

ホモダイン検波を用いた表面第二高調波の測定法

陳 軍****・町田 進**・山本 喜久****

*東京工芸大学工学部 〒243-0297 厚木市飯山 1583

**科学技術振興事業団国際共同研究量子もつれプロジェクト 〒180-0012 武蔵野市緑 3-9-11 NTT 武蔵野 R & D センター内

***科学技術振興事業団国際共同研究量子もつれプロジェクト CA94305 米国スタンフォード, スタンフォード大学ギンストン研究所内

****元科学技術振興事業団山本量子ゆらぎプロジェクト 〒180-0012 武蔵野市緑 3-9-11 NTT 武蔵野 R & D センター内

Homodyne Detection of Surface Second-Harmonic Generation

Jun CHEN****, Susumu MACHIDA** and Yoshihisa YAMAMOTO****

*Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Polytechnics, 1583, Iiyama, Atsugi, Kanagawa 243-0297

**Quantum Entanglement Project, JST, NTT Musashino R & D Center, 3-9-11, Midori-cho, Musashino, Tokyo 180-0012

***Quantum Entanglement Project, JST, Edward L. Ginzton Laboratory, Stanford University, Stanford, CA94305, U.S.A.

****ERATO Quantum Fluctuation Project, NTT Musashino R & D Center, 3-9-11, Midori-cho, Musashino, Tokyo 180-0012

A new method for simultaneous measurement of amplitude and phase in surface second-harmonic generation is presented. This method is based on the interference of the surface second-harmonic wave and a reference wave generated by a barium borate nonlinear optics crystal. Extremely high sensitivity of 3 aW (6 photons/s) and high precision have been achieved by use of a lock-in amplifier, in which an interference signal of fundamental waves is used as a reference signal. Experimental results for simultaneous measurement of the intensity and phase in surface second-harmonic waves generated from native-oxidized Si(111) surfaces are presented.

1. はじめに

光第二高調波発生 (second-harmonic generation; SHG) は表面や界面の原子配列の対称性や電子状態を調べる有力な手段として注目されている¹⁻⁴⁾。SHG はシリコンのような反転対称性を有する物質の内部では許容されず、その反転対称性がくずれる表面や界面にのみ許容される。そのため、SHG は1原子層以下の感度で表面の構造や電子状態に敏感である。この方法は酸化シリコンや再構成されたシリコン表面の対称性や電子状態の測定に用いられてきた^{3,4)}。最近、波長可変チタン・サファイア (Ti:Sapphire) レーザーの目覚しい発展とあいまって、表面 SHG は新しい表面評価法としていっそう注目されるようになってきた。従来の表面 SHG の実験に用いられている Nd:YAG (neodymium-doped yttrium aluminum gar-

net) レーザーと比べ、チタン・サファイアレーザーは高い繰り返し周波数でフェムト秒領域の超短レーザーパルスを出力し、被検物体に熱的なダメージを与えないで効率よく第二高調波を発生させることができる。その上、超短パルス幅を利用した時間分解計測や、波長可変特性による表面状態の分光計測も可能となる。

表面 SHG の実験では、一般に、SHG の強度だけが光子数計数法で計測されるが、その位相情報は計測されていない。しかし、表面 SHG の位相は第二高調波共鳴による表面状態の検出や、表面の分子配向方向の測定などに有用である。いままで、空気の分散を利用したいくつかの表面 SHG 位相計測の実験が試みられた。このような表面 SHG 位相計測の最初の実験として、Chang ら⁵⁾ は真空チャンバー内に置かれた GaAs 結晶からの SHG 波と KDP 結晶からの参照 SHG 波との干渉信号から GaAs 結晶の非線形分極と基本波との位相差、すなわち非線形感受率の位

E-mail: chen@photo.t.kougei.ac.jp

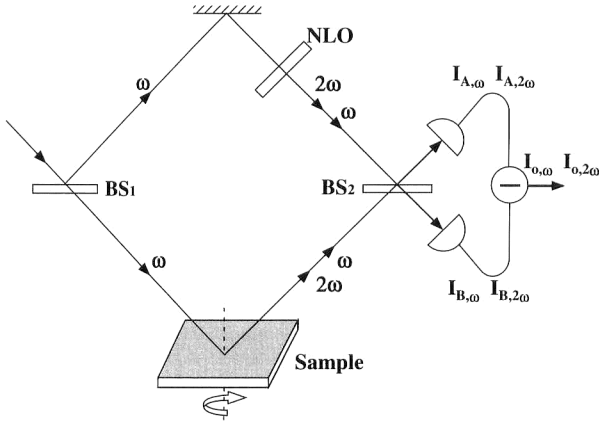


Fig.1 Schematic diagram showing the principle of balanced homodyne detection of surface second-harmonic generation.

