

# Verdampfung von mikrowellenabgeschirmten polaren Molekülen bis zur Quantenentartung

Andreas Schindewolf, <sup>1</sup>Roman<sup>2</sup> Bause, <sup>1</sup>Xing-Yan<sup>2</sup> Chen, <sup>1</sup> Marcel <sup>2</sup>Duda, <sup>1</sup>Tijs<sup>2</sup> Karman, <sup>3</sup>Immanuel Bloch, <sup>1</sup>und <sup>2,4</sup>Xin-Yu Luo \*

 <sup>1</sup> Max-Planck-Institut Quantenoptik, Garching85748, Deutschland
 <sup>2</sup> Munich Center for Quantum Science and Technology, M0799, Deutschland
 <sup>3</sup> Institut f
ür Molek
üle und Materialien, Radboud Universit
ät, Heijendaalseweg AJ135,6525 Nijmegen, Niederlande
 <sup>4</sup> Fakult "at Physik, Ludwig-Maximilians-Universit" at, M0799, Deutschland (Stand: Januar 202214,)

Ultrakalte polare Moleküle bieten starke elektrische Dipolmomente und eine reichhaltige innere Struktur, was sie zu idealen Bausteinen macht, um exotische Quantenmaterie zu erforschen [1-8], neuartige Quanteninformationsverfahren zu implementieren [9-11] oder grundlegende Symmetrien der Natur zu testen [12]. Um ihr volles Potenzial auszuschöpfen, müssen wechselwirkende molekulare Gase tief in den quantenentarteten Bereich abgekühlt werden. Die Komplexität der Moleküle, die ihre Kollisionen selbst für nicht reaktive Moleküle [13-18] im Nahbereich instabil macht, hat jedoch bisher die Abkühlung bis zur Quantenentartung in drei Dimensionen verhindert. Hier demonstrieren wir die Verdunstungskühlung eines dreidimensionalen Gases aus fermionischen Natrium-Kalium-Molekülen bis weit unter die Fermi-Temperatur mit Hilfe einer Mikrowellenabschirmung. Die Moleküle werden durch eine abstoßende Barriere, die durch die Kopplung von Rotationszuständen mit einer blau abgestimmten, zirkular polarisierten Mikrowelle erzeugt wird, davor geschützt, in den Nahbereich zu gelangen. Die Mikrowellenabschirmung induziert starke, abstimmbare dipolare Wechselwirkungen zwischen den Molekülen, was zu hohen elastischen Kollisionsraten führt, die die inelastischen um mindestens den Faktor 460 übersteigen können. Dieses große Verhältnis von elastischen zu unelastischen Stößen ermöglicht es uns, das molekulare Gas auf Nanokelvin21 abzukühlen, was einer Temperatur von

o. 36-mal die Fermi-Temperatur. Solch beispiellos kalte und dichte Proben polarer Moleküle eröffnen den Weg zur Erforschung neuartiger Vielteilchenphänomene, wie z. B. der lange gesuchten topologischen p-Wellen-Superfluidzustände ultrakalter Materie.

Das Gebiet der ultrakalten polaren Moleküle befindet sich derzeit in einer aufregenden Phase, in der es sein volles Potenzial in den Quantenwissenschaften entfalten kann [19, 20]. Die abstimmbaren anisotropen Langstreckenwechselwirkungen und die reichhaltigen internen Freiheitsgrade polarer Moleküle eröffnen die Möglichkeit, exotische Quantenphasen zu untersuchen, die von p-Wellen-Superfluiden [1-3], Supersoliden [4, 5]

und Wigner-Kristallen [6, 7] bis hin zu neuartigen Spinsystemen und erweiterten Hubbard-Modellen [8] reichen und auch für Quantenberechnungen genutzt werden können [9-11]. Viele dieser Vorschläge erfordern ein tief entartetes Quantengas aus Molekülen bei zehn Nanokelvin mit starken dipolaren Wechselwirkungen in drei Dimensionen (3D).

Während nicht wechselwirkende polare Moleküle teilweise eine niedrige Entropie aus entarteten Atommischungen einbringen können [21-23], ist die aktive Kühlung in den quantenentarteten Bereich eine Herausforderung geblieben. Das Haupthindernis für eine effiziente Verdunstungskühlung ultrakalter Moleküle ist ihr schneller Kollisionsverlust. Insbesondere wenn die Moleküle durch ein elektrisches Feld in 3D-Fallen polarisiert werden, neigen sie dazu, in attraktiven Kopf-Schwanz-Kollisionen zu kollabieren [24]. Es hat sich herausgestellt, dass selbst Moleküle, die nominell gegen chemische Reaktionen beständig sind [25], inelastische Kollisionen erleiden, wenn sie einen kurzen Abstand erreichen. Die genaue Natur dieser Verlustprozesse ist noch nicht vollständig geklärt und wird weiter untersucht [13-18].

Kollisionsverluste bei Kurzstreckenbegegnungen zwischen Molekülen können durch die Erzeugung von Abstoßungsreaktionen mit Hilfe externer Felder unterdrückt werden [26-30]. Kürzlich wurde ein Mo-

\* E-Mail: xinyu.luo@mpq.mpg.de

lekulares <sup>4087</sup>KRb-Gas wurde stabilisiert und unter die Fermi-Temperatur abgekühlt, indem ein starkes elektrisches Gleichfeld angelegt und die Bewegung der Moleküle auf zwei Dimensionen (2D) beschränkt wurde, wodurch attraktive Kollisionen entlang der dritten Dimension effektiv verhindert wurden [31]. Für Moleküle in 3D wurde ein geringerer Kollisionsverlust nachgewiesen, indem ein spezifisches elektrisches die Gleichfeld [32] verwendet wurde. um Rotationszustände der kollidierenden Moleküle miteinander in Einklang zu bringen. Versuche, ein entartetes Quantengas polarer Moleküle durch Kollisionsabkühlung zu erzeugen, blieben jedoch bisher aufgrund eines geringen elastischen zu unelastischen Kollisionsverhältnisses sowie einer relativ geringen anfänglichen Phasenraumdichte in 3D erfolglos [32, 33]. Abstoßende Barrieren zwischen Molekülen können auch durch die Anwendung blau abgestimmter, zirkular polarisierter Mikrowellen erzeugt werden [34], was kürzlich erfolgreich zur Verringerung der Kollisionsverluste zwischen zwei CaF-Molekülen in einer optischen Pinzette eingesetzt wurde [35].

In dieser Arbeit induzieren wir schnelle elastische dipolare Kollisionen in einem Quantengas aus fermionischen <sup>23</sup>NaK-Molekülen<sup>40</sup>, die durch ein zirkular polarisiertes Mikrowellenfeld angezogen werden, während wir unelastische Kollisionen in allen drei Dimensionen stark unterdrücken. Die elastische Kollisionsrate steigt dramatisch mit dem effektiven der Dipolmoment des Laborrahmens, das mit Mikrowellenleistung und der Verstimmung eingestellt werden kann. Unter geeigneten Bedingungen kann die elastische Kollisionsrate etwa 500-mal größer sein als Kollisionsrate und sogar die inelastische die Fallenfrequenzen überschreiten, so dass das molekulare Gas in den hydrodynamischen Bereich eintritt. Wir verdampfen eine 3D-nahe entartete Probe von Molekülen bis hinunter zu 21(5) nK, was 36(9)% des Fermi



ntermolekularer Abstand R	Intermolekularer Abstand R
(a <sub>0</sub> )	( <i>a</i> <sub>0</sub> )

ABB. 1. **Mikrowellenabschirmung.** a, Skizze des Experimentaler Aufbau. Die Moleküle werden von bis zu drei optischen Dipolfallen mit den angegebenen Wellenlängen eingeschlossen. Eine Wendelantenne strahlt das elektrische Drehfeld *E*aus. Ein magnetisches Offset-Gleichfeld *B*wird durch ein Spulenpaar (nicht dargestellt) erzeugt. **b**,

Vorbereitung der Moleküle im angezogenen Zustand  $\not\!\!\!\!/$ . Die Mikrowellenverstimmung  $\Delta$ ist typischerweise vergleichbar mit der Rabi

Frequenz  $\Omega$ . c, Wechselwirkungspotentiale für  $\Delta \approx 2\pi 8$ MHz und  $\Omega \Rightarrow 2\pi 11$  MHz. Die durchgezogenen und gestrichelten Linien zeigen die potenzielle Energie von Molekülen, die entlang ( $\theta = 0$ ) bzw. senkrecht ( $\theta = 90^\circ$ ) zur Ausbreitungsrichtung der Mikrowellen kollidieren. Die Zentrifugalbarriere ist zur Verdeutlichung weggelassen. tion. Hier ist  $a_0$  der Bohr-Radius. **d**, Nahaufnahme des abgeschirmten Kollisionskanals ++ . Im mittleren Bereich richten sich die Moleküle in Bezug auf die intermolekulare Achse aus.

