ 即够了。

参 考 文 献

[1] M. A. Yuratich; *Mol. Phys.*, 1979, **38**, No. 2 625.
 [2] H. Kataoka et al.; *Appl. Spectrosc.*, 1982, **36** No. 5, 562.
 [3] R. E. Teets; *Opt. Lett.*, 1984, **9**, No. 6, 226.
 [4] W. Nitsch, W. Kiefer; *Opt. Commun.*, 1977, **23**, 240.
 [5] W. M. Tolles et al.; *Appl. Spectrosc.*, 1977, **31**,



图7 DCM的二甲亚砷溶液的调谐激光谱

醇碳酸酯溶液的调谐激光线宽。所用标准具的自由光谱范围 $\Delta\nu = 68 \text{ cm}^{-1}$, 测得的激光线宽为 0.07 nm。

参 考 文 献

[1] 邵子文等;《中国激光》,1981, **8**, No. 10, 1.
 [2] 郭础,张兴康;《量子电子学》,1986, **3**, No. 1, 23.
 [3] 郭础,马纫兰;《量子电子学》,1986, **3**, No. 1, 43.
 [4] 郭础等;《中国激光》,1985, **12**, No. 12, 385.
 [5] 上官诚等;《中国激光》,1984, **11**, No. 1, 4.
 [6] R. J. Hall; *Combust. and Flame*, 1979, **35**, 47.
 [7] Y. R. Shen; "The Principles of Nonlinear Optics", Chapter 14, p. 243, John Wiley & Sons, 1984.
 [8] A. J. Kotlar, J. A. Vanderhoff; *Appl. Spectrosc.*, 1982, **36**, 421.
 [9] R. J. Hall; *Appl. Spectrosc.*, 1980, **34**, 700.
 [10] A. Owyong, L. A. Rahn; *IEEE J. Quant. Electr.*, 1979, **QE-15**, 25D.
 [11] J. McMahon et al.; *JQSRT*, 1972, **12**, 797.
 [12] A. Weber; "High Resolution Rotational Raman Spectra of Gases", ed. by A. Weber. Topics in Current Physics, Vol. 11, Chapter 3, p. 88, 1979.
 [13] K. Hub, G. Herzberg; "Molecular Spectra and Molecular Structure IV", Van Nostrand Reinhold Company, 1979.
 [14] 王庆宇等; "CARS技术测量煤气/空气火焰温度的实验研究", 253.