

Abstract

Control over all internal and external degrees of freedom of molecules at the level of single quantum states will enable a series of fundamental studies in physics and chemistry. In particular, samples of ground-state molecules at ultralow temperatures and high number densities will allow novel quantum-gas studies and future applications in quantum-information science. However, high phase-space densities for molecular samples are not readily attainable as efficient cooling techniques such as laser cooling are lacking.

This work presents a series of experiments on the production of samples of deeply bound molecules in the near quantum degenerate regime with full control over the internal degrees of freedom. We exploit the fact that high phase-space densities are readily achievable for atoms and that atoms can efficiently and state-selectively be associated on a Feshbach resonance to weakly bound molecules, while maintaining the quantum gas character of the sample. We then transfer the molecules from the weakly bound level to specific deeply bound rovibrational levels of the singlet $X^1\Sigma_g^+$ electronic ground-state potential, most notably to the lowest vibrational and rotational level of the electronic ground state, i. e. to the rovibronic ground state $X^1\Sigma_g^+ |v = 0, J = 0\rangle$. Here, v and J are the vibrational and rotational quantum numbers, respectively. Population transfer is mediated by a total of four laser transitions, linking the initial weakly bound level to the rovibronic ground state via two intermediate levels in electronically excited states and one intermediate ground-state level. We employ the Stimulated Raman Adiabatic Passage (STIRAP) technique for coherent population transfer. This four-photon scheme is preferred for the cesium dimer, the molecule used in the present work, because of prohibitively low Franck-Condon factors in homonuclear molecules for a single two-photon Λ -type transition for the electronic potentials used here.

In a first set of experiments, we transfer, with over 80 % efficiency, the molecular population to the intermediate ground-state rovibrational level $|v = 73, J = 2\rangle$ with a binding energy of $>hc \times 1000 \text{ cm}^{-1}$ or $h \times 30 \text{ THz}$ in a single two-photon step, where h and c are Planck's constant and the speed of light, respectively. This transforms the initial loose long-range bond mediated by van der Waals interaction to a tight chemical bond. We performed two important tests on the sample. In a Ramsey-type experiment we could show that the transfer is indeed coherent. In an expansion measurement, we could demonstrate that the sample is not heated and that the quantum-gas character of the molecular sample is maintained during transfer to deeply bound levels. This latter point is particularly significant because the coherent population transfer takes away an energy of $\sim k_B \times 1500 \text{ K}$ whereas the molecular sample has an energy on the order of $k_B \times 10 \text{ nK}$. Here, k_B is Boltzmann's constant.

A second set of experiments takes these results a significant step further. We here transfer the population to a particular hyperfine sublevel of the rovibronic ground state while each molecule is trapped at an individual site of an optical lattice. In this case, coherent population transfer removes $\sim k_B \times 5200 \text{ K}$ of binding energy. Each molecule resides in the motional ground state of an individual well of the optical lattice potential.

We first load a Bose-Einstein condensate of Cs atoms into an optical lattice and drive the superfluid-to-Mott-insulator transition under conditions that maximize the number of lattice sites that are occupied by exactly two atoms. Feshbach association in the optical lattice takes place with near-unit efficiency. We then transfer the population in either a single four-photon transition or with two consecutive two-photon transitions with >50% efficiency to the rovibronic ground state. We achieve motional state control by operating the lattice near a magic wavelength, giving matched trapping potentials for the initial Feshbach level and for the $|v=0\rangle$ -molecules. We observe a lifetime of 8 s for the rovibronic ground-state molecules in the optical lattice.

In addition, this work presents the high-resolution molecular spectroscopy both on the electronically excited states and, in the form of two-photon dark resonance spectroscopy, on the electronic ground state necessary for coherent population transfer in the quantum gas regime.

Our results present a crucial step towards Bose-Einstein condensation of ground-state molecules and, when suitably generalized to polar heteronuclear molecules, the realization of dipolar quantum-gas phases in optical lattices.

Zusammenfassung

Die Kontrolle über alle inneren und äußeren Freiheitsgrade von Molekülen auf dem Niveau einzelner Quantenzustände wird eine Reihe von grundlegenden Untersuchungen in Physik und Chemie ermöglichen. Molekülensembles, die ultratiefe Temperaturen und hohe Teilchendichten vereinigen, werden neuartige Quantengasuntersuchungen und zukünftige Anwendungen in der Quanteninformation erlauben. Allerdings sind hohe Phasenraumdichten für Moleküle schwierig zu erreichen, weil hocheffiziente Kühlmethoden, insbesondere die Laserkühlung, für Moleküle bisher nicht verfügbar sind.