Temperatur  $T_{\rm F}$ , tief im Bereich der Quantenentartung. Bei solch niedrigen Temperaturen wird die inelastische Kollisionsrate zwischen Molekülen vernachlässigbar, was zu einer langen Lebensdauer der entarteten Molekülprobe von bis zu 0,6 s führt, die hauptsächlich durch den restlichen Ein-Körper-Verlust begrenzt wird, der durch das technische Rauschen der Mikrowelle verursacht wird.

## Mikrowellenabschirmung und dipolare elastische Stöße

Um die Abschirmung in 3D zu realisieren, können die beiden niedrigsten Rotationszustände der Moleküle über eine blau abgestimmte zirkular polarisierte eine Wendelantenne, wie in Abb. 1a dargestellt. Die Antenne

sendet eine hauptsächlich  $\sigma$ -polarisierte<sup>-</sup> Mikrowelle aus, die den Rotationsgrundzustand J = 0,  $m_J = 0$ ,  $\delta N_{\rm p}$ = in0 den angeregten Zustand 1,1, , koppelt, 1 wie in Abb. 1b gezeigt. Hier,)

*J* ist die Rotationsquantenzahl,  $m_J$  ist ihre Projektion. auf der Magnetfeldachse, und  $\delta N_P$  ist die Änderung der die Anzahl der Photonen im Mikrowellenfeld. Die Fre-Die Frequenz der Mikrowelle ist näherungsweise durch die Rotationskonstante  $B_{rot} = h \times 2$  gegeben.822 GHz [36] und die de-

Abstimmung von der Resonanz  $\Delta$  als  $2B/h_{rot} + \Delta/(2\pi)$ . Kopplung

die Rotationszustände erzeugen die gemischten verkleideten Zustände +

und |-Rotationsangeregte Zustände mit  $m_J = 0$ , 1, an die die Mikrowelle nicht koppelt, bleiben als Spektatorzustände) 0. Bei Resonanz, d. h. bei  $\Delta = 0$ , definiert die Alepplungsstärke M $\Omega$  h11 MHz die Aufspaltung von + und

 |-). Wir wählen in der Regel eine blaue Verstimmung ∆ in der Größenordnung

von  $\Omega$ , um die Moleküle im +-Zustahd zu präparieren (Einzelheiten zum Mikrowellenübergang, zur Kopplungsstärke und zur Präparation des "dressedstate" siehe ergänzende Informationen).

mation).

Moleküle, die im oberen angezogenen Zustand über ihre induzierten rotierenden Dipole werden durch den kolli- sionalen |Kanal ++ beschrieben, wie in Abb. 1c und 1d gezeigt. Bei großer Entfernung ist ihre zeitlich gemittelte Wechselwirkungsenergie gegeben durch [37]

$$V_{\rm dd} = - \underline{d_0^2} \underline{1 - \cos^2 \theta}, \qquad (1)$$

Mikrowelle gekoppelt werden [34]. Der gemischte Zustand zeichnet sich durch ein induziertes rotierendes Dipolmoment aus, das dem starken elektrischen Wechselfeld der Mikrowelle folgt. Moleküle, die sich in diesem Zustand befinden, zeigen eine effektive dipolare Wechselwirkung in großer Entfernung. Wenn sie sich einander nähern, beginnt die direkte Kopplung zwischen den induzierten Dipolen zu dominieren und bildet eine abstoßende Barriere, die die Moleküle wirksam vor schädlichen inelastischen Kollisionen im Nahbereich abschirmt.

In unserem Experiment wird das Mikrowellenfeld erzeugt durch

wobei  $d_02$ . 7 Debye das intrinsische Dipolmoment von NaK, R der intermolekulare Abstand und  $\theta$  der Winkel zwischen der Drehachse des induzierten Dipols und der intermolekularen Achse ist. Die Moleküle erhalten somit ein effektives Dipolmoment  $d_{\text{eff}} = d/_0 12(1 + (\Delta/\Omega))^2$ . beachte, Vorzeichen Man dass das der Wechselwirkungsenergie Vergleich im zur Wechselwirkung zwischen zwei regulären Dipolen mit dem Dipolmoment  $d_{\text{eff}}$  invertiert ist.

Im mittleren Bereich ist die Dipol-Dipol-Wechselwirkung

dominiert, so dass sich die Moleküle in Bezug auf die intermolekulare Achse und nicht entlang des rotierenden elektrischen Feldes orientieren [38]. Die Neuausrichtung durch die Beiträge der Spektatorzustände wird ermöglicht.0 Da die Moleküle im oberen angezogenen Zustand präpariert werden, koppeln sie an diesem Punkt den abstoßenden Zweig der an Dipol-Dipol-Wechselwirkung, der die Moleküle unabhängig von ihrem anfänglichen Annäherungswinkel davon abhält, eine kurze Distanz zu erreichen [39]. Tatsächlich wird der verbleibende Zweikörperverlust durch nichtadiabatische Übergänge in tiefer liegende, feldangepasste Zustände wie +0 dominiert, was mit einer Energiefreisetzung in der Größenordnung von MΩ einhergeht und ausreicht, um die Moleküle aus der optischen Dipolfalle zu vertreiben.

Die Leistung der Verdunstungskühlung wird letztlich durch das Verhältnis y der elastischen zu den inelastischen Zweikörper-Kollisionsraten begrenzt. Wir charakterisieren den inelastischen Kollisionsratenkoeffizienten Bin durch Messung des Moleküle Zweikörperzerfalls der in einem thermischen Gas bei Temperaturen T um 800 nK. Die Moleküle werden zunächst aus ultrakalten Atomen mittels einer magnetischen Feshbach-Resonanz und anschließendem stimulierten adiabatischen Raman-Durchgang (STI-

1)

|)

 $\checkmark$ 



(μ 0.2 10 K) 0.0 10<sup>0</sup> 2040 0.00.10.2 0 0.3 Verstimmung ¢/(π2) (MHz) Haltezeit (s)

BILD: Elastische2. und inelastische Kollisionen. a. Raten-Koeffizienten für elastische (orange) und inelastische (blau) Streuereignisse. Die durchgezogenen und gestrichelten Linien zeigen gekoppelte Kanalberechnungen für eine thermische Probe mit T = nK800 und eine de-

erzeugen jeweils eine Probe mit T = 30 nK = 0,4 TF. Die Datenpunkte zeigen die Messergebnisse für T = 800 nK. Der schattierte Bereich zeigt die Grenze für Messungen der elastischen Kollisionsrate, die durch das hydrodynamische Regime vorgegeben ist.

Bei Resonanz beträgt die Rabi-Frequenz≈ & π2 11 MHz. Die dreieckigen Markierungen an der Seite zeigen die berechneten inelastischen Ratenkoeffizienten in Abwesenheit eines Mikrowellenfeldes an. Die Fehlerbalken sind die Standardabweichung aus der Anpassung an die Differentialgleichurgen. b, Beispiele fiir Querthermalisationsmessungen bei  $\Delta = 2\pi$  30 MHz (hell) und  $\Delta = 2\pi$  80 MHz (dunkel). Im letzteren Fall ist  $\beta_{el}$ innerhalb der Fehlerbalken mit Null konsistent. Die Fehlerbalken sind der Standardfehler des Mittelwertes von 4 Wiederholungen. Die Linien sind Anpassungen eines gekoppelten Differentialgleichungssystems, das die Kollisionsraten modelliert (ergänzende Informationen). c, Das Verhältnis y zwischen elastischen und unelastischen Kollisionsraten auf der Grundlage der in a dargestellten Messungen und Berechnungen.

RAP) bis zu ihrem absoluten Grundzustand [40] (weitere Einzelheiten zu den Versuchsbedingungen und der Vorbereitung der Molekülproben finden Sie in den 4

parametrische Erwärmung der molekularen Probe entlang der vertikalen Richtung und Messung der querdimensionalen Thermalisierung der effektiven Temperaturen  $T_{\rm h}$  und  $T_{\rm v}$ , wie in Abb. 2b gezeigt (siehe auch ergänzende Informationen).  $T_{\rm h}$  und  $T_{\rm v}$  sind entlang der horizontalen (x und y) bzw. der vertikalen (z) Richtung definiert. Die Ratenkoeffizienten  $\beta_{el}$  und βin werden aus der zeitlichen Entwicklung der gemessenen Molekülzahl N und der Temperaturen  $T_{\rm h}$ und  $T_{\rm v}$  extrahiert, indem ein Satz von gekoppelten Differentialgleichungen angepasst wird, die die Molekülverluste und die kreuzdimensionale Re-Thermalisierung modellieren (siehe ergänzende Informationen). Die Ergebnisse der Messungen werden mit gekoppelten Kanalberechnungen für eine thermische Probe bei T = nK800 und für eine entartete Probe bei

 $30 \text{ nK} = 0.4 T_{\text{F}}$ , wie in Abb. gezeigt. 2. Die Berechnungen

eine Restelliptizität der Mikrowellenpolarität berücksichtigen

isierung (ergänzende Informationen).

