超流氦中分子的长寿命振动

(中国科学院理化技术研究所 戴 闻 编译自Katherine Wright. Physics, March 20, 2020)

将一个分子包裹在超流氦纳米液滴中,允许研究者清晰地测量该分子的振动。

分子悬浮于其中的溶剂会强烈影响分子的运动。但是,目前研究人员证明,位于超流氦纳米液滴中的分子受到溶剂的影响很小。研究人员用飞秒光脉冲分辨率测量了氦纳米液滴中铟二聚体(In₂)分子内的振动。这一方法可以用来研究与光捕获技术相关的分子,例如太阳能电池,由于溶剂效应而难以对其实施观察。

人们已经知道,一个分子的内部运动影响它如何与光相互作用。奥地利格拉茨工业大学的 Markus Koch说,研究这一运动对于设计太阳能电池的技术人员来说非常重要。为了研究分子的振动,研究人员通常让分子悬浮在水、正己烷或甲醇中,用激光激发它。但使用这些流体有一个问题:液体分子可以与其中的分子强烈相互作用,从而改变原子的运动方式。Koch和他的团队在新的研究中,用超流氦替换

传统溶剂,看是否能缓解这一问题。

研究团队首先展示了他们早期的工作,将单个铟原子放置在一滴超流氦中,用激光脉冲击中原子以观察其运动,并表征了当原子被激光激发时,原子周围形成的空隙形状以及稳定性的变化。Koch说,这项表征工作是新研究的关键"先决条件",因为它使研究人员能够区分该系统中的不同运动。

在Koch团队的新实验中,用铟二聚体In₂代替氦纳米液滴中的单个铟原子。为了包装液滴中的铟二聚体分子,他们在一个箱体里制造了铟蒸气,然后朝箱体中喷射超流氦液滴。平均一滴超流氦通过捡拾俘获两个铟原子,进而原子结合形成In₂。

为了研究这种二聚体的振动,研究人员使用飞秒激光光谱技术,即所谓的泵浦探针技术。首先,激光脉冲"泵浦"分子,激发分子并使其振动。几飞秒之后,另一个脉

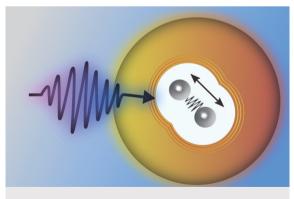
冲"探测"分子,导致它发射一个电子,其能量编码了关于分子振动的信息。该研究小组用这种脉冲反复轰击了超流氦雾滴云,并测量了发射的电子。

电子能量随时间 振荡,这提供了分子 振动的直接测量。这 种振荡约10 ps(10⁻¹² s) 消失,但随后又以相 同频率,振幅逐步降到五分之一(在 145 ps 之后)再次出现。然后,它逐渐消失,在余下的实验中,每145 ps 以同样的振幅再生。

Koch说,振荡振幅的初始下降来自 In₂分子与超流氦相互作用引起分子振动的同步相干性下降。到了145 ps 时,即偏离之振荡短暂地重新同步时,许多液滴已经破裂并排出了它们的 In₂分子。因此,由氦制工作用减少的振荡幅度在以后的复原中保持不变。频率在后期与第一个10 ps 中观察到的相同,这一事实表明,与氦的相互作用是弱的——如果它是强的,频率就会改变。初始振荡的10 ps 存活时间也表明相互作用强度较低,因为它比在其他溶剂中测得的时间长10至100倍。

丹麦奥胡斯大学原子物理学家 Marcel Mudrich 说,Koch 的团队并 不是唯一使用超流氦液滴作为分子 溶剂的团队,但他们是第一个展示 使用这一系统有可能测量相干振动 光谱的研究者。他说,实验观察到 的长寿命的振动运动,很可能是分 子周围形成间隙的结果,这实际上 使分子与溶剂脱钩。德国弗赖堡大 学的原子物理学家 Frank Stienkemeier 也这么认为。他指出,这项技 术有助于对生物分子或光捕获分子 的电子以及振动特性进行详细研 究,这些分子还远远谈不上在基础 意义上的根本理解。

更多内容详见: B. Thaler et al. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 124: 115301。



一个分子的舞蹈。研究人员通过将分子嵌入超流氦纳米液滴,来测量分子内的振动。分子周围形成一个间隙,使其与氦溶剂脱钩,否则可能会挤压该分子的自然运动。研究小组用25 fs(10⁻¹⁵ s)长的光脉冲探测了这个分子