



Doctoral Thesis

Attosecond photoemission dynamics from noble metal surfaces

Author(s):

Locher, Reto

Publication Date:

2013

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010168150> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 21504

***ATTOSECOND PHOTOEMISSION DYNAMICS FROM
NOBLE METAL SURFACES***

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

RETO LOCHER

Dipl. Phys. EPF Lausanne

born on *26.11.1984*

citizen of Oberegg AI

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. U. Keller, examiner
Prof. Dr. J. Osterwalder, co-examiner
PD Dr. L. Gallmann, co-examiner

2013

Abstract

In this thesis, photoemission delays for the noble metal surfaces Ag(111) and Au(111) are investigated by means of a novel method. The modifications to our attosecond beamline are presented and the formalism underlying this new method is discussed. The experimental findings are compared to computations based on a simple model and possible contributions to the experimental photoemission delays are inferred.

Electron dynamics in condensed matter systems is at the basis of important technologies such as photovoltaic devices and semiconductors. Developing a detailed understanding of the involved processes promises further advances in these fields. At the same time, many-body effects like photohole-screening, electron-electron scattering and transport are involved which is of great interest in its own respect.

The advent of attosecond science has provided the tool set to study electron dynamics on its natural time scale. So far, these techniques have mainly been applied in gas phase. Moving to condensed matter systems is a delicate task for several reasons and only very few experiments have been reported on such systems. In particular, photoemission dynamics has only been sparsely studied so far.

In this work, our beamline was modified and extended to host a surface physics endstation. High-harmonic generation in noble gases with an infrared driving field is employed to generate pulses in the extreme ultraviolet spectral region for XUV-IR cross-correlation measurements. The characteristics of the IR pulse driving the HHG and the pulse involved in the measurements can be tailored independently with great freedom, owing to their separation prior to the generation process. The presented beamline contains two target chambers that can be operated simultaneously. A toroidal mirror relay-images the focus from the first chamber into the second one. The second interaction region is occupied with a hemispherical electron analyzer but can, in principle, be occupied by any endstation.

The RABBITT technique has so far been applied in gas phase exclusively. We extended this technique to condensed matter systems. The observation of nice and stable interference fringes in the sidebands proves our beamline to be stable and shows that the reimaging conserves both temporal and spatial characteristics of the two beams. Furthermore, this constitutes the first experimental observation of sub-cycle temporal structure from condensed matter systems resolved by attosecond pulse trains.

Exploiting the opportunity to conduct measurements in both interaction regions simultaneously, a novel scheme to address photoemission delays from condensed matter systems is introduced. RABBITT traces in argon and on the noble metal surfaces Ag(111) and Au(111) are recorded at the same time. The former is used to calibrate our device for the group delay of the radiation and allows extracting the surface specific phases from the RABBITT scan on the noble metal surface. In the case of Ag(111), the electrons originate from the $4d$ band, in the case of Au(111) they are emitted from the $5d$ band. The underlying formalism, also accounting for the fact that the two measurements are not conducted at the same site, is developed in this work.

In contrast to previous studies on photoemission from surfaces, our technique allows accessing the photoemission delay for several photon energies at once and under identical conditions. In the present work, this advantage is crucial as the conclusions are drawn from the energy-dependence of the photoemission delay rather than from their absolute values.

Our experimental results are compared to a simple model containing the Wigner delay for the initial excitation in the bulk and the delay of subsequent transport to the surface. The transport delay contribution dominates and imposes a decreasing photoemission delay for increasing photon energies. However, our experimental findings do not agree with this dependence. The discrepancy is more pronounced in the case of Ag(111) and is partially attributed to a resonance in the sp -band.

In any case, it shows that simple transport alone does not provide a satisfying description of photoemission dynamics from noble metal surfaces and from

condensed matter systems in general. This is in contradiction to previous findings with the attosecond streaking technique. In those cases, the delay was measured at a specific photon energy and no assertions about the energy-dependence were possible.

Our work presents a new technique to investigate many-body effects in condensed matter systems on their natural time scale. The obtained results shed new light on photoemission from noble metal surfaces and suggests significant contributions beyond transport. Moreover, the design of our setup promises to make the tool set of attosecond science available to new scientific communities and thereby further extend the scope of this field.

Kurzfassung (German)

In der vorliegenden Doktorarbeit wird die Verzögerung der Photoemission von den Edelmetalloberflächen Ag(111) und Au(111) gemessen. Dabei kommt eine neuartige Methode zur Anwendung. Die notwendigen Anpassungen unseres experimentellen Aufbaus werden diskutiert. Unsere Messwerte werden mit Berechnungen in einem einfachen Modell verglichen, um Rückschlüsse über mögliche Beiträge zur ermittelten Verzögerung zu ziehen.

Die Dynamik von Elektronen in Festkörpern ist grundlegend für bedeutende technologische Bereiche wie zum Beispiel in der Photovoltaik oder bei Halbleitern. Ein grundlegendes Verständnis für die involvierten Prozesse verspricht weitere Fortschritte in diesen Bereichen. Gleichzeitig beinhaltet diese Dynamik Mehrkörpereffekte wie zum Beispiel das dynamische Abschirmen von Photolöchern, Elektron-Elektron-Streuung und Transport. Dies sind interessante Phänomene in der Festkörperphysik.

