

文章编号: 1672-8785(2025)08-0013-09

基于 Simmons 模型的 THz-STM 隧穿电流特性分析

余健雄¹ 何雨伦¹ 黄彬¹ 刘翔¹ 杜海伟^{1,2*}

(1. 南昌航空大学仪器科学与光电工程学院, 江西南昌 330063;

2. 无损检测技术教育部重点实验室, 江西南昌 330063)

摘要: 超短太赫兹脉冲耦合隧道扫描显微技术具有超强的时空分辨成像能力, 在材料表面成像、性能诊断和检测等方面有很好的应用。基于 Simmons 模型分析了太赫兹隧道扫描显微技术的工作原理和影响隧穿电流的因素。结合数值计算详细研究了太赫兹脉冲参数和样品功函数对势垒和隧穿电流的影响。结果表明, 隧穿电流是太赫兹脉冲相位的周期性函数; 太赫兹电场与直流偏置电场诱导产生的隧穿电流存在临界值, 该临界值由材料功函数决定, 耦合电场大于该值后隧穿电流是太赫兹电场的线性函数; 若太赫兹脉冲脉宽增加, 则隧穿电流整流电子数目呈振荡式下降并趋于稳定。研究结果对于深入理解太赫兹隧道扫描显微技术的微观物理机制、指导相关实验具有较好的参考价值。

关键词: 太赫兹; 隧道扫描显微; 近场; Simmons 模型; 隧穿电流

中图分类号: O485 文献标志码: A DOI: 10.3969/j.issn.1672-8785.2025.08.003

Analysis of Tunneling Current Characteristics in the THz-STM Based on Simmons Model

YU Jian-xiong¹, HE Yu-lun¹, HUAN Bin¹, LIU Xiang¹, DU Hai-wei^{1,2*}

(1. School of Instrument Science and Optoelectronic Engineering, Nanchang Hangkong University,

Nanchang 330063, China; 2. Key Laboratory of Nondestructive Testing, Ministry

of Education, Nanchang 330063, China)

Abstract: Ultrashort terahertz (THz) pulses coupled with the scanning tunneling microscopy possess imaging capabilities with ultra-high spatial-temporal resolution, offering promising applications in material surface imaging, property diagnosis, and testing. The operating principle of THz tunneling scanning microscopy and the factors influencing the tunneling current are analyzed based on the Simmons model. Combined with numerical calculations, the influences of THz pulse parameters and sample work function on the barrier and tunneling current are studied in detail. The results show that the tunneling current is a periodic function of the THz pulse phase. The tunneling current induced by the THz electric field and the DC bias electric field has a critical

收稿日期: 2024-12-24

基金项目: 国家自然科学基金项目(12064028); 江西省自然科学基金项目(20232BAB201045); 南昌航空大学研究生创新专项(YC2024-059)

作者简介: 余健雄(2000-), 男, 江西南昌人, 硕士研究生, 主要研究方向为太赫兹技术及其应用。

*通讯作者: E-mail: haiweidu@nchu.edu.cn

value, determined by the work function of the material. Above this critical value, the tunneling current becomes a linear function of the THz electric field. As the THz pulse width increases, the number of electrons rectified by the tunneling current decreases in an oscillatory manner and tends to be stable. These research results have a good reference value for an in-depth understanding of the microscopic physical mechanism of terahertz tunneling scanning microscopy technology and guiding related experiments.

Key words: terahertz; scanning tunneling microscopy; near-field; Simmons model; tunneling current

0 引言

太赫兹(THz)波是指频率为 $0.1\sim 30\text{ THz}$ 、波长为 $10\sim 3000\mu\text{m}$ 的电磁波，也被称为亚毫米波^[1]。太赫兹波在长波波段与毫米波重合，在短波波段与红外光重合，是宏观经典理论向微观量子理论的过渡区，也是电子学向光子学的过渡区^[1]。太赫兹波以其特殊波段的频率、光子能量低和透射性好等特点在成像与光谱学方面具有巨大的应用前景。其中，太赫兹近场成像已成为目前太赫兹技术领域的研究热点，特别是太赫兹扫描近场光学显微镜(THz Scanning Near-field Optical Microscopy, THz-SNOM)^[2]和太赫兹扫描隧道显微镜(THz Scanning Tunneling Microscopy, THz-STM)^[3-4]。

