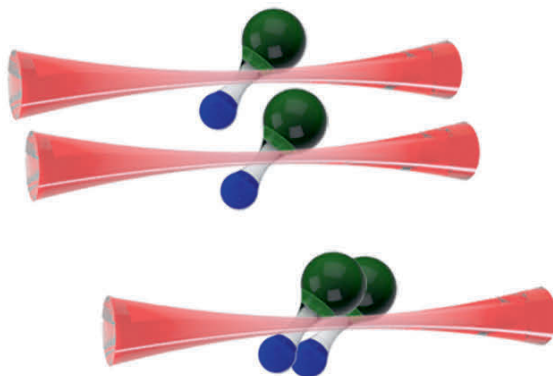
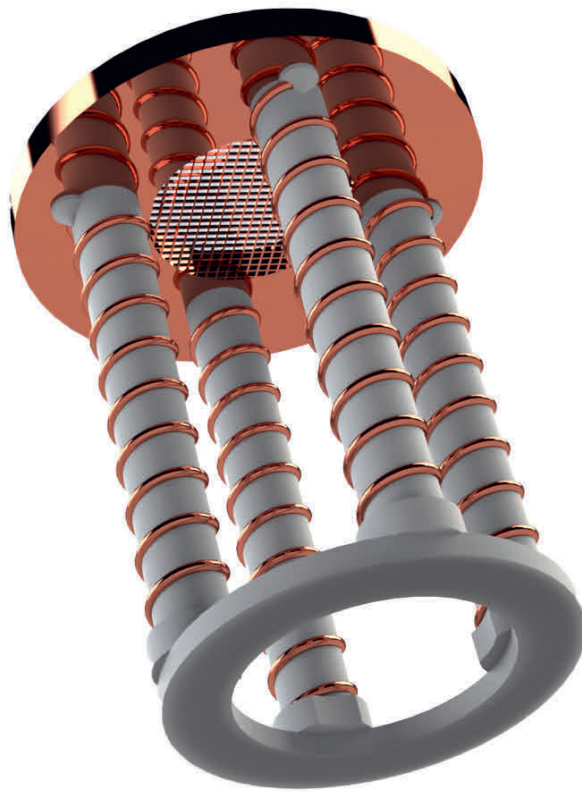


KOUDE MOLECULEN MET MICROGOLVEN BESCHERMD



Ultrakoude moleculen lijken zeer geschikt voor toepassingen in nieuwe quantumtechnologieën. Tot op heden gingen de moleculen echter ‘kapot’ zodra ze met elkaar in botsing kwamen, wat uiteindelijk ons vermogen de moleculen te koelen beperkt. Deze verliezen in botsingen kunnen voorkomen worden door met microgolven de interacties tussen de moleculen zo te sturen dat ze elkaar afstoten, en dus niet in botsingen dicht bij elkaar kunnen komen.

Ultrakoud

Onderzoek in de natuurkunde zoekt vaak de extremen op: ultrasnelle dynamica, nano-kleine structuren, superzware zwarte gaten. Nog zo’n extreem regime is ultrakoude materie. Hiermee worden atomen of moleculen bedoeld bij een temperatuur van slechts één microkelvin, oftewel slechts één miljoenste van een graad boven het absolute nulpunt. Dusdanig koude moleculen komen van nature nergens in het universum voor, maar in het lab kunnen deze lage temperaturen bereikt worden door moleculen – of de atomen waaruit ze bestaan – te koelen met lasers. Bij deze temperaturen zitten moleculen in hun allerlaagste elektronische, vibratie-, rotatie- en kernspintoeestand, de absolute grondtoestand. Hierdoor kunnen we de quantumtoestand van alle moleculen in een gas coherent manipuleren. Dit biedt mogelijkheden voor een aantal unieke toepassingen [1], zoals precisiemetingen [2] en het bestuderen van chemie in een volledig coherent en quantummechanisch regime [3] (zie figuur 1a).