Das Aufkommen der Attosekunden-Wissenschaften hat die Voraussetzungen geschaffen, um die Dynamik von Elektronen auf ihrer natürlichen Zeitskala zu untersuchen. Bisher wurde dies allerdings vornehmlich in Gasen umgesetzt. Die Anwendung auf Festkörper ist aus verschiedenen Gründen ein schwieriges Unterfangen und nur sehr wenige Experimente wurden bisher durchgeführt.

In der vorliegenden Arbeit wurde unser Messaufbau umgebaut und um eine Messkammer für Oberflächenexperimente erweitert. Pulse im fernen ultravioletten Spektralbereich wurden erhalten durch die Erzeugung höherer Harmonischer in Edelgasen mit einem infraroten Lichtpuls. Diese Pulse wurden dann für Kreuzkorrelationsmessungen eingesetzt. Die Eigenschaften der erzeugenden Pulse sowie der Pulse für die Korrelationsmessung können unabhängig voneinander eingestellt werden. Dies ist möglich, weil die beiden Pulse bereits vor der Erzeugung aufgespalten werden. Der vorgestellte Messaufbau verfügt über zwei Messkammern,

die gleichzeitig betrieben werden können. Ein Toroidspiegel bildet den Fokus der ersten Kammer massstabsgerecht in die zweite Kammer ab. Der zweite Messbereich kann grundsätzlich von einem beliebigen Detektor eingenommen werden.

In dieser Arbeit bildete ein hemisphärischer Elektronenanalysator die zweite Messkammer. Die RABBITT-Methode kam bisher ausschliesslich in Gasen zum Einsatz. Wir haben diese Methode auf Festkörper ausgedehnt und dabei regelmässige Interferenzmuster in den Seitenbändern gemessen. Dies beweist, dass unser Aufbau stabil ist und dass die Abbildung mit dem Toroiden die zeitlichen und räumlichen Eigenschaften der beiden Strahlen beibehält. Ausserdem ist dies der erste experimentelle Nachweis von solch kurzer zeitlicher Struktur in Festkörpern unter der Verwendung von Pulszügen.

Unser experimenteller Aufbau ermöglicht es, gleichzeitige Messungen in den beiden Messkammern durchzuführen. Basierend auf dieser Eigenschaft wird eine neuartige Methode für die Messung von Verzögerungen in der Photoemission von Festkörpern eingeführt. RABBITT-Spuren in Argon und auf den Edelmetalloberflächen Ag(111) und Au(111) werden gleichzeitig aufgenommen. Die Messung in Argon wird verwendet um den Messaufbau für die Gruppenlaufzeit der Strahlung zu eichen. Dies erlaubt den Zugang zu den oberflächenspezifischen Phasenbeiträgen in den RABBITT-Messungen auf den Metalloberflächen. Im Fall der Ag(111) Oberfläche entstammen die Elektronen dem $4d$ -Band, im Fall der Au(111) Oberfläche dem $5d$ -Band. Der dieser Methode zugrundeliegende Formalismus wird in dieser Arbeit entwickelt. Dabei wird der Tatsache Rechnung getragen, dass die beiden Messungen nicht am gleichen Ort durchgeführt werden.

Im Gegensatz zu vorherigen Untersuchungen der Photoemission von Oberflächen ermöglicht es unsere Methode, die Verzögerung für mehrere Photonenenergien gleichzeitig und unter identischen Bedingungen zu messen. Diese Eigenschaft ist in der vorliegenden Arbeit von zentraler Bedeutung, zumal die Schlussfolgerungen auf der Energieabhängigkeit der Verzögerung basieren, und nicht auf deren Absolutwerten.

Unsere experimentellen Resultate werden verglichen mit einem einfachen Modell, das die Wigner-Verzögerung der Anregung im Festkörper und den anschließenden Transport zur Oberfläche enthält. Der Beitrag der Transportverzögerung überwiegt und bedingt eine Abnahme der Emissionsverzögerung bei zunehmender Photonenenergie. Unsere Messdaten widersprechen diesem Trend allerdings. Die Diskrepanz ist stärker ausgeprägt im Fall der Ag(111) Oberfläche und kann teilweise durch eine Resonanz im *sp*-Band erklärt werden. Unsere Resultate zeigen, dass einfacher Transport alleine keine zutreffende Beschreibung der Photoemissionsdynamik in Festkörpern liefert. Dieser Befund steht im Widerspruch zu früheren Arbeiten mit der attosecond streaking Methode. Allerdings wurde dabei lediglich eine Verzögerung bei einer spezifischen Photonenenergie gemessen und es konnte keine Aussage über die Energieabhängigkeit der Verzögerung gemacht werden.

Die vorliegende Arbeit stellt eine neue Methode zur Untersuchung von Mehrkörpereffekten in Festkörpern auf deren natürlicher Zeitskala vor. Die erzielten Resultate werfen neues Licht auf den Photoemissionsprozess von Edelmetalloberflächen und zeigen auf, dass Transport alleine den Prozess nicht korrekt beschreibt. Des Weiteren ermöglicht die neue Ausstattung unseres Versuchsaufbaus eine Erweiterung des Bereichs der Attosekundenphysik.