In Abwesenheit des Mikrowellenfeldes finden wir  $\beta$  $10^{-11}$  cm/s<sup>3</sup> für T = nK800, was in guter  $_{in}=7.7(5)$ Übereinstimmung mit dem berechneten Wert von 4.  $9 \text{ cm/s} 10^{-113} \text{ ist.}$ 

Die Abschirmung ist am effizientesten bei  $\Delta = \pi 28^{\times}$  $10^{-12} \text{ cm/s}^3$ MHz, wo  $\beta_{in}$  auf6 . 2(4) abfallt, was einer Unterdrückung um eine Größenordnung von

die Zwei-Körper-Verluste, wie in Abb. 2a dargestellt. ergänzenden Informationen). Bei den meisten Messungen beträgt die anfängliche durchschnittliche Dichte  $n_0$  etwa 3. 0 cm10<sup>11\_3</sup>. Der Zweikörperverlust ist rela-

für heiße und dichte Moleküle sehr hoch, was uns hilft, die von Ein-Körper-Verlusten zu unterscheiden, die durch Phasenrauschen der Mikrowelle verursacht werden (ergänzende Informationen). Wir bestimmen den elastischen Kollisionskoeffizienten  $\beta_{el}$ durch Anwendung

Für spinpolarisierte fermionische polare Moleküle wird die elas- tische Kollisionsrate durch dipolare Streuung dominiert. Der entsprechende Streuquerschnitt skaliert in etwa mit  $d^4$ 

(Ergänzende Informationen) und kann daher über mehrere Größenordnungen mit der Verstimmung der Mikrowelle abgestimmt werden. Im Regime schwacher Wechselwirkungen, d. h. bei großen Verstimmungen, ist die Re-Thermalisierungsrate proportional zu  $\beta_{el}$ . Für  $\Delta \pi 2$  10 MHz werden die elastischen Stöße jedoch so häufig, dass die mittlere freie Weglänge der Moleküle kleiner ist als die Größe der Molekülwolke, obwohl wir hier absichtlich die Ausgangsdichte auf  $n_0 = 0$ . 710<sup>11</sup>

 $cm^{-3}$ .

In diesem hydrodynamischen Regime ist die Rethermalisierungsrate ist auf etwa  $\omega^{-}/(\pi^2)$  Hz120 begrenzt, wobei  $\omega^{-}$  die ge-

ometrische mittlere Fallenfrequenz ist [41]. Folglich sättigen die gemessenen Werte von  $\beta_{el}$  in der Nähe der hydrodynamischen sogenannten Grenze  $N\omega/col(2\pi n_0)$ , wobei  $N_{col}$  die durchschnittliche Anzahl der für die Re-Thermalisierung in unserem System erforderlichen Kollisionen ist2 (ergänzende Informationen). Dadurch wird auch der maximal gemessene Wert von  $\gamma$  auf 460(110) begrenzt, wie in Abb. 2c sehen ist. Außerhalb des zu wir hydrodynamischen Bereichs finden eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen den experimentell bestimmten und den berechneten Werten von  $\beta_{el}$  und  $\gamma_{f}$  für T = 800 nK. Unsere Berechnungen zeigen, dass  $\gamma$  für ideale Werte von  $\Delta$ über 1000 liegen kann. In Zukunft sollte es möglich sein, die Abschirmung zu verbessern und  $\gamma$  durch 5000Optimierung der Reinheit der Mikrowellenpolarisation zu erreichen (ergänzende Informationen).

eff

х

≤

х

≈

≈

≈

# Verdunstungskälte zu einem tief entarteten Fermi-Gas aus Molekülen

Mit  $\gamma$   $\checkmark$  500 bei der optimalen Abschirmungsabstimmung  $\Delta = \pi^2$  MHz8 ist die Verdunstungskühlung unserer Molekülprobe einfach zu bewerkstelligen. Wir beginnen mit einer niedrigentropischen, aber nicht-thermalisierten Probe von etwa 2 5Molekülen,10<sup>4</sup> die aus einem dichteangepassten entarteten Atomgemisch erzeugt wurden.

tung [23]. Die Leistung der beiden horizontal verlaufenden Laserstrahlen, die die Moleküle gegen die Schwerkraft halten

und damit die effektive Fallentiefe  $U_{\text{trap}}$  definiert, nimmt im Laufe von ms150 exponentiell ab. Die heißeste

Moleküle können dann aus der Dipolfalle in die Richtung b tion der Schwerkraft. Die verbleibenden Moleküle

rethermalisieren durch elastische dipolare Stöße, wodurch sich T und  $T/T_{\rm F}$  effektiv verringern.

Während der Verdampfung wird die berechnete elastische N Kollisionsrate

liegt bei etwa 500 Hz, viel höher als die Trap-Frequenz.

cies. Daher sättigt die Rethermalisierungsrate auf etwa  $\omega^{-}/(2\pi)$  Hz60.  $\approx$ Um eine hohe Rethermalisierungsrate aufrechtzuerhalten und gleichzeitig die Fallentiefe zu verringern, verstärken wir

die horizontale Begrenzung, indem die Leistung eines zusätzlichen Strahls, der sich in vertikaler Richtung ausbreitet, exponentiell ansteigt.

Wir charakterisieren die Verdampfung, indem wir die endgültige Fallentiefe variieren. Abbildung 3a zeigt Tund  $T/T_{\rm F}$  in Abhängigkeit von der Anzahl der verbleibenden Moleküle N nach 150 ms Zwangsverdampfung. Die Werte von T und  $T/T_{\rm F}$  werden aus einer polylogarithmischen Anpassung an die Impulsverteilung der Probe abgeleitet, die nach ms 10Zeit von

Flug (ergänzende Informationen). Wenn die Fallentiefe nicht reduziert wird, thermisieren die

wechselwirkenden Moleküle, sind aber nicht

gezwungen, zu verdampfen. Anfänglich sind die Moleküle

weisen aufgrund des Photonenrückstoßes der STIRAP-Pulse eine Schwappbewegung in der Falle auf. Diese Bewegung wird gedämpft, während sich die Moleküle thermisch aufheizen. wodurch sich die Phasenraumdichte der Probe effektiv verringert. Nach 150 ms Haltezeit in der anfänglichen Fallentiefe erhalten wir 1. 43(5) Moleküle10<sup>4</sup> bei einer Temperatur von 176(5) nK mit  $T/T \neq =1$ . 00(3) (Abb. 3d). Wenn wir stattdessen die Verdampfungsrate auf 3. 6(3) Moleküle10<sup>3</sup> senken, indem wir die endgültige Fallentiefe auf etwa  $k_{\rm B}$  250 nK reduzieren, wobei  $k_{\rm B}$  die Boltzmann-Konstante ist, erreichen wir eine Temperatur von 38(2) nK mit  $T/T_{\rm F} = 0.47(2)$  (Abb. 3e). Allerdings ist die Verdampfung an diesem Punkt noch nicht beendet. Wir können die Molekülprobe für eine zusätzliche Haltezeit  $t_h$  in der Falle halten, um die einfache Verdampfung zu nutzen, wie in Abb. 3b und 3c gezeigt. Die einfache Verdampfung dauert etwa 100 ms. Danach wird der Verlust der Moleküle vom Ein-Körper-Verlust dominiert, der durch das Phasenrauschen der Mikrowelle verursacht wird, was zu einer 1/e-Lebensdauer von 590(100) ms führt (ergänzende



Informationen). Bei  $t_{\rm h}$ = 150 ms messen wir eine Rekordtieftemperatur von 21(5) nK mit  $T/T_{\rm F}$  = 0. 36(9) (Abb. 3f).

Wir haben überprüft, dass die aus der Fermi-Dirac-Anpassung erhaltenen Temperaturen mit denen übereinstimmen, die aus einer Gauß-Anpassung des thermischen Flügels abgeleitet wurden, bei der ein möglicher Einfluss der dipolaren Wechselwirkungen relativ gering ist (siehe ergänzende Informationen). Interessanterweise ist die optische Dichte in einer kleinen Region des Wolkenzentrums höher als ABB. 3. **Verdampfung. a**, T/TF und T (Inset) gegen die verbleibende Anzahl von Molekülen N nach 150 ms Verdampfungskühlung für verschiedene endgültige Fallentiefen. **b**, Einfache Verdampfung während der Haltezeit  $t_h$  nach 150 ms erzwungener Verdampfung. Die gestrichelte Linie zeigt den Ein-Körper-Zerfall an, und die Einblendung skizziert die Entwicklung der effektiven Fallentiefe *Utrap*. **c**,

 $T/T_{\rm F}$  und T (Inset) während der Haltezeit  $t_{\rm h}.$  Die Fehlerbalken

von N in  ${\bf a}$  und  ${\bf b}$  sind der Standardfehler des Mittelwerts von 5-20

Wiederholungen. Die Fehlerbalken von T in **a** und **c** sind die Standardabweichung von der Anpassung an die gemittelten Bilder. **d-f**, Az-imutal gemittelte optische Dichte der Proben nach 10 ms Flugzeit. Die Proben wurden unter den Verdampfungsbedingungen I (**d**), II (**e**) und III (**f**) hergestellt. Die Bilder der Proben sind Durchschnittswerte aus (5**d**), (20**e**) oder Einzelbildern6 (**f**). Die schwarzen Linien zeigen polylogarithmische Anpassungsfunktionen, während die orangefarbenen Linien Anpassungen eines Gauß an die thermischen Flügel der Probe darstellen.

der Fermi-Dirac-Anpassung in der kältesten Probe III. Aufgrund des geringen Signal-Rausch-Verhältnisses können wir jedoch nicht abschließend feststellen, ob dies auf Abbildungsrauschen oder mögliche dipolare Wechselwirkungseffekte zurückzuführen ist. In Zukunft wird es interessant sein, den zugrunde liegenden Mechanismus mit verbesserter Verdampfung und Detektion zu untersuchen.