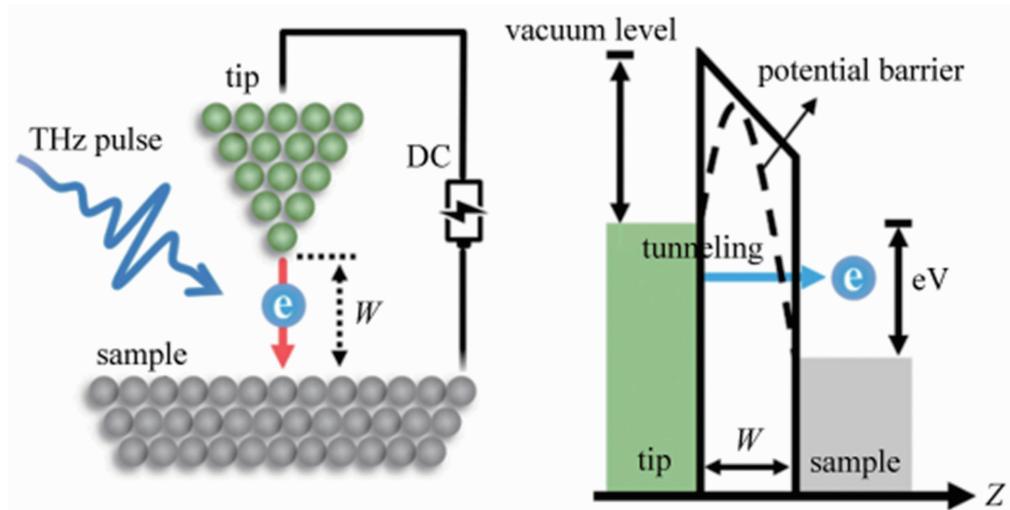
依靠纳米级金属针尖的STM技术以电子隧穿效应为基础，已将材料表面成像的空间分辨率拓展至 1 nm 以下^[5-6]。结合光学泵浦-探测技术原理，通过耦合宽带、超短的太赫兹脉冲，STM技术成功地把空间分辨率和时间分辨率结合起来，从而实现高时空分辨率的显微成像^[7-8]。目前，利用THz-STM优异的时空分辨能力可以观察和测量样品在纳米-皮秒量级的时空成像与演化规律^[9-10]。2016年，Cocker T L等人通过研制的超快THz-STM实验系统在比太赫兹脉冲振荡周期短的时间窗口内观察到并五苯分子的最高已占据分子轨道上操控电子的超快过程，并记录下 100 fs 内在亚埃量级的相干分子振动状态^[11]。2020年，Peller D等人在双稳镁酞菁分子中通过聚焦到针尖的太赫兹电场施加飞秒量级、原子尺度的力，有选择性地诱导了该分子的相干受阻转动过程^[12]。这些成果

证明在固体材料表面时空极限尺度上观察甚至操控单个分子或原子的超快过程成为可能。

利用太赫兹脉冲在隧穿结中诱导产生的隧穿电流进行时空成像，是THz-STM系统成像技术的核心。精准获得隧穿电流大小并分析影响隧穿电流的因素是该技术的关键问题。1963年，Simmons J G等人针对绝缘薄膜隔开的两块电极之间的隧穿电流，推导出广义的隧穿电流模型(即Simmons模型)^[13-14]。该模型目前已被用于THz-STM技术中的实验数据分析。本文详细介绍了Simmons模型的基本原理，结合数值计算详细讨论了太赫兹脉宽、相位、样品功函数等参数对隧穿电流的影响，并获得上述参数与隧穿电流之间的定量关系。本文结果对理解THz-STM超分辨时空成像的物理过程、利用该技术开展相关实验提供了很好的理论参考。

1 基于Simmons模型的THz-STM隧穿电流

STM成像系统利用极细的针尖(可想象为单个原子)在高真空环境下距离样品表面足够近时，通过外加偏置电压达到电子发生量子隧穿的条件，进而在针尖与样品之间形成隧穿电流并根据其大小获得样品表面成像信息^[15-18]。通过耦合超短太赫兹脉冲到针尖来改变隧穿电流并将其作为测量结果；结合STM技术与超短太赫兹脉冲，可以实现原子级的空间分辨率和皮秒-飞秒级的时间分辨率，从而用于测量样品表面的电荷超快动力学行为和演化特征^[15-19]。由于太赫兹光子能量在毫电子伏特量级，极低的光子能量使得隧穿结内的光热效应相对较弱，避免了电容耦合、微带带宽和热膨

图 1 THz-STM 工作原理示意图^[10]

