

**Press release****Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie  
Alexandra Wettstein**

10/19/2023

<http://idw-online.de/en/news822577>Research results, Scientific Publications  
Physics / astronomy  
transregional, national

Max Born Institute

und Berlin e.

**Manipulation kollektiver Bewegungen von Elektronen und Molekülen in polarer flüssiger Lösung**

Forscher des Max-Born-Instituts haben nun die lineare und nichtlineare optische Polaronantwort mit Hilfe ultraschneller zweidimensionaler Spektroskopie im THz-Frequenzbereich untersucht. Wie sie in der aktuellen Ausgabe von *Physical Review Letters* berichten, werden durch Multiphoton-Ionisation von Isopropanol-Molekülen mit einem Femtosekunden-Impuls im nahen Infrarot freie Elektronen erzeugt und die daraus resultierenden Änderungen der dielektrischen Eigenschaften der Flüssigkeit im THz-Frequenzbereich gemessen bzw. manipuliert.

Ein Elektron und die umgebende Wolke aus Lösungsmitteldipolen koppeln durch elektrische Kräfte und können gemeinsame kollektive Bewegungen ausführen. Solche Vielteilchenanregungen im Terahertz- (THz) Frequenzbereich werden als Polaronen bezeichnet und waren bisher nahezu unerforscht. Neue Ergebnisse ultraschneller THz-Spektroskopie zeigen die Erzeugung und Manipulation kohärenter Polaron-Schwingungen in einem Zeitbereich von 100 ps und darüber hinaus. Dies ermöglicht die Kontrolle dynamischer elektrischer Eigenschaften polarer Flüssigkeiten.

Die Ionisierung einer polaren Flüssigkeit durch intensive Licht- oder Teilchenstrahlen erzeugt freie Elektronen, die auf einer Zeitskala von Pikosekunden ( $1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$ ) in einen lokalisierten Grundzustand relaxieren. Der Relaxationsprozess umfasst die Neuausrichtung der umgebenden dipolaren Lösungsmittelmoleküle und die Dissipation überschüssiger Energie. Auf diese Weise bildet sich eine orientierte Molekülwolke, die die Ladung des Elektrons abschirmt. Während umfangreiche experimentelle und theoretische Arbeiten ein Einzelteilchenbild des sog. solvatisierten Elektrons etabliert haben, ist das kollektive Polaronverhalten des Elektrons und der umgebenden Lösungsmittelwolke kaum verstanden.

Forscher des Max-Born-Instituts haben nun die lineare und nichtlineare optische Polaronantwort mit Hilfe ultraschneller zweidimensionaler Spektroskopie im THz-Frequenzbereich untersucht. Wie sie in der aktuellen Ausgabe von *Physical Review Letters* berichten, werden durch Multiphoton-Ionisation von Isopropanol-Molekülen mit einem Femtosekunden-Impuls im nahen Infrarot freie Elektronen erzeugt und die daraus resultierenden Änderungen der dielektrischen Eigenschaften der Flüssigkeit im THz-Frequenzbereich gemessen bzw. manipuliert. Die entsprechenden Sequenzen des Nahinfrarot- und eines oder zweier THz-Impulse sind in Abb. 1(a, b) dargestellt. Während der Elektronenrelaxation in den lokalisierten Grundzustand werden impulsartig kollektive Polaronenschwingungen ausgelöst. Die Oszillationen modulieren die dielektrische Funktion der Flüssigkeit und damit das elektrische Feld eines einzelnen THz-Impulses, der durch die angeregte Probe transmittiert wird [Abb. 1(a, c) und Abb. 2(a)]. Die Oszillationen halten über einen überraschend langen Zeitraum von über 100 ps an, ihre Frequenz von 3,9 THz wird durch die Elektronenkonzentration und die dielektrischen Eigenschaften der Flüssigkeit bestimmt.

Die Wechselwirkung mit einem zusätzlichen THz-Impuls stört diese oszillatorische Antwort [Abb. 1(b, d) und Abb. 2(b)], was zu einer deutlichen Änderung der Schwingungsphase und -frequenz während der Störung führt. Das elektrische Feld des störenden THz-Impulses induziert eine nichtresonante nichtlineare Polarisierung, die auf das Polaron einwirkt und die kollektiven Schwingungen von Elektron und Lösungsmittelwolke verändert.