#### Diskussion

Der höchste von uns gemessene Wert von  $\gamma$  von etwa 500 ist aufgrund der Grenzen unserer Messmethode im hydrodynamischen Bereich eine unverbindliche Schätzung. Unsere numerischen Modelle, die gut mit den Daten außerhalb des hydrodynamischen Bereichs übereinstimmen, sagen ein Verhältnis von  $\gamma$  1000 voraus. Dies ist fast um einen Faktor höher100 als das Verhältnis, das in früheren Experimenten in 3D [32] erzielt wurde, und fast eine Größenordnung höher im Vergleich zu Experimenten in 2D [31]. Solche optimalen Kollisionsparameter erleichtern die effiziente Verdampfung von NaK-Molekülen bis unter T0.4<sub>F</sub> im Vergleich zu früheren Verdampfungsergebnissen, die T1.4<sub>F</sub> in 3D [32] und T 0.6<sub>F</sub>in 2D [31] erreichen.

Bei den kältesten Proben, die in unserem Experiment realisiert wurden, entspricht die dipolare Wechselwirkung im System etwa 5 % der Fermi-Energie. Dies ist dreimal höher als der Wert, der in entarteten Fermi-Gasen magnetischer Atome erreicht wurde [42]. In naher Zukunft werden faszinierende dipolare Vielteilchenphänomene wie Modifikationen von kollektiven Anregungsmoden [43], Verzerrungen [42] oder der Kollaps

[44] des Fermi-Meeres sollte in geeigneten Fallengeometrien und bei verbessertem Nachweis der Wolkenausdehnung beobachtet werden können.

Die hier erreichte reduzierte Temperatur  $T/T_{\rm F}$  liegt nur etwa um den Faktor vier höher als die vorhergesagte kritische Temperatur der topologischen p-Wellen-Superfluidität mit starken dipolaren Wechselwirkungen [1-3]. Die Leistung der Verdampfung kann durch folgende Maßnahmen weiter verbessert werden: Erstens kann die anfängliche Phasenraumdichte durch Optimierung des STIRAP-Trans- fer erhöht Zweitens sollten ein geringeres werden. Phasenrauschen und eine bessere Polarisationsreinheit des Mikrowellenfeldes zu einer Verringerung der Einund Zweikörperverluste während der Verdampfung führen. Schließlich müssen neue Strategien der Verdampfung im hydrodynamischen Bereich erforscht werden, den Thermalisierungsprozess um zu beschleunigen [41]. Mit diesen Verbesserungen sollte es möglich sein, Temperaturen unterhalb von T0.1<sub>F</sub> zu erreichen, bei denen viele faszinierende Quantenphasen zu erwarten sind [1-8]. Insbesondere fermionische

polare Moleküle können sich zusammenschließen und ein Superfluid mit anisotropen Ordnungsparametern und sogar ein Bose-Einstein-Kondensat aus Tetrameren bilden [1, 3]. Bisher wurden solche Szenarien nur selten theoretisch untersucht, weil man glaubte, dass polare Moleküle unter Bedingungen, bei denen sowohl anziehende als auch abstoßende Wechselwirkungen eine wichtige Rolle spielen, nicht hinreichend stabil sein könnten.

#### Schlussfolgerung

Zusammenfassend haben wir einen allgemeinen und effizienten Ansatz zur Verdampfungskühlung ultrakalter polarer Moleküle bis zur tiefen Quantenentartung in 3D demonstriert, indem wir die Moleküle mit einer blau polarisierten abgestimmten, zirkular Mikrowelle bekleiden und so rekordverdächtig niedrige Temperaturen abstimmbaren zusammen mit starken dipolaren Wechselwirkungen erreichen. Die Einfachheit des technischen Aufbaus macht unsere Methode direkt anwendbar für eine Vielzahl von Experimenten mit ultrakalten Molekülen. Unsere Ergebnisse weisen auf eine aufregende Zukunft von langlebigen de- generierten polaren Molekülen für die Untersuchung neuartiger Quanten-Vielteilchenphasen mit weitreichenden anisotropen Wechselwirkungen für andere und Anwendungen in den Quantenwissenschaften hin.

#### Danksagung

Wir danken Y. Bao, L. Anderegg, A. Pelster und A. Bala'z sowie T. Shi für anregende Diskussionen, B. Braumandl für die Simulation des Mikrowellenfeldes, F. Deppe für das Ausleihen des extrem rauscharmen Mikrowellensignalgenerators und T. Hilker für das kritische Lesen des Manuskripts. Wir bedanken uns für die Unterstützung durch die Max-Planck-Gesellschaft, die Europäische Union (PASQuanS Grant No. 817482) und die Deutsche Forschungsgemeinschaft im Rahmen der Exzellenzstrategie EXC-2111 390814868und unter der Grant No. FOR 2247. A.S. bedankt sich für die Förderung durch das Max-Planck-Forschungszentrum für Quantenoptik in Harvard.

- Baranov, M. A., Mar'enko, M. S., Rychkov, V. S. & Shlyapnikov, G. V. Superfluid pairing in a polarized dipo- lar fermi gas. *Phys. Rev. A* 66, (0136062002).
- [2] Cooper, N. R. & Shlyapnikov, G. V. Stable topological superfluid phase of ultracold polar fermionic molecules. *Phys. Rev. Lett.* **103**, (1553022009).
- [3] Shi, T., Zhang, J.-N., Sun, C.-P. & Yi, S. Singlet and triplet Bardeen-Cooper-Schrieffer pairs in a gas of twospecies fermionic polar molecules. *Phys. Rev. A* 82, (0336232010).
- [4] Wu, Z., Block, J. K. & Bruun, G. M. Liquid crystal phases of two-dimensional dipolar gases and Berezinskii-Kosterlitz-Thouless melting. *Sci. Rep.* 6, (190382016).
- [5] Schmidt, M., Lassabli`ere, L., Qu'emener, G. & Lan-gen,

T. Self-bound dipolar droplets and supersolids in molecular bose-einstein condensates. Preprint unter https://arXiv.org/abs/2111.06187 (2021).

- [6] Bruun, G. M. & Taylor, E. Quantum phases of a twodimensional dipolar fermi gas. *Phys. Rev. Lett.* 101, (2453012008).
- [7] Matveeva, N. & Giorgini, S. Liquid and crystal phases of dipolar fermions in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.* 109, (2004012012).
  - [8] Baranov, M. A., Dalmonte, M., Pupillo, G. & Zoller, P. Theorie der kondensierten Materie von dipolaren Quantengasen.

Chem. Rev. 112, 5012-5061 (2012).

- [9] DeMille, D. Quantum computation with trapped polar molecules. *Phys. Rev. Lett.* **88**, (0679012002).
- [10] Yelin, S. F., Kirby, K. & C<sup>ote</sup>, R. Schemes for robust quantum computation with polar molecules. *Phys. Rev. A* 74, (0503012006).
- [11] Ni, K.-K., Rosenband, T. & Grimes, D. D. Dipolar exchange quantum logic gate with polar molecules. *Chem. Sci.*9, 6830-6838 (2018).