Verder zijn ultrakoude moleculen veelbelovend voor toepassingen in opkomende quantumtechnologieën zoals quantumsimulatie en de realisatie van een quantumcomputer (zie figuur 1b,c). De voordelen van moleculen boven atomen voor deze toepassingen hebben te maken met de rijke interne structuur van moleculen en vooral met de rotatievrijheidsgraad. In quantumsimulatie biedt de rotatie van moleculen – en de koppeling tussen rotatie en spin – mogelijkheden om een breed scala aan spin-roostermodellen te simuleren. Voor de realisatie van een quantumcomputer hebben moleculen het voordeel dat zij een dipoolmoment hebben dat gekoppeld is aan de rotatie en niet alleen aan elektronische overgangen zoals bij atomen. Dit betekent dat wij gebruik kunnen maken van dipool-dipoolinteracties

zonder beperkt te worden door spontane emissie. Een tweede voordeel is dat de rotatie van moleculen gecontroleerd wordt door ver-ontwikkelde microgolftechnologie. Hiermee zouden bewerkingen in een moleculaire quantumcomputer snel en betrouwbaar uitgevoerd moeten kunnen worden, maar dit is nog niet experimenteel gerealiseerd. Wat wel al gedemonstreerd is zijn de lange coherentietijden van kernspintoestanden van ultrakoude moleculen [4].

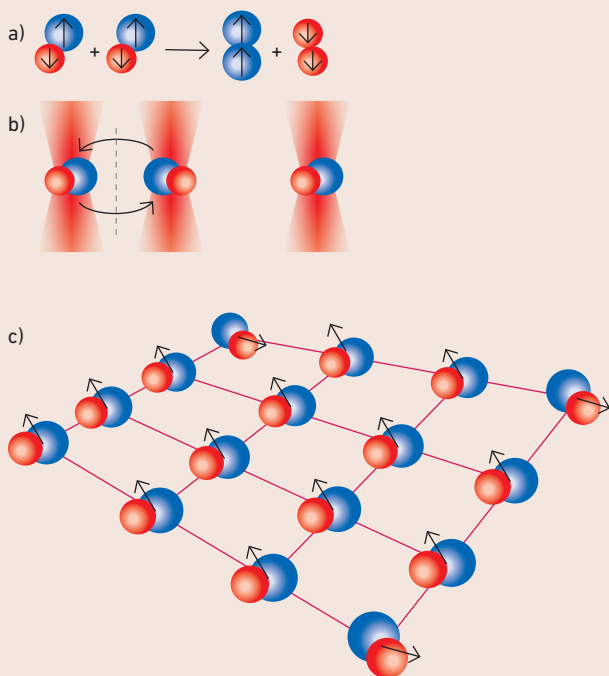
De uitdaging: koelen

Naast deze veelbelovende toepassingen en potentiële voordelen hebben ultrakoude moleculen ook specifieke uitdagingen. De rijke interne structuur maakt moleculen aan de ene kant zo aantrekkelijk voor toepassingen, maar aan de andere kant maakt het de benodigde experimenten ook complexer dan die met ultrakoude atomen. De meeste ultrakoude moleculen worden gemaakt door lasergekoelde atomen te associëren. De moleculen worden hiermee direct bij ultrakoude ($<1\ \mu\text{K}$) temperaturen gemaakt, maar wel bij een lagere dichtheid dan ultrakoude atomen. Om de hogere dichtheden die nodig zijn voor de beoogde toepassingen te realiseren zouden we dus eigenlijk verder willen kunnen koelen.

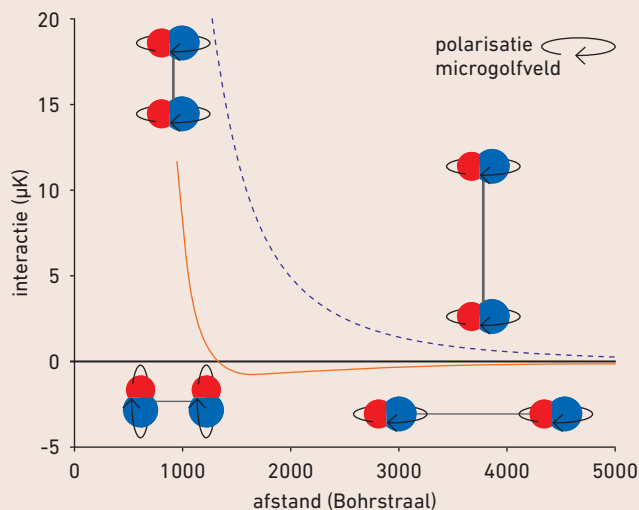
De ultieme koelingstechniek is verdamping (zie figuur 4a). Het idee hier is dat een thermisch gas een aantal moleculen kan bevatten die voldoende energie hebben om uit de val te ontsnappen, of verdampen. Met deze moleculen ontsnapt relatief veel energie. Als de overgebleven moleculen opnieuw thermaliseren zullen ze dus een lagere temperatuur krijgen. Met verdampingskoelen wordt de diepte van de val langzaam gereduceerd om verdamping te forceren, waardoor de overgebleven moleculen een steeds lagere temperatuur krijgen of een hogere fase-dichtheid. Dit proces is efficiënt als