胀等因素对测量结果的影响和限制^[20]。其工作原理如图 1 所示。

隧穿电流的产生来源于电子的量子隧穿效应, 即当针尖中的电子获得一定能量后有一定的概率穿过势垒, 发生量子隧穿。一定数量的电子发生隧穿即可形成宏观可测的电流, 即隧穿电流。Simmons 模型与传统量子势垒的不同之处是多了一个动态的虚势^[13-14]。传统的量子势垒是一个不规则的、大体呈梯形的势垒分布。Simmons 模型在传统量子势垒的基础上, 增加了虚势的分析, 使得结果更加接近测量值^[13-14]。该模型中, 针尖与样品之间的距离 x 、材料功函数 φ_0 、施加在样品与针尖之间的偏置电压 V 三者满足以下三次方程:

$$\varphi_0 - \frac{eV}{s}x - \frac{1.15\lambda s^2}{x(s-x)} = 0 \quad (1)$$

式中, s 是针尖与材料之间的最大间隙宽度; 参数 λ 为

$$\lambda = \frac{e^2 \ln 2}{16\pi\epsilon s} \quad (2)$$

式中, e 是电子电荷; ϵ 是真空介电常数。将参数 λ 化简后代入式(1), 可利用迭代法对其进行数值求解。由方程的物理意义可知, x 在 0 到间隙宽度 s 之间的范围内可得两个实根 s_1 、 s_2 。则 Simmons 模型中电子通过的势垒为

$$\bar{\varphi} = \frac{1}{\Delta s} \int_{s_1}^{s_2} V_i(x) dx \quad (3)$$

式中, $\Delta s = s_1 - s_2$, 积分上、下限分别为 s_1 、 s_2 。 $V_i(x)$ 为虚势:

$$V_i(x) = -\frac{1.15\lambda s^2}{x(s-x)} \quad (4)$$

根据以上公式, 对于确定的样品和针尖(即样品功函数确定、偏置电压确定), 可计算出电子在隧穿结中量子势垒的空间分布, 如图 2 所示。其中, 横坐标是针尖与样品之间的距离, 纵坐标是势垒高度。这里计算三种不同的功函数作为对比: 2.0 eV、3.8 eV(即高定向热解石墨烯(Highly Oriented Pyrolytic Graphite, HOPG)的功函数)^[20] 和 6.0 eV。可以看出, 该势垒并不是一个梯形, 而是一个边缘部分接近曲线、整体近似矩形的形状。

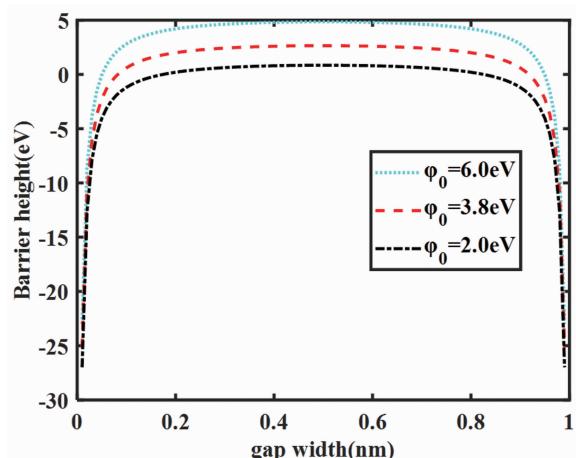


图 2 不同功函数(2.0 eV、3.8 eV、6.0 eV)材料的电子势垒空间分布

由量子力学的基本知识可知，一维情况下电子穿过势垒的概率为

$$D(E_x) = \exp\left(-\frac{4\pi}{h^3} \int_{\epsilon_i}^{\epsilon_e} [2m(V(x) - E_x)^{1/2}] dx\right) \quad (5)$$

式中， E_x 是电子在 x 轴上的能量分量； h 是普朗克常数； m 是电子质量。利用式(5)可计算出从探针流出到样品的电子数目：

$$N_1 = \frac{1}{m} \int_0^{E_m} n(v_x) D(E_x) dE_x \quad (6)$$

式中， E_m 是探针和样品内电子最大的能量； $n(v_x)$ 是在单位体积内速度位于 v_x 和 $v_x + dv_x$ 之间的电子数量，其值可由固体内的电子分布规律获得：

$$n(v) dv_x dv_y dv_z = (2m^4/h^3) f(E) dv_x dv_y dv_z \quad (7)$$

式中， $f(E)$ 是材料中电子能态 Fermi-Dirac 分布函数。

对式(7)进行化简并用极坐标表示：

$$n(v_x) = \frac{2m^4}{h^3} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(E) dv_x dv_z = \frac{4\pi m^3}{h^3} \int_0^{\infty} f(E_r) dE_r \quad (8)$$