- [12] Safronova, M. S. *et al.* Search for new physics with atoms and molecules. *Rev. Mod. Phys.* **90**, (0250082018).
- [13] Mayle, M., Quemener, G., Ruzic, B. P. & Bohn, J. L. Scattering of ultracold molecules in the highly resonant regime. *Phys. Rev. A* 87, (0127092013).
- [14] Christianen, A., Zwierlein, M. W., Groenenboom, G. C. & Karman, T. Photoinduced two-body loss of ultracold molecules. *Phys. Rev. Lett.* **123**, (1234022019).
- [15] Gregory, P. D., Blackmore, J. A., Bromley, S. L. & Cornish, S. L. Loss of ultracold<sup>87</sup> RbCs<sup>133</sup> molecules via optical excitation of long-lived two-body collision complexes. *Phys. Rev. Lett.* **124**, (1634022020).
- [16] Liu, Y. et al. Photoexcitation of long-lived transient intermediates in ultracold reactions. Nat. Phys. 16, 1132-(11362020).
- [17] Bause, R. *et al.* Collisions of ultracold molecules in bright and dark optical dipole traps . *Phys. Rev. Research*3, (0330132021).
- [18] Gersema, P. et al. Probing photoinduced two-body loss of ultracold nonreactive bosonic <sup>23</sup>NaRb<sup>87</sup> and<sup>23</sup> NaK<sup>39</sup> molecules. Phys. Rev. Lett. **127**, (1634012021).
- [19] Carr, L. D., DeMille, D., Krems, R. V. & Ye, J. Cold and ultracold molecules: science, technology and applications. *New J. Phys.* 11, (0550492009).
- [20] Bohn, J. L., Rey, A. M. & Ye, J. Cold molecules: Progress in quantum engineering of chemistry and quantum matter. *Science***357**, 1002-1010 (2017).
- [21] Moses, S. A. *et al.* Creation of a low-entropy quantum gas of polar molecules in an optical gattice. *Science***350**, 659-662 (2015).
- [22] De Marco, L. et al. A degenerate Fermi gas of polar molecules. Science363, 853-856 (2019).
- [23] Duda, M. et al. Transition from a polaronic condensate to a degenerate Fermi gas of heteronuclear molecules. Preprint unter https://arXiv.org/abs/2111.06187 (2021).
- [24] Ni, K.-K. *et al.* Dipolar collisions of polar molecules in the quantum regime. *Nature***464** , 1324-1328 (2010).
- [25] Zuchowski, P. S. & Hutson, J. M. Reactions of ultracold alkali-metal dimers. *Phys. Rev. A* 81, (0607032010).
- [26] Avdeenkov, A. V., Kajita, M. & Bohn, J. L. Suppression of inelastic collisions of polar  $\Sigma$  state molecules in an electrostatic field. *Phys. Rev. A* **73**, (0227072006).
- [27] Gorshkov, A. V. *et al.* Suppression of inelastic collisions between polar molecules with a repulsive shield. *Phys. Rev. Lett.* **101**, (0732012008).
- [28] Micheli, A. *et al.* Universal rates for reactive ultracold polar molecules in reduced dimensions. *Phys. Rev. Lett.* **105**, (0732022010).
- [29] Gonzalez-Martie, M. L., Bohn, J. L. & Quemener, G. Adimensional theory of shielding in ultracold collisions of dipolar rotors. *Phys. Rev. A* **96**, (0327182017).
- [30] Matsuda, K. *et al.* Resonante kollisionale Abschirmung reaktiver Moleküle durch elektrische Felder. *Science*370, 1324- (13272020).
- [31] Valtolina, G. et al. Dipolare Verdampfung reaktiver Moleküle bis unter die Fermi-Temperatur. Nature 588, 239-243 (2020).
- [32] Li, J.-R. *et al.* Tuning of dipolar interactions and evaporative cooling in a three-dimensional molecular quantum gas. *Nat. Phys.***17**, 1144-1148 (2021).
- [33] Son, H., Park, J. J., Ketterle, W. & Jamison, A. O. Collisional cooling of ultracold molecules. *Nature*580, 197-(2002020).

- [34] Karman, T. & Hutson, J. M. Microwave shielding of ultracold polar molecules. *Phys. Rev. Lett.* **121**, 163401 (2018).
- [35] Anderegg, L. *et al.* Beobachtung der Mikrowellenabschirmung von ultrakalten Molekülen. *Science***373**, 779-782 (2021).
- [36] Will, S. A., Park, J. W., Yan, Z. Z., Loh, H. & Zwierlein, M. W. Kohärente Mikrowellenkontrolle von ultrakalten <sup>23</sup>NaK-Molekülen<sup>40</sup>. *Phys. Rev. Lett.* 116, (2253062016).
- [37] Karman, T., Yan, Z. Z. & Zwierlein, M. Resonant and first-order dipolar interactions between ultracold molecules in static and microwave electric fields. Preprint unter https://arxiv.org/abs/2106.01610 (2021).
- [38] Yan, Z. Z. *et al.* Resonant dipolar collisions of ultracold molecules induced by microwave dressing. *Phys. Rev. Lett.* **125**, (0634012020).
- [39] Karman, T. & Hutson, J. M. Microwave shielding of ultracold polar molecules with imperfectly circular polarization. *Phys. Rev. A* **100**, (0527042019).
- [40] Bause, R. *et al.* Efficient conversion of closed-channeldominated Feshbach molecules of<sup>23</sup> NaK<sup>40</sup> to their absolute ground state. *Phys. Rev. A* **104**, (0433212021).
- [41] Ma, Z.-Y., Thomas, A. M., Foot, C. J. & Cornish, S. L. The evaporative cooling of a gas of caesium atoms in the hydrodynamic regime. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 36, 3533-3540 (2003).
- [42] Aikawa, K. et al. Observation of Fermi surface deformation in a dipolar quantum gas. Science345, 1484-1487 (2014).
- [43] W¨achtler, F., Lima, A. R. P. & Pelster, A. Low-lying excitation modes of trapped dipolar Fermi gases: From the collisionless to the hydrodynamic regime. *Phys. Rev.* A 96, (0436082017).
- [44] Veljič, V., Pelster, A. & Bala<sup>\*</sup>z, A. Stability of quantum degenerate Fermi gases of tilted polar molecules. *Phys. Rev. Research* 1, (0120092019).
- [45] Wang, R. R. W. & Bohn, J. L. Anisotropic thermalization of dilute dipolar gases. *Phys. Rev. A* 103, 063320 (2021).
- [46] Blackmore, J. A. et al. in Vorbereitung.
- [47] Karman, T. Microwave shielding with far-from-circular polarization. *Phys. Rev. A* 101, (0427022020).
- [48] Idziaszek, Z. & Julienne, P. S. Universal rate constants for reactive collisions of ultracold molecules. *Phys. Rev. Lett.* **104**, (1132022010).
- [49] Bohn, J. L., Cavagnero, M. & Ticknor, C. Quasiuniverselle dipolare Streuung in kalten und ultrakalten Gasen. New J. Phys. 11, (0550392009).

#### Ergänzende Informationen

### Vorbereitung der Probe

Zur Herstellung unserer Molekülproben bereiten wir zunächst eine dichteangepasste doppelt entartete Mischung aus <sup>23</sup>Na- und <sup>40</sup>K-Atomen vor. Anschließend werden die Atome mit Hilfe einer magnetischen Fesh-Bach-Resonanz an schwach gebundene Moleküle gebunden. Schließlich werden die Moleküle über STIRAP in ihren absoluten Grundzustand überführt. Einzelheiten über den Präparationsprozess sind in Refs. [23, 40]. Zu Beginn der im Haupttext beschriebenen Messungen werden die Moleküle mit dem in Abb. 1a gezeigten 1064nm- und dem 1550-nm-Strahl bei einem magnetischen

35G.

Für die Messungen der Kollisionsraten werden die mi-Crowave-Übergangsstärke und zur Charakterisierung der ein-

Um den Körperverlust zu verringern, arbeiten wir mit thermischen Molekülen und reduzieren manchmal die Anzahl der Moleküle, um Wechselwirkungen zu unterdrücken. Für die Kollisionsratenmessungen sind die Fallenfrequenzen ( $\omega_x$ ,  $\omega_y$ ,  $\omega_z$ ) =  $\pi 2 \times (67, 99, 244)$  Hz.

Für die Verdampfung, andererseits, beginnen wir mit fast degen-Moleküle bei  $\pi 2 \times (45.67, 157)$  Hz und enden z. B. bei,

bei  $\pi 2(52,72, 157)$  Hz im Fall I oder bei  $\pi 2(42,56, 99)$  Hz in den Fällen II und III (siehe Abb. 3).

Um die kreuzdimensionale Thermalisierung zu messen, heizen wir die schwach gebundenen Moleküle entlang der vertikalen Diagonale, nachdem wir sie von den ungebundenen Atomen getrennt haben und bevor STIRAP angewendet wird. Zu diesem Zweck verwenden wir eine parametrische Heizung, indem wir die Intensität des 1064-nm-Strahls mit der doppelten vertikalen Fallenfrequenz modulieren.