Die Polaronenschwingungen sind mit Modulationen der Raumladung verbunden, die zu radialen, d. h. longitudinalen Größenschwankungen einer kugelförmigen Molekülwolke führen, die die Ladung des solvatisierten Elektrons abschirmt (siehe Film). Der Durchmesser der Molekülwolke liegt im Bereich einiger Nanometer. Die periodische Größenänderung wirkt sich auf die makroskopische Polarisierbarkeit des Polarons aus, die mit einem elektrischen THz-Feld erfasst werden kann. Der longitudinale Charakter der Oszillationen ist wesentlich für ihre schwache Kopplung an andere Anregungen der Flüssigkeit, was zu einer schwachen Dämpfung der kohärenten Bewegungen führt. Theoretische Berechnungen innerhalb eines Kontinuumsmodells, das auf dem lokalen Feldmodell von Clausius-Mossotti basiert, reproduzieren die beobachteten Phasenmodulationen.

Die Ergebnisse unterstreichen die Bedeutung von Vielteilchen-Wechselwirkungen in polaren molekularen Ensembles und eröffnen eine Perspektive für die transiente Steuerung und Manipulation dielektrischer Eigenschaften in polaren Flüssigkeiten durch externe THz-Anregung.

Bildunterschriften: exakte Darstellung/Abbildung auf unserer Webseite

Fig. 1. (a, b) Zwei- und Dreimpulssequenzen mit einem Nahinfrarot-Impuls, der Elektronen erzeugt (orange), einem THz-Sondenimpuls (blau) und einem THz-Störimpuls (grün). Die Impulse sind entlang der Echtzeitachse  $t$  dargestellt. Das Zeitintervall  $T$  ist die Wartezeit, das Zeitintervall die Verzögerungszeit. Bei der Zweimpulssequenz fehlt der störende THz-Impuls. (c) Konturdiagramm des Sondenimpulses  $E_{Pr}(t,t)$  als Funktion der Echtzeit  $t$  und der Verzögerungszeit. Die diagonale orangefarbene Linie zeigt die zeitliche Position des Nahinfrarot-Impulses an. (d) Konturdiagramm des elektrischen Feldes  $E_{both}(t,t)$ , das sowohl den störenden THz-Impuls (diagonale Spur) als auch den THz-Sondenimpuls (vertikale Spur) enthält.

Fig. 2. Polaron-Oszillationen von solvatisierten Elektronen im Alkohol Isopropanol. Das in der Probe erzeugte oszillierende elektrische THz-Feld ist als Funktion der Verzögerungszeit aufgetragen (vgl. Abb. 1). (a) Experimentell beobachtetes oszillierendes Feld  $-E_{osc}(t)$  ohne externe Störung (rote Transienten) und oszillierende Bewegungen  $E_{Pert}/Osc(t)$  mit externer Störung (blaue Transienten). Die dicken blauen Linien markieren den Zeitbereich, in dem die Polaronenschwingungen durch den störenden THz-Impuls modifiziert werden. Letzterer ist als grüne Linie dargestellt. (b) Mit einem theoretischen Modell berechnete Transienten.

Film: Links: Cartoon von fluktuierenden Alkoholmolekülen um ein solvatisiertes Elektron (grüne Kugel) herum. Das Gesamtsystem aus Abschirmwolke und Elektron verrichtet eine konzertierte Polaron-Schwingungsbewegung, d.h. eine Oszillationsbewegung der elektrischen Ladungsdichte (Wasserstoffatome: rote Kugeln, der negative Rest des Alkohols: blaue Kugeln). Rechts: Nach einer räumlichen Mittelung der mikroskopischen Ladungsdichte kann man mühelos die kollektive kugelförmige Ladungsdichte-Schwingung erkennen, die nahezu keine Dämpfung während der ersten 100 Pikosekunden nach der Anregung erfährt.

contact for scientific information:

Kontakt:

Dr. Michael Woerner

+49 30 6392 1470

michael.woerner(at)mbi-berlin.de

Matthias Runge

+49 30 6392 1471

matthias.runge(at)mbi-berlin.de

Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie im Forschungsverbund Berlin e.V.  
www.mbi-berlin.de

Original publication:  
Nonlinear Terahertz Polarizability of Electrons Solvated in a Polar Liquid