式中， E_r 是极坐标下的电子能量。将式(8)代入式(6)，化简可得：

$$N_1 = \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \int_0^{\infty} f(E_r) dE_r \quad (9)$$

同理，可以利用上述方法计算出从样品流入探针的电子数目 N_2 ：

$$N_2 = \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \int_0^{\infty} f(E_r + eV) dE_r \quad (10)$$

在同一时刻从探针流向样品的总电子数目可以计算为

$$N = N_1 - N_2 = \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \times \left\{ \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^{\infty} [f(E_r) - f(E_r + eV)] dE_r \right\} \quad (11)$$

定义参数 ζ_1 和 ζ_2 ，对式(11)进行化简：

$$\zeta_1 = \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^{\infty} f(E_r) dE_r \quad (12)$$

$$\zeta_2 = \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^{\infty} f(E_r + eV) dE_r \quad (13)$$

且 $\zeta = \zeta_1 - \zeta_2$ 。利用上述参数，可以计算不同能量的电子形成总的隧穿电流：

$$J = \int_0^{E_m} D(E_x) \zeta dE_x \quad (14)$$

积分范围为电子能量分布区间，即从最小值 0 到最大值 E_m 。

采用超短太赫兹脉冲照射到针尖与材料之间时，其电场使电子势垒发生一定改变：

$$V(x) = \eta + \phi(x) \quad (15)$$

式中， η 为微扰量，由太赫兹电场振幅与势垒宽度乘积、增强因子决定。增强因子为根据针尖的形状和太赫兹波束的聚焦状态拟合出的常数因子^[20]。将其代入式(5)，可得到电子发生隧穿的概率：

$$D(E_x) = \exp\left[-\frac{4\pi}{h} (2m)^{1/2} \int_{s_1}^{s_2} (\eta + \phi(x) - E_x)^{1/2} dx\right] \quad (16)$$

利用级数展开对式(16)进行化简。由奇函数的积分对称性可化简为

$$D(E_x) \approx \exp[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{1/2}] \quad (17)$$

式中， $A = (4\pi\Delta s/h)(2m)^{1/2}$ 。然后将其代入式(14)，在区间 $[0, E_m]$ 内进行计算，可获得太赫兹电场因耦合到针尖与材料之间所产生的隧穿电流。

在传统 STM 技术中，一般采用恒电压或恒距离的工作模式^[21]。由于电流与时间无关，该技术没有时间分辨特性。当采用超短太赫兹脉冲耦合到针尖与样品之间时，太赫兹电场通过改变针尖与材料内的电子势垒形状来改变隧穿电流。结合泵浦-探测实验基本原理^[22]，即采用时间延迟可调的太赫兹脉冲入射到针尖处，对太赫兹脉冲的重复频率进行调制，并采用差分探测，进而对由太赫兹电场变化导致的隧穿电流变化量进行探测，使得 STM 技术获得与太赫兹脉宽相关的超快时间分辨率。