#### **Erzeugung von Mikrowellenfeldern**

ist wichtig, dass Es das Phasenrauschen der Mikrowellenquelle keine Übergänge zwischen den angezogenen Zuständen hervorruft. Wir erzeugen die Mikrowellen mit einem Vektor-Signalgenerator (Keysight E8267D). Die Mikrowelle durchläuft ein spannungsgesteuertes Dämpfungsglied (General Microwave D1954), bevor sie mit einem 10-W-Leistungsverstärker (KUHNE electronic KU PA -510590 A)10 verstärkt wird. Bei 10 MHz Trägeroffset messen wir eine Phasenrauschdichte von 150 dBc/Hz vom Signalgenerator und keine signifikante Verstärkung durch den Verstärker. Die Mikrowelle wird von einer 5-Gang-Spiralantenne (Sonderanfertigung von Cause- mann Flugmodellbau) abgestrahlt, deren oberes Ende etwa 2. 2 cm von der Molekülprobe entfernt ist. Mit dem spannungsgesteuerten Dämpfungsglied

Mit dem spannungsgesteuerten Dämpfungsglied dick Molektikering dangetzogenen Zustand durch Rampen-Die Leistungsabschwächung wird innerhalb von 100 µs über einen Bereich von dB65 linear angepasst.

#### **Bildgebung und Thermometrie**

Um die Moleküle abzubilden, versetzen wir sie durch Absenken der Mikrowellenleistung wieder in den

durch Zurückfahren des Magnetfelds über die Feshbach-Resonanz. Das Magnetfeld muss die Feshbach-Resonanz langsam überqueren, um die Freisetzungsenergie zu minimieren. Am Ende werden die dissoziierten Moleküle durch Absorptionsabbildung abgebildet. Wir schätzen, dass die abgeleitete Temperatur der Molekülprobe aufgrund der verbleibenden Freisetzungsenergie um etwa 7 nK überschätzt werden könnte. Beachten Sie, dass die im Haupttext angegebenen Werte von T und  $T/T_{\rm F}$  die Freisetzungsenergie nicht berücksichtigen.

Um die Temperatur der Molekülprobe zu ermitteln, passen wir die Absorptionsbilder mit der Fermi-Dirac-Verteilung an

$$n_{\text{FD}}(x, z) = n$$
  $-\zeta \exp -\sigma_{\overline{2^2 x}} \sigma_{2^2} - \overline{z^2}$ , (S1)

wobei  $n_{\text{FD},0}$  die Spitzendichte, Li<sub>2</sub>(x) die Dilogarithmic-Funktion,  $\zeta$  die Fugazität und  $\sigma_{i=x,z}$  die Wolkenbreiten in x- und z-Richtung sind. Bei einer Wolkenbreite  $\sigma_i$  lässt sich die Temperatur  $T_i$  wie folgt berechnen

$$\sigma_i = \frac{\sqrt{\frac{1+\omega t^{22}}{1+\omega t^{22}}} \frac{kT_{\text{B}i}}{m}}{\omega_i m}, \qquad (S2)$$

wobei  $\omega_i$  die Einfangfrequenz in der *i-ten* Richtung ist.  $t_{\text{TOF}}$  ist die Flugzeit und m ist die Masse der Moleküle. Die Fugazität kann mit dem Verhältnis zwischen der Temperatur T und der Fermi-Temperatur  $T_{\text{F}}$  mit der folgenden Beziehung in Verbindung gebracht werden

$$\left(\frac{T}{T_{\rm F}}\right)^{3} = -\frac{1}{6\,{\rm Li}_{3}(-\zeta)},$$
 (S3)

wobei Li<sub>3</sub>(*x*) die trilogarithmische Funktion ist.  $T_{\rm F}=(6N)^{1/3}$ M $\omega^{-/k_{\rm B}}$  ist durch die Molekülzahl *N* und die geometrische mittlere Fallenfrequenz  $\omega^{-} = (\omega\omega\omega_{xyz})^{1/3}$ gegeben. Durch Umschreiben von  $\zeta$  und Festlegen von  $T_{\rm F}$  bleiben nur noch die Anpassungsparameter  $n_{\rm FD,0}$ ,  $T_x$ und  $T_z$  übrig. Wir beachten, dass die Temperatur in Richtung des Abbildungsstrahls  $T_y$  als gleich  $T_x = T$ angenommen wird<sub>h</sub>.

Darüber hinaus bestimmen wir unabhängig voneinander die Temper-

der molekularen Proben aus den Flugzeitbildern durch Anpassung der thermischen Flügel der Wolke an eine Gaußsche Verteilung

$$n_{\text{th}}(x, z) = n$$
  $\sigma_{2^2}^{xz} \sigma_{2^2}^2$  , (S4

ungebundenen absoluten Grundzustand. Anschließend werden die Dipolfallen abgeschaltet und STIRAP-Rücklaufpulse angelegt, um die Moleküle wieder in den schwach gebundenen Zustand zu bringen. Nach einer Flugzeit von typischerweise ms10 werden die Atome dissoziiert wobei  $n_{\text{th},0}$  die Spitzendichte ist. Ähnlich wie in Ref. [31] passen wir zunächst eine Gauß-Verteilung an die gesamte Wolke an. Dann beschränken wir die Gauß-Verteilung auf die thermischen Flügel der Wolke, indem wir einen Bereich von1 .  $\sigma$ 5 um das Zentrum des Bildes ausschließen. Wir stellen fest, dass durch den Ausschluss von 1.  $\sigma$ 5 das Verhältnis von Signal zu Rauschen eine Konvergenz der Anpassung für alle Datensätze in Abb. 3a ermöglicht.

Die Temperaturen, die sich aus der Anpassung der Fermi-Dirac-Verteilung und der Anpassung der Gauß-Verteilung an die thermischen Flügel ergeben, werden in Abb. S1 verglichen.



Abb. S1. Thermometrie. Temperaturen, extrahiert aus einer Fermi-Dirac-Verteilung (dunkel) und einer Gauß-Verteilung zu den thermischen Flügeln (hell) gegen die Anzahl der Moleküle N nach 150 ms Verdunstungskühlung für verschiedene endgültige Fallentiefen. Die Temperaturen sind aus gemittelten Bildern extrahiert. Die Fehlerbalken von N sind der Standardfehler des Mittelwerts von 5-20 Wiederholungen. Die Fehlerbalken in T sind die Standardabweichung von der Anpassung.

#### Modell für elastische und unelastische Stöße

Die elastischen und inelastischen Stoßratenkoeffizienten ß elund  $\beta_{in}$  werden experimentell aus der zeitlichen Entwicklung der gemessenen Molekülzahl N, der mittleren Temperatur  $(2T h + T_v)/3$  und der Differenztemperatur  $T_v$   $T_h$  durch numerische Lösung der Differentialgleichungen bestimmt [24, 32].

$$\underline{dN} = (-K \frac{2_{\mathrm{Th}} + Tv}{n} - \Gamma N, \qquad (S5)$$

Γth  $dT_{\rm h}$ 1

$$dt = KTTn_{12^{vh}} + \frac{1}{3}(T_{v} - T_{h}), \quad (S6)$$

$$\frac{dT_{v}}{dt} = \frac{K!}{12} (2T (T)Tn - 2 \frac{\Gamma th}{hvv} - T), \quad (S7)$$

mit der mittleren Dichte

$$n = \frac{N}{8\sqrt{\pi k_{\rm B}^{33} T_{\rm h}^{2} T_{\rm v}/m\omega^{-3}}}.$$
 (S8)

Κ Dabei der temperaturunabhängige ist Zweikörperverlustkoeffizient, der der Einfachheit halber über alle Kollisionsanomalien gemittelt wird, und

$$n\sigma v_{ ext{el}}$$

$$\Gamma_{\rm th} = \frac{Nc}{ol} \tag{S9}$$



Abb. S2. Ein- und Zweikörperverlust. a, Molekülverlust mit

(dunkel) und ohne (hell) Mikrowelle bei hohen Anfangsdichten. Die graue gestrichelte Linie zeigt den Ein-Körper-Beitrag. Die Linien sind Anpassungen an das Differentialgleichungsmodell. b, Verlust

bei niedrigen Anfangsdichten, aus denen die Ein-Körper-Verlustrate  $\Gamma_1$  bestimmt wird. Die Linien sind exponentielle Anpassungsfunktionen. In beiden Teilbildern sind die Mikrowellenfeld und hellblauen Daten ohne die dunkelblauen Daten mit einem Mikrowellenfeld aufgenommen worden

bei  $\Delta = 2\pi$  **%** MHz. Die Fehlerbalken sind der Standardfehler des Mittelwerts von zwei (a) bzw. drei (b) Wiederholungen.

wobei  $\varphi$  die Neigung der Dipole in der Falle ist, die in unserem Fall der Neigung des Mikrowellenvektors in Bezug auf das magnetische Gleichfeld entspricht. Nach unserer Charakterisierung der Mikrowellenpolarisation können wir

nehmen &ie z (29°) = 2.05.

Die Anti-Verdunstungsterme, d. h. die ersten Terme in Die Gleichungen S6 und S7 gehen von einer linearen Skalierung der Zweikörper-Verlustrate mit der Temperatur aus. Unsere Berechnungen sagen voraus dass diese Annahme für kleine Abstimmungen nicht zutrifft

 $(\Delta < \pi 22\otimes$  MHz), wie in Abb. dargestellt. 2. Unsere Ergebnisse ändern sich jedoch nicht wesentlich, wenn wir stattdessen as-

in diesem Bereich keine Temperaturabhängigkeit aufweisen.