Diese Arbeit diskutiert eine Reihe von Experimenten zur Produktion von Ensembles tief gebundener Moleküle nahe der Quantenentartung mit vollständiger Kontrolle über die inneren molekularen Freiheitsgrade. Wir machen uns die Tatsache zu Nutze, dass hohe Phasenraumdichten routinemäßig für Atome erreichbar sind und dass Atome auf sehr effiziente und vollkommen zustandsselektive Weise an einer Feshbach Resonanz zu schwach gebundenen Molekülen assoziiert werden können, wobei der Quantengascharakter des Ensembles erhalten bleibt. In weiterer Folge transferieren wir die molekulare Population vom ursprünglichen, schwach gebundenen Zustand in spezifische tief gebundene Rotations-Schwingungszustände des Singulett $X^1\Sigma_g^+$ elektronischen Grundzustandes, im Besonderen in den niedrigsten Rotations-Schwingungszustand des elektronischen Grundzustandes $X^1\Sigma_g^+ |v = 0, J = 0\rangle$. Hierbei ist v die Vibrationsquantenzahl und J die Rotationsquantenzahl. Der Populationstransfer umfasst insgesamt vier Laserübergänge, wobei der schwach gebundene Ausgangszustand über zwei Zwischenzustände in elektronisch angeregten Potentialen und ein intermediäres Niveau des elektronischen Grundzustandspotentials mit dem Rotations-Schwingungs-Grundzustand verbunden wird. Der Zustandstransfer wird in einem kohärenten Prozess mit der Stimulated Raman Adiabatic Passage (STIRAP)-Technik durchgeführt. In dieser Arbeit kommt Cs_2 zum Einsatz, ein homonukleares Molekül. Das Vier-Photonen Schema ist, für die hier verwendeten elektronisch angeregten Potentiale, einem direkten Zwei-Photonen Λ -Schema überlegen, weil es erlaubt, die dabei auftretenden, zu geringen Franck-Condon Faktoren zu umgehen.

In einer ersten Serie von Experimenten transferieren wir mit über 80 % Effizienz die molekulare Population in das intermediäre Grundzustandsniveau $|v = 73, J = 2\rangle$ mit einer Bindungsenergie von $>h c \times 1000 \text{ cm}^{-1}$ oder $h \times 30 \text{ THz}$, wobei h und c die Planck-Konstante bzw. die Lichtgeschwindigkeit sind. Dabei wird die anfängliche, lose van der Waals Bindung in eine feste chemische Bindung transformiert. Wir führten zwei wichtige Tests mit dem Molekülensemble durch. In einem Ramsey-Experiment konnten wir zeigen, dass der Transfer tatsächlich kohärent ist. In einer Expansionsmessung gelang es uns nachzuweisen, dass das Ensemble nicht geheizt wird und dass der Quantengascharakter des Ensembles durch den Transfer erhalten bleibt. Dieser letztere Punkt ist besonders signifikant, da der Populationstransfer eine Bindungsenergie von $\sim k_B \times 1500 \text{ K}$ abführt, während das molekulare Ensemble durch Energien in der Größenordnung von $k_B \times 10 \text{ nK}$ charakterisiert ist, wobei k_B die

Boltzmann-Konstante ist.

Eine zweite Serie von Experimenten führt diese Untersuchungen um einen wichtigen Schritt weiter. Hierbei transferieren wir die Population in ein bestimmtes Hyperfeinniveau des Rotations-Schwingungs-Grundzustandes, wobei jedes Molekül an einem individuellen Gitterplatz eines optischen Gitters gefangen ist. In diesem Fall führt der kohärente Populationstransfer $\sim k_B \times 5200$ K an Bindungsenergie ab. Die Moleküle befinden sich dabei im Bewegungsgrundzustand des entsprechenden Gitterplatzes. Wir laden zunächst ein Bose-Einstein Kondensat von Cäsium Atomen in ein optisches Gitter und treiben den Suprafluid-zu-Mott-Isolator Phasenübergang unter Bedingungen, die die Anzahl der Gitterplätze, die mit exakt zwei Atomen besetzt sind, maximieren. Feshbach-Assoziation im optischen Gitter erfolgt mit einer Effizienz nahe eins. Entweder in einem einzigen Vier-Photonen Schritt oder in zwei aufeinanderfolgenden Zwei-Photonen Schritten transferieren wir dann die Population in den Grundzustand mit über 50% Effizienz. Dabei erreichen wir Kontrolle über den externen Bewegungszustand, indem wir das optische Gitter nahe einer magischen Wellenlänge betreiben, die idente Fallenpotentiale für das ursprüngliche Feshbach-niveau und für die $|\nu = 0\rangle$ -Moleküle ergibt. Die Lebensdauer der Grundzustands-moleküle im optischen Gitter beträgt 8 s.

Darüber hinaus werden in dieser Arbeit die hochauflösenden molekülspektroskopischen Messungen, die für kohärenten Transfer im Quantengasregime notwendig sind, sowohl an elektronisch angeregten Zuständen als auch, in der Form von Zwei-Photonen-Dunkelresonanz-Spektroskopie, am elektronischen Grundzustand diskutiert.

Unsere Ergebnisse stellen einen wichtigen Schritt zur Bose-Einstein-Kondensation von Grundzustandsmolekülen und, wenn sie entsprechend auf polare heteronukleare Moleküle erweitert werden, zur Realisierung von dipolaren Quantengas-Phasen in optischen Gittern dar.