在 THz-STM 实验系统中，太赫兹电场通

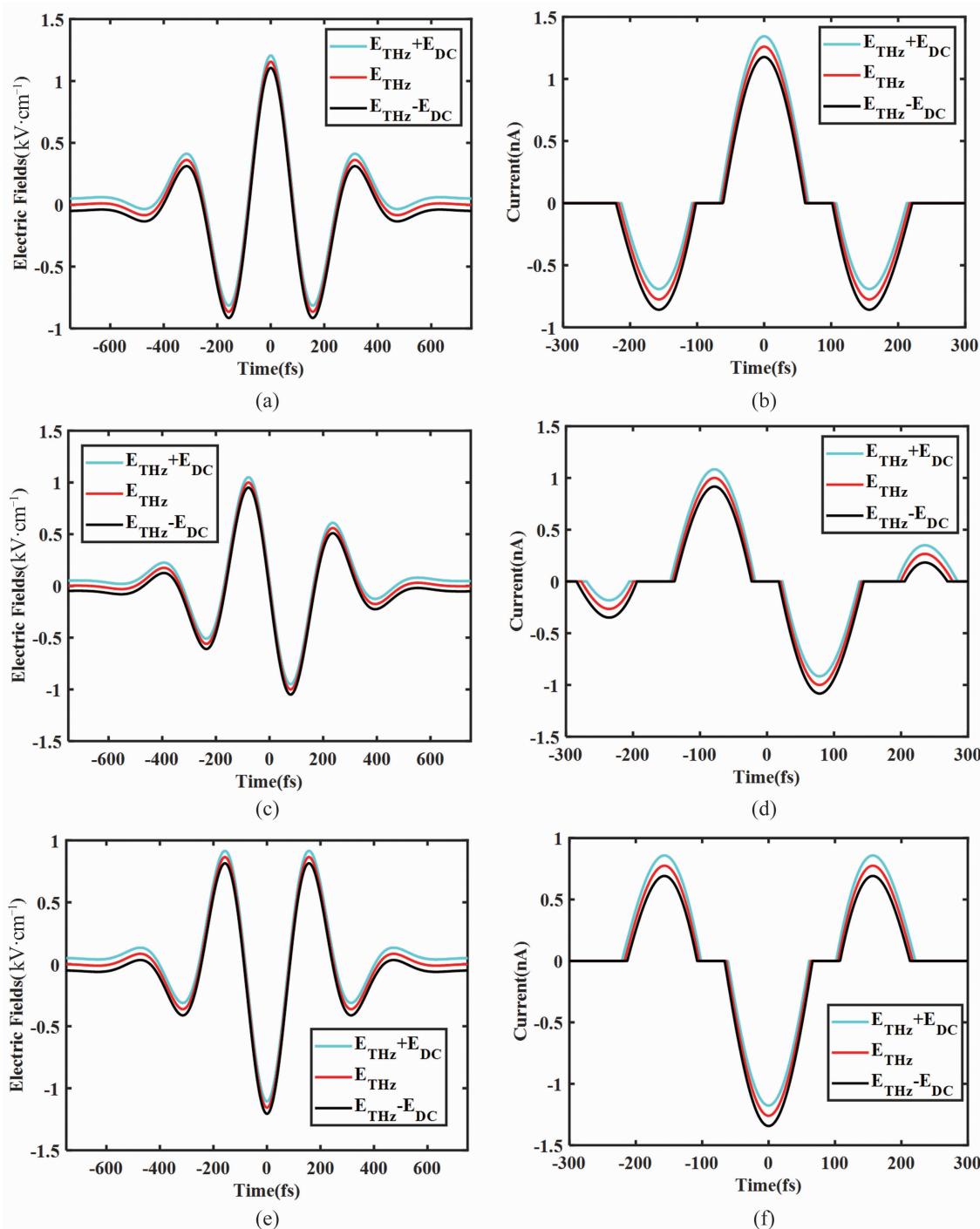


图 3 相位不同的太赫兹脉冲诱导产生的隧穿电流: (a)、(c)、(e) 分别是相位为 0°、90°、180° 对应的太赫兹与偏置电场波形, (b)、(d)、(f) 为对应产生的隧穿电流

常是直接聚焦耦合到 STM 内的隧穿结中^[22-23], 如图 1 所示。与近红外飞秒激光脉冲相比, 太赫兹脉冲的光子能量仅为近红外光的千分之一量级。这使得太赫兹波引起的热膨胀和热电流可以忽略不计, 从而获得比近红外光更加稳定的测量环境, 同时也保证样品的原有特性不被

破坏。

通过上述公式, 结合数值积分方法, 代入样品、太赫兹脉冲和偏置电场等参数, 即可得到基于 Simmons 模型的太赫兹电场和偏置电场诱导的隧穿电流大小, 从而可以定量分析各项参数对该电流的影响。

2 数值计算与分析

接下来采用数值计算分析不同参数下隧穿电流的大小与变化规律。固定针尖到样品的距离为1 nm，偏置电压取值为5 μV。采用的太赫兹脉冲时域波形为

$$E(t) = E_0 \exp(-t^2/T_0^2) \cos(2\pi ft + \phi_0) \quad (18)$$

式中， E_0 为太赫兹电场振幅； T_0 为脉冲宽度参数； f 为频率； ϕ_0 为初始相位。 T_0 与 f 共同决定了太赫兹脉冲频率和带宽。首先计算太赫兹脉冲对隧穿电流的影响。取太赫兹脉冲宽度 T_0 为 500 fs，中心频率 f 为 3 THz，电场幅值为 1 kV/cm。采用功函数为 3.8 eV 的高定向热解石墨烯作为样品。

根据上述方程，可计算偏置电场和太赫兹电场产生的隧穿电流。图 3(a)、图 3(c)、图 3(e) 所示为太赫兹脉冲取三种不同相位 (0°、90°、180°) 时分别耦合了偏置电场且每一种偏置电压加入正向、反向和无偏置电压三种情况的电场波形。图 3(b)、图 3(d)、图 3(f) 所示为对应的电场诱导产生的隧穿电流。可以看出，图 3(a) 和图 3(b) 中的隧穿电流相较于太赫兹脉冲电场，持续时间更短，但同时诱导产生的隧穿电流方向与太赫兹脉冲电场基本保持一致，即正向太赫兹脉冲电场持续时间内都诱导产生正向的隧穿电流，反向太赫兹脉冲电场诱导产生反向隧穿电流；而图 3(c) 和图 3(d) 中的隧穿电流也与太赫兹脉冲电场基本保持一致，并且正向偏置电场会加强正向隧穿电流，而负向偏置电场会加强负向偏置电流，即隧穿电流的极值与加入的太赫兹脉冲电场的极值是同步出现的。