Tijs Karman is universitair docent en onderzoeker theoretische chemie in Nijmegen. Tijs promoveerde cum laude aan de Radboud Universiteit. Daarna was hij postdoc in Durham (Engeland) en ITAMP fellow aan Harvard (Verenigde Staten). tijs.karman@ru.nl



Figuur 1. Een greep uit de toepassingen van ultrakoude moleculen. a) Chemische reacties kunnen gecontroleerd worden door de spintoestand van de reactanten. b) Moleculen in optische pincetten fungeren als qubits met lange coherentietijd en snelle operaties door middel van dipool-dipoolinteractie die met microgolven gestuurd worden. c) Ultrakoude moleculen in optische roosters kunnen worden gebruikt voor de quantumsimulatie van spin-roostermodellen door de koppeling tussen spin en rotatie.



Figuur 2. Schematische weergave van de interactie tussen moleculen in een microgolfveld. Afbeeldingen illustreren de richting van de botsing (grijze lijnen) ten opzichte van de microgolfpolarisatie (gebogen zwarte pijlen). Op grote afstanden volgen de moleculaire dipoolmomenten het roterende microgolf-elektrisch-veld, weergegeven door de gebogen zwarte pijlen. Dit geeft aantrekking wanneer de moleculen elkaar in het vlak van de microgolfpolarisatie benaderen (oranje lijn en onderste twee illustraties) en afstoting voor botsingen in de loodrechte richting (blauwe gestippelde lijn en bovenste twee illustraties). Op korte afstand volgen de moleculaire dipoolmomenten echter niet langer het microgolfveld, maar grijpen op elkaar aan. In de gekozen quantumtoestand polariseren de moleculaire dipoolmomenten zij aan zij, loodrecht op de intermoleculaire as. Dit geeft op kortere afstand afstoting ongeacht de richting waarin de moleculen botsen.

er snelle elastische botsingen zijn die thermisch evenwicht instellen en inelastische botsingen waarin moleculen verloren gaan langzaam zijn. Dit kan voor veel ultrakoude atomen gerealiseerd worden.