Nach der Bestimmung von  $\sigma_{el}$  und *K* werden schließlich die elastischen und inelastischen Kollisionskoeffizienten

und

$$\beta el = \sigma_{el} v \tag{S12}$$

(S12)

$$\beta_{in} = K(2T_{h} + T_{v})/$$
 3(S13

sind in Abb. unter der Annahme2 einer festen Temperatur T = aufgetragen.

 $T_{\rm h} = T_{\rm v}$ .

Beispielhafte Daten der Verlustmessungen, die zur Bestimmung von  $\beta_{in}$  durchgeführt wurden, sind in Abb. S2a dargestellt. Bei hoher Densiist der Zwei-Körper-Verlust der dominierende Beitrag, während

bei niedrigen Dichten die exponentielle Form der Verlustkurve

ist die Re-Thermalisierungsrate mit dem elastischen Streuquerschnitt  $\sigma_{\rm el}$  und der thermisch gemittelten Stoßhäufigkeit

$$v = k \frac{\sqrt{16_{B}(2T_{h} + T_{v})/(3\pi m)}}{(S10)}$$

Die durchschnittliche Anzahl der Kollisionen pro Re-Thermalisierung wurde aus [45] übernommen. [45] als

$$N = N\overline{\varphi}) = \frac{112}{(S11)}$$

colz

 $45 + \cos 4(2\varphi) - 17 \cos(4\varphi)$ 

zeigt, dass Ein-Körper-Effekte gegenüber Kollisionen Um die Anzahl der freien überwiegen. Anpassungsparameter zu begrenzen, bestimmen wir  $\Gamma_1$ = 1,7(4) Hz in unabhängigen Messungen bei niedrigen Dichten, wie in Abb. S2b gezeigt. Um Störeffekte durch Kollisionen zu vermeiden, reduzieren wir die Anzahl der Ausgangsmoleküle bei diesen Messungen auf etwa 2000. Unter diesen Bedingungen beträgt die 1/e-Lebensdauer ohne Abschirmung 570(100) ms. Wird die Abschirmung eingeschaltet, ergibt sich eine ähnliche1 /e-Lebensdauer

von etwa 590(100) ms. Die Lebensdauer verringert sich um eine Fac-

tor zwei, wenn eine Mikrowellenquelle mit einem dB 3höheren

Phasenrauschdichte verwendet wird. Diese Beobachtung stimmt mit der Annahme überein, dass die spektrale Rauxchleistungsdichte um  $2\pi$  10 MHz versetzt zum Träger ein begrenzender Faktor für die Ein-Körper-Lebensdauer des verkleideten Zustands ist, selbst bei einem Pegel von - 150dBc/Hz [35].

### Mikrowellenübergänge

In Abbildung 1 des Haupttextes sind nur die wichtigsten Teile der Energieniveaustruktur dargestellt. Die vollständige Hyperfeinstruktur des angeregten Rotationszustandes J = 1 ist in Abb. S3a dargestellt. Im Gegensatz zu CaF [35] hat NaK keine Feinstruktur im elektronischen Grundzustand. Folglich sind die rotationsangeregten Zustände, die an den absoluten Grundzustand koppeln können und die  $(m_{i,\text{Na}}, m_{i,\text{K}}) = (3/2, -4)$  Charakter haben, nur über

einige hundert Kilohertz, viel weniger als die Mikrowelle Verstimmungen, die zur Abschirmung verwendet werden. Dabei sind  $m_{i,Na}$  und  $m_{i,K}$  die Projektionen der Kernspins von Na bzw. K auf die Magnetfeldachse. Bei 72,35 G koppelt eine σ-polarisierte<sup>-</sup> Mikrowelle hauptsächlich an den  $|J = 1, m_J =$ 

-1)-Zustand mit Übergangsfrequenz5 . 6434137 GHz. Unter

d

Abwesenheit von elektrischen Feldern, Übergangsdipolmoment

(TDM) ist bereits 0. 96d/<sub>0</sub> 3. In einer starken Mikrowelle

Feld werden die Kernspinprojektionen weiter gereinigt den TDM noch näher an den Höchstwert heranführen von  $d/_{0}3$ .

Leider können wir die Kopplung nicht direkt messen. pling-Stärke  $\Omega$  bei voller Mikrowellenleistung, indem sie resonante Rabi-Oszillationen antreibt. Die Kopplung an schwächere Übergänge würde zu Schwebungssignalen mit den Haupt-Rabi-Oszillationen führen. Wir können jedoch die effektive Rabi-Frequenz  $\Omega_{eff}$  bei Abstimmungen messen, die groß genug sind, um die Pressekopplung zu unerwünschten Übergängen. Für diese Maa-

schalten wir die optischen Dipolfallen vorübergehend ac-Stark-Verschiebungen aus, um durch das einfangende Licht zu vermeiden. Dann erzeugen wir einen rechteckigen Mikrowellenpuls mit einem schnellen Mikrowellenschalter, der den Eingang Mikrowellenverstärkers unseres steuert. Der Mikrowellenpuls führt zu Rabi-Oszillationen zwischen den Rotationszuständen, wie in Abb. S3b gezeigt. Wir ignorieren die Oszillationen während der ersten 5 µs des Mikrowellenpulses, da der Verstärker einige Zeit benötigt, um die volle Ausgangsleistung zu erreichen. Diese Messungen werden bei niedriger Moleküldichte durchgeführt, um Dephasierung und unelastische Stöße zwischen den Molekülen zu unterdrücken. Aus den in Abb. S3c gezeigten Messungen von  $\Omega_{\text{eff}}$  leiten wir  $\Omega \approx$ п2 ×11 МНz ab.

### Mikrowellen-Polarisation

Es ist entscheidend, dass das Mikrowellenfeld einen hohen Grad an Polarisationsreinheit aufweist, um eine effiziente Abschirmung zu erreichen. Insbesondere bei



kleinen Abstimmungen können unerwünschte Polarisationskomponenten an angeregte Zustände mit unterschiedlichem m-Charakter. koppeln. was die Abschirmwirkung erheblich reduziert [39]. Glücklicherweise definiert das starke elektrische Wechselfeld der Mikrowelle die Quantisierungsachse der

Moleküle, so dass wir nur noch  $\sigma$  +und  $\sigma$  berücksichtigen müssen-

Komponenten im Mikrowellenrahmen. Wir können unterschiedliche...

Abb. S3. **Mikrowellenübergänge.** a, Zeeman-Diagramm der Mikrowellenübergangsfrequenzen vom absoluten Grundzustand mit der Energie  $E_0$ zur Hyperfeinstruktur des verlassenen Rotationszustandes (J = 1). Die Farbskalen zeigen den Übergang

Dipolmoment (TDM) für die verschiedenen Mikrowellenpolarisationen, unter der Annahme, dass der Grundzustand die Kernspinproportionen  $(m_{i,Na}, m_{i,K}) = (3/2, 4)$  hat, was eine gute Annäherung für Magnetfelder größer als 3 G ist.

und TDMs werden mit dem Code aus Ref. [46] und den Parametern aus Ref. [36]. Der Kreis markiert den  $\sigma$ -Übergang-, der für die Mikrowellenabschirmung verwendet wird. Die Raute, das Dreieck und das Quadrat markieren die Mikrowellenübergänge, die zur Untersuchung der Polarisation des Mikrowellenfeldes verwendet werden. **b**, Beispiel für

Off-resonante Rabi-Oszillationen bei voller Mikrowellenleistung mit einer Verstimmung von  $2\pi$  2 MHz vom-  $\sigma$ -Übergang bei 72,35 G. Die Daten zeigen die Anzahl der Moleküle im absoluten Grundzustand

Zustand *N* <sub>0</sub>und die Fehlerbalken sind der Standardfehler des Mittelwerts von zwei Wiederholungen. Die Linie ist eine sinusförmige Anpassungsfunktion, die eine effektive Rabi-Frequenz  $2\pi 11$  ergibt. 157(6) MHz. **c**, Effektive Rabi-Frequenz  $\Omega_{\text{eff}}$  bei voller Mikrowellenleistung gegen

Verstimmung vom<sup>-</sup>  $\sigma$ -Übergang bei 72,35 G. **d-f**, Beispiele für resonante Rabi-Oszillationen an den  $\sigma$ - <sup>+</sup>(**d**),  $\pi$ - (**e**) und  $\sigma$ -- (**f**)

Übergänge, angegeben in  $\mathbf{a}$  bei G135. Die sinusförmigen Anpassungsfunktionen

ergeben Rabi-Frequenzen von  $2\pi$  2. 96(8) kHz,  $2\pi$  2. 58(13) kHz und  $2\pi$  9. 9(4) kHz. Die Mikrowellenleistung wird um dB55 (**d**) bzw. dB61 (**e** und **f**) abgeschwächt.