从上述结果中可看出，隧穿电流的大小与加入的太赫兹脉冲电场强度强相关，即当太赫兹脉冲电场强度处于最大值的时候，其诱导产生的隧穿电流也会处于极值；当太赫兹脉冲电场强度较小时，不会产生隧穿电流。这是由于当太赫兹脉冲电场强度过小时，无法驱动电子穿过势垒而形成隧穿电流。 $\phi_0 = 0^\circ$ 与 $\phi_0 = 180^\circ$ 的太赫兹脉冲电场所诱导产生的隧穿电流是对

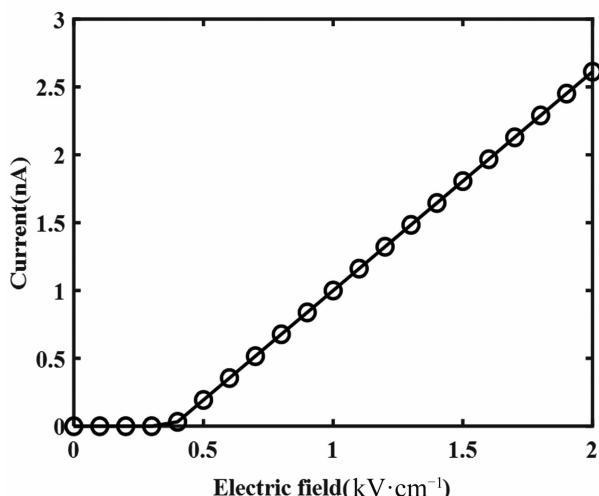


图 4 太赫兹脉冲电场大小与诱导产生的隧穿电流之间的关系

称的。这也进一步验证图 2 中考虑了虚势影响的势垒分布是对称的。图 3 中电流的时域变化曲线依赖电场的瞬态变化，但在实际测量中由于电子测量仪器带宽和响应时间的限制，实验测量值仅为上述计算的电流峰值。

改变照射到探针与样品之间的太赫兹强度，获得太赫兹脉冲电场幅值与隧穿电流峰值之间的关系，如图 4 所示。其中，横坐标是太赫兹脉冲电场的场强，纵坐标是隧穿电流峰值。可以看出，当太赫兹脉冲电场过小(临界值为 0.38 kV/cm)时，不足以诱导产生隧穿电流，这也同时验证了前面完整的太赫兹脉冲电场诱导产生的隧穿电流在其电场较小时不会产生隧穿电流；太赫兹电场大于临界值后，隧穿电流与太赫兹电场成线性关系，比例系数由势垒的具体形状决定。电场临界值与材料功函数有关，上述计算中样品功函数为 3.8 eV，故产生隧穿电流所需的电场阈值为 0.38 kV/cm(即由势垒宽度与增强因子的乘积确定)。样品不同时，功函数不同，临界值也有所不同。

接下来分析太赫兹脉冲的相位与隧穿电流值之间的关系。从 0° 到 360° 逐步改变太赫兹脉冲相位，计算隧穿电流大小，获得二者关系，如图 5 所示。其中，横坐标是太赫兹脉冲相位，纵坐标是太赫兹电场诱导产生的隧穿电流峰值大小。可以看出，太赫兹脉冲的相位与所