De boosdoener: botsingen

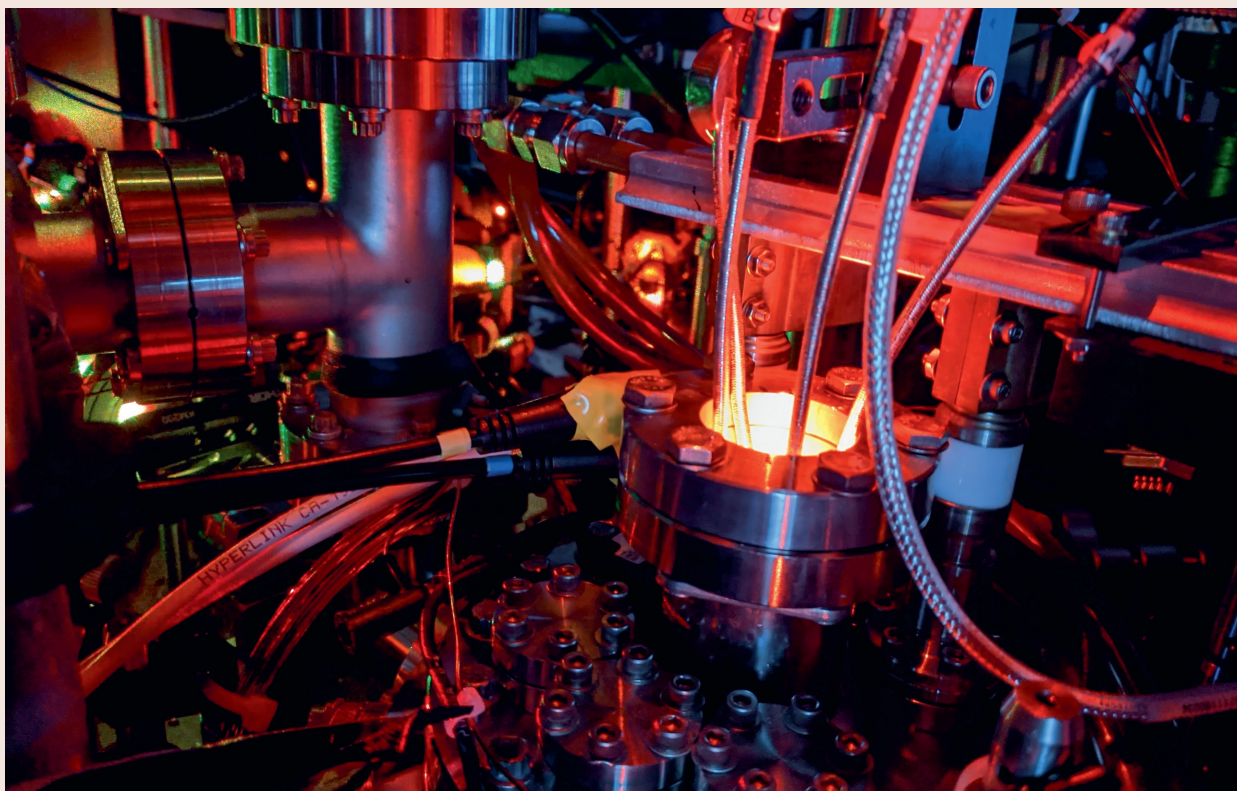
De botsingseigenschappen van ultrakoude moleculen zijn ongunstig voor verdampingskoeling; moleculen hebben snelle verliezen door botsingen en dit lijkt vrijwel universeel te zijn in de zin dat dit voor alle ultrakoude moleculen plaats lijkt te vinden. Ondanks uitgebreid onderzoek zijn de precieze mechanismen voor deze verliezen in botsingen tussen moleculen nog niet volledig begrepen. Voor sommige moleculen kunnen de verliezen verklaard worden door chemische reacties tussen de botsende moleculen, maar even snelle verliezen worden waargenomen

voor moleculen die niet-reactief zijn. Sommige van deze experimenten kunnen kwantitatief verklaard worden door bijvoorbeeld foto-excitatie van botsingscomplexen bestaande uit twee moleculen, maar andere experimentele waarnemingen blijven onverklaard. Al met al blijft het een onopgelost probleem, wat enorme impact heeft op onze mogelijkheden om moleculen effectief af te koelen. Hierdoor is verdampingskoeling van ultrakoude moleculen – een decennium na de eerste realisatie van een ultrakoud gas van polaire moleculen – een onbereikbaar doel gebleken.

Beschermen van moleculen

Een unieke eigenschap van ultrakoude moleculen is dat de interacties tussen moleculen met een draai aan een knop in het laboratorium gestuurd en afgestemd kunnen worden door middel

van externe velden. Als we interacties zo zouden kunnen sturen dat de moleculen elkaar op grote afstanden afstoten, dan zouden de moleculen niet bij elkaar in de buurt kunnen komen en worden allerlei verliesprocessen, zoals chemische reacties en excitatie van botsingscomplexen, onderdrukt. Het onderdrukken van deze verliesmechanismen – het beschermen van moleculen tegen botsingen – is het doel van het hier beschreven onderzoek. Eén manier om de interacties tussen moleculen te kunnen sturen is de moleculen bloot te stellen aan microgolven die bijna resonant zijn met een rotatieovergang van het molecuul. In een enkel molecuul heeft dit het effect dat het moleculaire dipoolmoment oscilleert met het oscillerend elektrisch veld van de microgolven. In het geval van circulair gepolariseerde microgolven zorgt dit voor een



Figuur 3. Opstelling van het CaF-experiment in John Doyle's laboratorium aan Harvard Universiteit. Twee CaF-moleculen worden in een optisch pincet geladen en ondergaan vervolgens botsingen met elkaar (zie openingspagina). De moleculen worden tegen deze botsingen beschermd door hun interacties te sturen met behulp van microgolven uit de weergegeven antennes. De vier onafhankelijke antennes worden gebruikt om circulaire microgolfpolarisatie te realiseren. Foto: Loïc Anderegg.