×

хx

×

×



Abb. Skalierung der Kollisionsraten. S4. a. Berechnungen der elastischen (orange) und inelastischen (blau) Kollisionsraten-Koeffizienten für verschiedene Mikrowellen-Elliptizitätswinkel ٤. × Weitere Simulations parameter sind *T* = 800 nK und  $\Omega$  = 2 $\pi$  11 MHz. Die Markierungen sind Berechnungen einschließlich Hyperfeinwechselwirkungen

für  $\xi = 6.2^{\circ}$ . **b**, Die Kreise und die durchgezogene Linie sind die gemessenen Werte und die Berechnungen der elastischen Ratenkoeffizienten, wie

in Abb. des2 Haupttextes für T = nK800 gezeigt. Die gestrichelte Linie ist eine vereinfachte Berechnung der elastischen Streurate auf der Grundlage des effektiven Dipolmoments  $d_{\text{eff}}$ . Die Fehlerbalken sind die Standardabweichung der Anpassung an die Differentialgleichungen.

enten Mikrowellenübergänge der Moleküle, um die Polarisation des Mikrowellenfeldes in situ zu charakterisieren. Um die einzelnen Übergänge können schwache aufzulösen, jedoch nur Mikrowellenfelder angelegt werden, d.h. die Mikrowellenpolarisation kann nur im Rahmen des Gleichstrommagnetfeldes charakterisiert werden. Wir untersuchen die Mikrowellenfeldpolarisation bei 135 G. wo wir das Gleichmagnetfeld noch stabilisieren können und wo die verwendeten Übergänge, die in Abb. S3a markiert sind, einigermaßen isoliert sind. Die in Abb. S3(d-f) gezeigten Messungen werden in ähnlicher Weise durchgeführt wie die zuvor effbeschriebenen Messungen von  $\Omega$ . Allerdings messen wir hier die Resonanz und die Mikrowellenleistung wird um 55-61 dB gedämpft Die Mikrowellenleistung muss niedrig genug sein, um eine außerresonante Kopplung an benachbarte Transitionen zu vermeiden, aber auch stark genug, um Rabi-Oszillationen von mindestens  $\pi 2$  kHz2  $\mathbf{Z}\mathbf{H}$ realisieren, da wir den Dipol nur ausschalten können, wenn wir die Resonanz mit dem Dipol abschalten.

Fallen für etwa ms1, bevor wir beginnen, Moleküle zu verlieren. Die TDMs der ausgewählten  $\sigma^{-+}$ ,  $\pi^{-}$  und<sup>-</sup>  $\sigma^{-}$ Übergänge betragen 0,875  $d/_{0}0.3$ , 789  $d/_{0}$  bzw. 3,3,0,989  $d/_{0}$ . Aus den gemessenen Rabi-Frequenzen lässt sich die relative

Mikrowellenleistung und den TDMs können wir das Verhältnis der elektrischen Feldamplituden  $E_{+\sigma}/E_{-\sigma} =$ 0,169(8) und  $E/E_{-\pi\sigma} =$  0,462(30) bestimmen. Obwohl wir die Phasenbeziehung zwischen den gemessenen Komponenten des elektrischen Wechselfeldes im Rahmen des magnetischen Gleichfeldes nicht kennen, können wir ableiten, dass der Wellenvektor der Mikrowelle geneigt ist

irgendwo zwischen 21,5(12) °und 29,0(16) °in Bezug auf

Dies hat einen signifikanten Einfluss auf die inelastische Kollisionsrate und damit auf die Abschirmungseffizienz, wie in Abb. S4a dargestellt. Für eine ausreichend große Elliptizität können sogar inelastische Streureserven entstehen, wenn die unerwünschte zirkulare Polarisationskomponente bei kleinen Detun- den zur Kopplung beiträgt. In unserem Aufbau kann die Reinheit der zirkularen Polarisation teilweise durch Bewegen und Drehen eines zylindrischen Metallblechs, das die spiralförmige An- tenna umgibt, optimiert werden.

## Berechnungen mit gekoppelten Kanälen

die Magnetfeldachse. Im Mikrowellenrahmen ist die Der Ellipsenwinkel ist dann durch die elektrischen Feldamplituden  $E\sigma_+$  und  $E\sigma_-$  als  $\xi = \arctan E\sigma_+/E\sigma_$ gegeben und hat

einen Wert zwischen11 . 5(5) °und5 . 9(6)°. Zur Berechnung des Potentialkurven in Abb. des1 Haupttextes und den Raten-

Koeffizienten in Abb. 2a des Haupttextes nehmen wir ξ =6.2°.. Die Elliptizität der Mikrowellenpolarisation hat einen sigWir führen Berechnungen zur Streuung in gekoppelten Kanälen unter Verwendung des in [34] entwickelten Rahmens durch. [34, 4739,] entwickelt wurden, und wir fassen hier die numerischen Details dieser Berechnungen zusammen.

Der Hamiltonian beschreibt die NaK-Moleküle als starre Rotoren mit elektrischen Dipolmomenten, die sowohl untereinander als auch mit dem elektrischen Mikrowellenfeld wechselwirken. Außerdem haben die Moleküle Kernspins, die miteinander und mit einem statischen Magnetfeld koppeln. Die Kanalbasis wurde abgeschnitten, indem nur die beiden niedrigsten Rotationszustände J = 0, und 1Teilwellen L = 1,3 einbezogen wurden. Wir haben die Streuwellenfunktionen von  $R_{\min} = 30 a_0$  bis  $R_{\max} = 60\ 000 a_0$ 5.propagiert, wobei wir eine Einfang-Randbedingung bei  $R_{\min}$  und die üblichen Streu-Randbedingungen bei  $R_{\text{max}}$ auferlegt haben, aus denen die S-Matrix und die Kollisionsquerschnitte erhalten werden. Diese Nahbereichsgrenze führt zu Verlustraten, die durch das universelle Verlustmodell [48] in Abwesenheit von externen

Felder, was in angemessener, aber nicht perfekter Übereinstimmung mit den experimentellen Verlustraten ist, 4. 9 cm/s10<sup>-113</sup> gegenüber7 . 7(5) cm/s10<sup>-113</sup> bei T =800 nK, übereinstimmt. Wir haben Streuungsrechnungen für neun Werte des

Kollisionsenergie in logarithmischen Abständen zwischen 0,1  $kT_{\rm B}$  und 10  $kT_{\rm B}$ , und anschließend werden die Querschnitte mit der Geschwindigkeit multipliziert und über die Maxwell-Boltzmann- oder Fermi-Dirac-Verteilung gemittelt, um Kollisionsraten im Vergleich zum Experiment zu erhalten (siehe Abb. 2 im Haupttext).

Die in Abb. 2 des Haupttextes dargestellten Streuraten wurden unter Vernachlässigung der Hyperfeinwechselwirkungen und unter Verwendung der aus dem Experiment ermittelten elliptisch Mikrowellenpolarisation, die und gegenüber dem Magnetfeld geneigt ist, ermittelt. Wir haben auch Berechnungen durchgeführt, die Hyperfeinwechselwirkungen einschließen, aber ihr Effekt ist gering, wie in Abb. S4a zu sehen ist. Hier haben wir die Hyperfeinbasis abgeschnitten, indem wir nur Funktionen mit  $\Delta m_i = 1$  einbezogen haben, d. h. Funktionen, die sich höchstens um ein Quantum vom Ausgangszustand unterscheiden. Es wurden auch Konvergenztests mit  $\Delta m_i = 2$  durchgeführt. Diese Abbildung enthält auch Streuraten für Mikrowellenpolarisationen mit unterschiedlicher Elliptizität. In diesem Fall liegt die Polarisation in der Ebene, die senkrecht zur Magnetfeldachse steht.

Die Kurven der potentiellen Energie, die in Abb. des 1 Haupttextes dargestellt sind, wurden durch Diagonalisierung der Hamiltonschen Funktion einschließlich der kinetischen Energie für einen festen  $\theta$ , den Winkel zwischen der Annäherungsrichtung der kollidierenden Moleküle und der Ausbreitungsrichtung der Mikrowellen, und für einen festen R, den Abstand zwischen den beiden Molekülen, wie in X

х

±

Ref. [39]. Dabei wird die zentrifugale kinetische Energie weggelassen, die bei festem  $\theta$  nicht gut definiert ist, und die hy- perfine Wechselwirkung wurde aus Gründen der

Übersichtlichkeit der Abb. des1 Haupttextes vernachlässigt. Der elastische Wirkungsquerschnitt kann zu einem vernünftigen Grad, durch  $(32\pi/15)(\mu d^2 /(M\pi\epsilon^2 4_0))^2_{eff}$  mit der reduzierten Masse  $\mu = m/2$  angenähert werden [49]. Ein Vergleich mit unserer Berechnung des gekoppelten Kanals ist in Abb. S4b dargestellt.