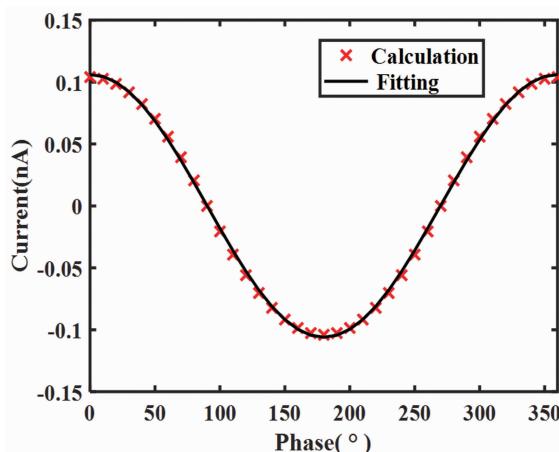


图 5 太赫兹脉冲相位与隧穿电流幅值之间的关系

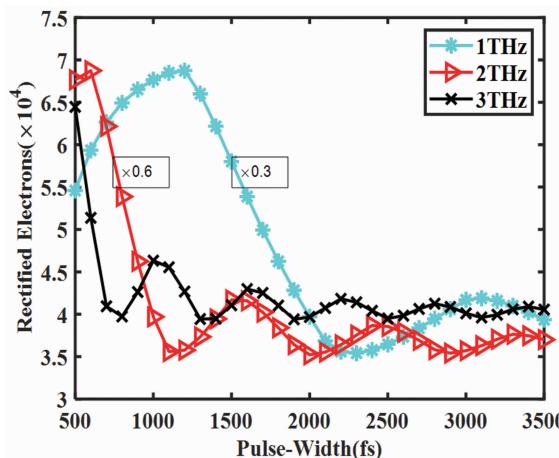


图 6 太赫兹脉冲脉宽与整流电子数目之间的关系

诱导产生的隧穿电流成余弦关系；在一个周期内，相位 $\phi_0=0^\circ$ 时隧穿电流的正向幅值达到最大，相位 $\phi_0=180^\circ$ 时隧穿电流的反向幅值达到最大。

最后，计算太赫兹脉冲的脉宽与整流电子数目之间的关系，即对隧穿电流进行时域积分，获得单个太赫兹脉冲激励产生的电子数目。该整流电子数目在实际测量中可通过对电流信号进行时域积分获得。取太赫兹脉冲中心频率 f 为 1 THz、2 THz、3 THz 三种情况，从 500 fs 至 3.5 ps 逐步增加太赫兹脉冲宽度，对每个太赫兹脉冲产生的隧穿电流进行积分，获得整流电子数目。计算结果如图 6 所示。其中，横坐标是太赫兹脉冲宽度，纵坐标是整流电子数目。可以看出，随着太赫兹脉冲宽度增大，整流电子数目快速降低，然后振荡下降并

趋于稳定，即随着脉宽的持续增加，整流电子会趋于一个稳定的数目；太赫兹脉冲频率越高，整流电子数目越少，即太赫兹脉冲含有的振荡越少，其激励产生的整流电子越多，因此用低频太赫兹脉冲产生的整流电子数目比高频太赫兹脉冲更多。

从以上内容可以看出，隧穿电流的变化与太赫兹电场的变化情况密切相关。但是隧穿电流的产生有一定的阈值。若直流偏置电场与耦合的太赫兹电场无法满足该阈值大小，则不会产生隧穿电流。隧穿电流大小随着太赫兹脉冲相位改变呈周期性变化。直流偏置电场诱导产生的隧穿电流正负（即电流流向）由耦合的直流偏置电场方向决定。

与传统的隧穿电流模型相比，Simmons 模型引入了虚势的影响，使得势垒更接近对称的抛物线型，同时应用一些计算技巧，使得在数学上获得隧穿电流的解变得更容易。当太赫兹脉冲照射到针尖与样品之间时，太赫兹电场耦合到偏置电场中，电场发生时域演化，使得隧穿电流随时间发生变化；利用数值计算可以获得不同时刻的电流特征。注意到该模型要求探针与样品均为金属，且中间的间隙为绝缘体，与实际使用 STM 的实验条件一致。因此，该模型被用来分析 THz-STM 实验测量结果。国内王天武、方广有团队利用 Simmons 模型对其 THz-STM 实验测量结果进行了分析^[24]，由太赫兹脉冲驱动的隧穿电流获得了 Au(111) 表面的亚纳米量级成像。日本 Yoshioka S 团队也利用 Simmons 模型对其 THz-STM 实验测量结果进行了分析^[20]，其实验结果与理论结果比较吻合。

3 结束语

利用超短太赫兹脉冲耦合 STM 技术能够对样品进行高分辨率的时空成像，从而为研究材料或器件表面的纳米-飞秒量级时空动力学过程和性能提供有力的工具。Simmons 模型能够较好地描述 THz-STM 系统中太赫兹电场和偏置电场诱导的隧穿电流，因此本文详细介绍

了Simmons模型，基于该模型结合数值计算讨论了太赫兹脉冲参数对电流的影响，分析了太赫兹脉冲相位、幅值、脉宽等参数对电流大小的影响。研究发现，隧穿电流是太赫兹相位的周期函数；太赫兹电场幅值高于由样品功函数确定的阈值后，隧穿电流是太赫兹电场的线性函数；增加太赫兹脉宽后，隧穿电流呈振荡性减小并趋于稳定。未来，可结合实验对本理论进行修正，深入讨论电子发生隧穿的超快微观过程和演化规律。本文结果对初步理解THz-STM实验系统的物理机制有较好帮助，并对开展相关实验工作具有一定的参考价值。