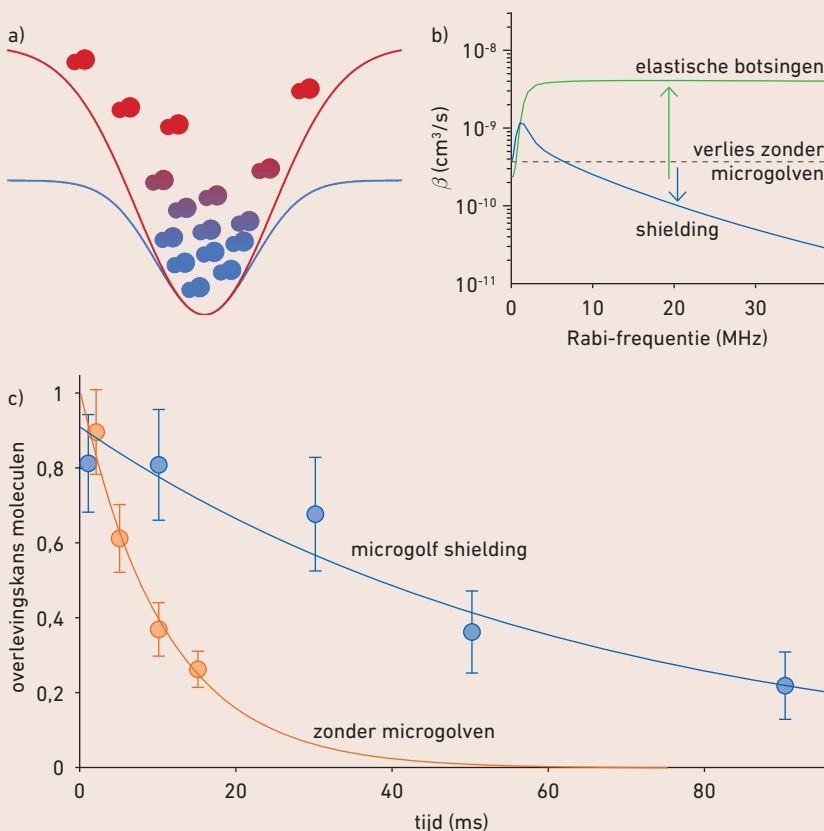
roterend dipoolmoment. De interactie tussen twee moleculen, dat wil zeggen tussen twee dipoolmomenten die synchroon hetzelfde oscillerend veld volgen is – als we over de snelle oscillatie kunnen middelen – precies de gebruikelijke dipool-dipoolinteractie tussen twee niet-oscillerende dipolen (zie figuur 2). Deze interactie heeft een lange dracht en is richtingsafhankelijk. Voor botsingen waarbij de moleculen elkaar naderen in het vlak van de circulair gepolariseerde microgolven is deze interactie aantrekkend, voor botsingen loodrecht op de polarisatie-richting is de interactie afstotend. De sterkte van deze dipool-dipoolinteractie wordt gecontroleerd door de precieze frequentie van de microgolven. Omdat de dipool-dipoolinteractie aantrekkend kan zijn, afhankelijk van de richting, lijkt de interactie die microgolven induceren op het eerste gezicht

niet bruikbaar voor het beschermen van moleculen. Dit is echter niet het volledige verhaal. Op het moment dat de moleculen dicht bij elkaar komen voelen ze namelijk niet alleen het microgolfveld, maar wordt ook het elektrische veld veroorzaakt door het andere molecuul steeds sterker. Als de moleculen dicht genoeg bij elkaar zijn zullen ze dus niet meer het microgolfveld volgen, maar juist op elkaar aangrijpen. Dit ‘elkaar vastgrijpen’ kan op verschillende manieren. Als de dipolen naar elkaar toewijzen, kop tot staart, leidt dit tot aantrekking tussen de moleculen. Als de moleculen juist zij aan zij staan leidt dit juist tot afstoting tussen de moleculen. Hoe de moleculen op elkaar aangrijpen, met aantrekkende of juist afstotende dipool-dipoolinteracties, hangt af van de quantumrotatietoestand waarin de moleculen worden gebracht. In dit

onderzoek [5] heb ik voorgesteld deze interacties te gebruiken om moleculen te beschermen tegen verliesprocessen in botsingscomplexen (zie figuur 2).