Matthias Runge, Klaus Reimann, Michael Woerner, and Thomas Elsaesser  
Phys. Rev. Lett. 131, 166902 – Published 18 October 2023  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.131.166902>  
<https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.131.166902>  
<https://mbi-berlin.de/research/highlights/details/manipulating-collective-motions-of-electrons-and-solvent-molecules-in-a-polar-liquid>

Attachment Cover Bild / Teaser <http://idw-online.de/en/attachment99623>

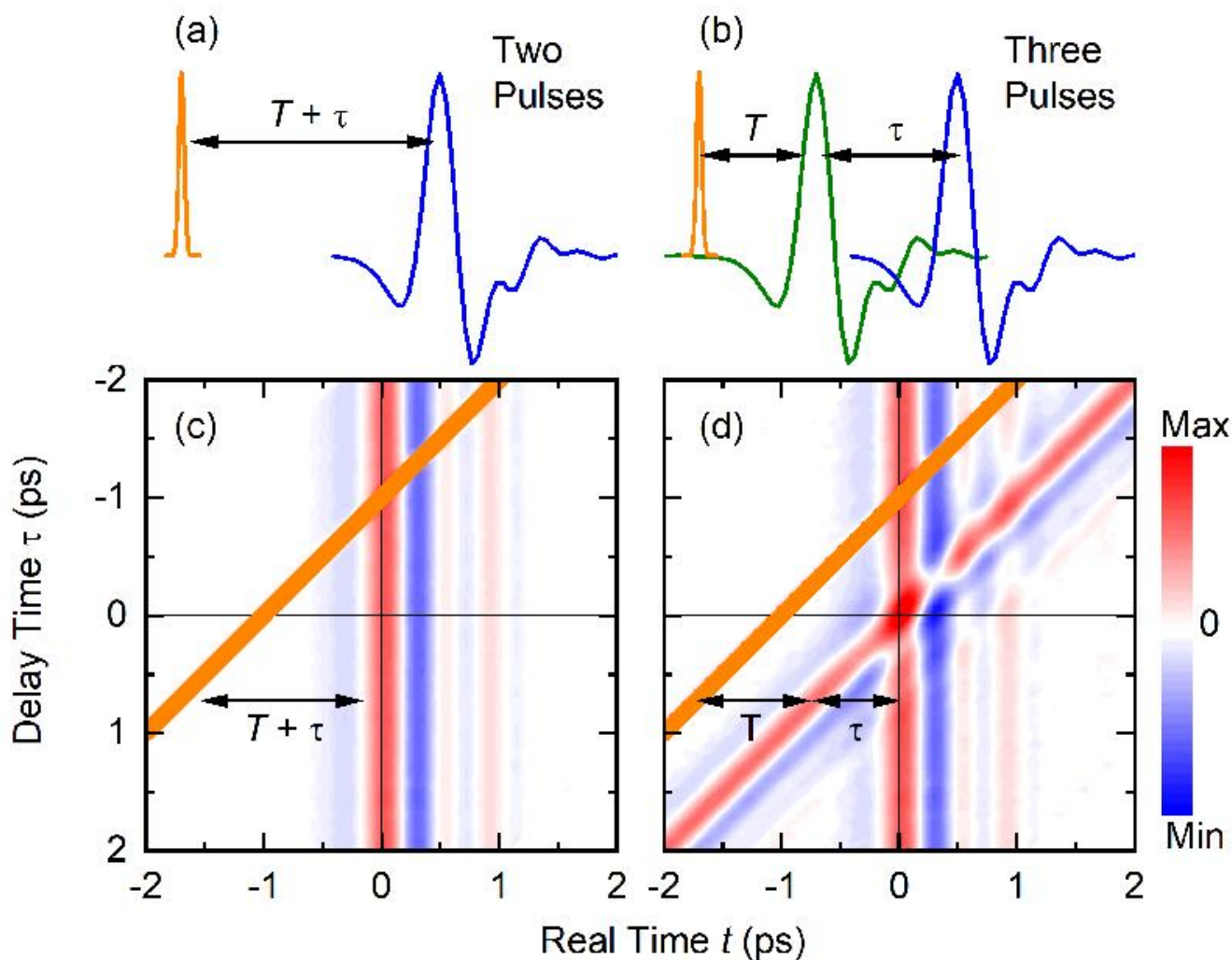
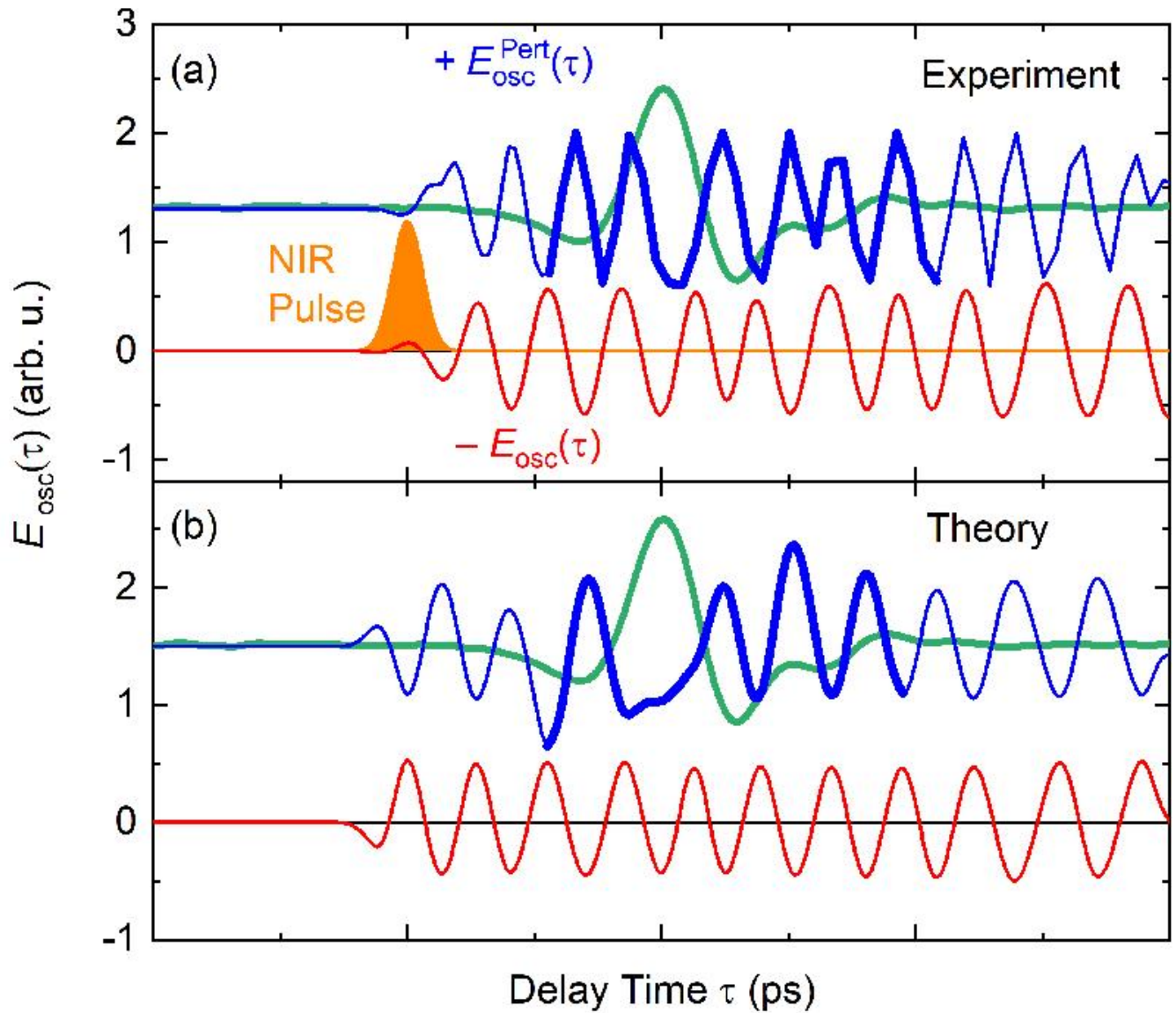


Fig. 1. (a, b) Zwei- und Dreimpulssequenzen mit einem Nahinfrarot-Impuls, der Elektronen erzeugt (orange), einem THz-Sondenimpuls (blau) und einem THz-Störimpuls (grün).  
MBI: Matthias Runge



Polaron-Oszillationen von solvatisierten Elektronen im Alkohol Isopropanol.  
MBI: Matthias Runge