参考文献

- [1] Dhillon S S, Vitiello M S, Linfield E H, et al. The 2017 terahertz science and technology roadmap [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, **50**(4): 043001.
- [2] 张倬铖, 王月莹, 张晓秋艳, 等. 太赫兹散射式扫描近场光学显微镜中探针与样品互作用及其影响探究 [J]. *物理学报*, 2021, **70**(24): 248703.
- [3] 张泽亮, 齐鹏飞, 郭兰军, 等. 太赫兹超分辨率近场成像方法研究综述 [J]. *光学学报*, 2023, **43**(6): 0600001.
- [4] 谷建强, 安有文. 基于强场太赫兹脉冲的扫描隧道显微镜 [J]. *中国激光*, 2023, **50**(17): 1714002.
- [5] Binning G, Rohrer H, Gerber C H, et al. Surfaces studied by scanning tunneling microscopy [J]. *Physical Review Letters*, 1982, **49**(1): 57–61.
- [6] Muller M. Imaging surfaces at the space-time limit: new perspectives of time-resolved scanning tunneling microscopy for ultrafast surface science [J]. *Progress in Surface Science*, 2024, **99**(1): 100727.
- [7] Weiss S, Ogletree D F, Botkin D, et al. Ultrafast scanning probe microscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 1993, **63**: 2567–2569.
- [8] 冯龙呈, 杜琛, 杨圣新, 等. 太赫兹实时近场光谱成像研究 [J]. *物理学报*, 2022, **71**(16): 164201.
- [9] 李洪波, 徐静银, 魏文寅, 等. 高时空分辨太赫兹扫描隧道显微镜近场成像发展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2023, **60**(18): 1811001.
- [10] 代明聪, 才家华, 熊虹婷, 等. 太赫兹近场显微技术研究进展 [J]. *量子电子学报*, 2023, **40**(2): 193–216.
- [11] Cocker T L, Peller D, Yu P, et al. Tracking the ultrafast motion of a single molecule by femtosecond orbital imaging [J]. *Nature*, 2016, **539**(7628): 263–267.
- [12] Peller D, Kastner L Z, Buchner T, et al. Sub-cycle atomic-scale forces coherently control a single-molecule switch [J]. *Nature*, 2020, **585**(7823): 58–62.
- [13] Simmons J G. Electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film [J]. *Journal of Applied Physics*, 1963, **34**(9): 2581–2590.
- [14] Simmons J G. Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film [J]. *Journal of Applied Physics*, 1963, **34**(6): 1793–1803.
- [15] Binning G, Rohrer H, Gerber C, et al. Surface studies by scanning tunneling microscopy [J]. *Physical Review Letters*, 1982, **49**(1): 49–57.
- [16] Cocker T L, Jelic V, Hillenbrand R, et al. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy [J]. *Nature Photonics*, 2021, **15**: 558–569.
- [17] Hasegawa Y, Avouris P. Direct observation of standing wave formation at surface steps using scanning tunneling spectroscopy [J]. *Physical Review Letters*, 1993, **71**(7): 1071–1074.
- [18] Crommie M F, Lutz C P, Eigler D M. Imaging standing waves in a two-dimensional electron gas [J]. *Nature*, 1993, **363**(6429): 524–527.
- [19] Coleman R V, Giambattista B, Hansma P K, et al. Scanning tunnelling microscopy of charge-density waves in transition metal chalcogenides [J]. *Advances in Physics*, 1988, **37**(6): 559–644.
- [20] Yoshioka S, Katayama I, Minamil Y, et al. Real-space coherent manipulation of electrons in a single

- tunnel junction by single-cycle terahertz electric fields [J]. *Nature Photonics*, 2016, **10**: 762–765.
- [21] Hamers R J, Cahill D G. Ultrafast time resolution in scanned probe microscopies [J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **57**(19): 2031–2033.
- [22] Rost M J, Crama L, Schakel P, et al. Scanning probe microscopes go video rate and beyond [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2005, **76**(5): 053710.
- [23] Cocker T L, Jelic V, Gupta M, et al. An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope [J]. *Nature Photonics*, 2013, **7**: 620–625.
- [24] Li H, Wang T, Wei W, et al. Real-Space sampling of terahertz waveforms under scanning tunneling microscope [J]. *ACS Photonics*, 2024, **11**: 1428–1437.