Experimentele realisatie

De bovenbeschreven microgolfschilding is in dit onderzoek voor het eerst gerealiseerd in het laboratorium van John Doyle aan Harvard [6] (zie figuur 3). Dit experiment gebruikt CaF-moleculen die worden afgekoeld tot 100 μK boven het absolute nulpunt met behulp van laserkoeling. Deze moleculen worden vervolgens in een optisch pincet geladen. Dit is een kleine optische val gemaakt door laserlicht te focuseren. De polariseerbare moleculen hebben een wisselwerking met dit licht wat resulteert in een potentiaalputje waarin een enkel molecuul wordt gevangen. Deze optische pincetten kunnen vervolgens rondbewogen



Figuur 4. Illustratie van verdampingskoeling. a) Door de diepte van een optische val te reduceren (van de rode naar de blauwe lijn) wordt de verdamping van de warmste moleculen (rood) geforceerd, waardoor de overgebleven moleculen een lagere temperatuur krijgen. Efficiënte verdampingskoeling heeft snelle thermalisatie door elastische botsingen nodig en weinig verlies. b) Botsingssnelheden als functie van de microgolfintensiteit waarbij de pijlen de experimentele intensiteit aangeven. Verlies in botsingen is onderdrukt met een factor zes en elastische botsingen met een orde van grootte versneld. c) Gemeten verlies door botsingen als functie van de tijd die moleculen samen in een optisch pincet doorbrengen, met en zonder microgolf shielding.

worden waardoor ze allerlei defectvrije roosters kunnen realiseren, een ideaal platform voor toepassingen zoals de realisatie van een quantumcomputer. Om botsingen te bestuderen worden twee van deze optische pincetten samengevoegd waardoor we exact twee moleculen bij elkaar brengen. Met microgolven worden vervolgens afstotende interacties tussen de moleculen bewerkstelligd waardoor de moleculen langer overleven. Verliezen door botsingen worden in dit onderzoek op deze manier met een factor zes teruggebracht [6] (zie figuur 4).

Verdampingskoeling

Door de interactie tussen moleculen te sturen met microgolven hebben we niet alleen verliezen onderdrukt, maar beïnvloeden we ook elastische botsingen waarbij de moleculen verstrooien zonder verloren te gaan of van toestand veranderen (zie figuur 4). Doordat de interacties al op grote afstand afstotend worden, hebben de

moleculen – puur geometrisch gezien – een grote botsingsdoorsnede. Bovendien voelen de moleculen elkaar zelfs daarbuiten door de interactie tussen hun oscillerende dipoolmomenten. Deze interactie heeft een lange dracht wat ook tot een grote botsingsdoorsnede leidt.

Elastische botsingen leiden tot overdracht van kinetische energie en daarmee thermalisatie. Snelle thermalisatie en langzame verliezen in botsingen, zoals hier gerealiseerd, zijn precies wat we nodig hebben voor efficiënte verdampingskoeling van moleculen, wat al ruim een decennium nagestreefd wordt. Mijn verstrooiingsberekeningen laten zien dat voor het huidige experiment de elastische botsingsdoorsnede met ruim een orde van grootte is verhoogd. Samen met de onderdrukking van verliezen is de verhouding van elastische tot inelastische botsingen ruim vijftig. We verwachten dat dit nog aanzienlijk kan worden verbeterd, maar zelfs de

huidige verhouding zou efficiënte verdampingskoeling van moleculen mogelijk moeten maken. Met efficiënte verdampingskoeling van moleculen komt een langgekoesterd doel binnen handbereik en komen de uiteindelijke toepassingen van ultrakoude moleculen in nieuwe quantumtechnologieën een stap dichterbij. Voor verdamping tot een quantumgas zijn wel meer dan twee moleculen nodig. Om verdampingskoeling experimenteel te demonstreren is dus vervolgonderzoek met bulkgasen nodig.

REFERENTIES

1. L. D. Carr, D. DeMille, R. V. Krems, en J. Ye, *New J. Phys.* **11**, 055049 (2009).
2. V. Andreev et al. (ACME Collaboration), *Nature* **562**, 355 (2018).
3. Y. Liu en K.-K. Ni, arXiv preprint arXiv: 2107.01088 (2021).
4. A. M. Kaufman en K.-K. Ni, *Nature Phys.* **1** (2021).
5. T. Karman en J. M. Hutson, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 163401 (2018).
6. L. Anderegg, S. Burchesky, Y. Bao, S. S. Yu, T. Karman, E. Chae, K.-K. Ni, W. Ketterle en J. M. Doyle, *Science* **373**, 779 (2021).