相を計測した。その際、彼らは真空チャンバーの気圧を変えて、被検第二高調波に対する参照第二高調波の相対位相を変化させた。Kemnitz ら⁶⁾は水晶板からの第二高調波を参照波として用いて、溶液表面のフェノール分子の配向方向を測定した。表面の計測だけでなく、光第二高調波の位相計測は物質内部の秩序をも明らかにできる。たとえば、Frohlich ら⁷⁾は反強磁性体結晶磁場誘起 SHG の位相、すなわち非線形感受率 $\chi^{(2)}$ の空間的な位相分布を測定することで、 Cr_2O_3 や YMnO_3 などの反強磁性体結晶のドメイン分布を可視化した。

しかし、このような空気分散を利用した位相計測法では、1つの位相データを得るため、ポンプで真空チャンバーの気圧を変化させるか、あるいは参照 SHG を発生する水晶板を数十ミリメートル移動する必要がある、振幅と位相を同時に検出できないことに加え、背景光に対して極端に敏感で“その場”観察への応用が困難であった。一方、光ホモダイン検波法は微弱光の検出に有効である^{8,9)}。筆者らはホモダイン検波法に基本波と SHG 波の同期検出というユニークな手法を採用して、表面 SHG 波の振幅と位相の高感度・同時検出を実現した^{10,11)}。ここで、バランスドホモダイン検波法を用いた表面第二高調波検出法を述べ、さらに、この方法によるシリコン表面からの SHG の振幅と位相の同時検出の実験結果を述べる。

2. 表面 SHG のホモダイン検出の原理

シリコンのような中心対称性が存在する媒質内では、電気双極子近似の範囲で第二高調波の発生が禁制であるのに対して、媒質の表面（または他の媒質との界面）では対称性が必然的に破れるため、許容される。そのため、表面 SHG は表面や界面に対して非常に敏感である。周波数 ω

のレーザー光を反転対称性のある媒質に入射したとき、入射光電場 $E(\omega)$ に対する表面の非線形応答は媒質表面の直上に置かれた双極子シート $P^{(2)}(2\omega) = \chi^{(2)}E(\omega)E(\omega)$ で表すことができる^{1,2)}。ただし、 $\chi^{(2)}$ は媒質の非線形感受率である。この分極は入射光の2倍の周波数で電磁波を放射する。表面各点で発生する第二高調波は入射波に対して一定の位相関係をもち、合成された第二高調波は再びビームとなって、反射光方向に射出する。 $\chi^{(2)}$ の各成分が表面の状態（原子配列や電子状態）に強く依存するので、第二高調波の強度、角度依存性や偏光依存性などを測定することで、表面状態の高感度検出が可能となる。

Fig. 1 に筆者らの用いた表面第二高調波の検出光学系の概念図を示す。レーザーからの光パルスをビームスプリッター BS_1 によって2つに分岐し、一方は測定対象の試料表面に入射し、信号波の表面 SHG を発生させる。もう一方は非線形光学結晶 NLO に照射し、参照波の SHG を発生させる。被検試料表面で反射する基本波と発生した表面 SHG はそれぞれ、非線形光学結晶 NLO を透過した基本波および発生した第二高調波とビームスプリッター BS_2 で合波し、干渉させる。信号光側において、測定対象の試料を面内で回転させると、試料で反射される基本波の振幅と位相は変わらないが、発生した第二高調波の振幅と位相は回転角によって変わる。そのため、第二高調波の振幅は第二高調波の干渉信号から測定できる。しかし、干渉信号の位相は干渉計の不安定性（振動や空気ゆらぎなど）に敏感で、第二高調波の位相はそのままでは正確に測定できない。そこで、次章で説明する方法で信号光側に外部から位相変調を導入し、直流の干渉信号を交流信号に変換する。この変調によって発生する交流の干渉信号を光検波する。信号光側および局発光側の基本波と第二高調波をそれぞれ、 $E_{\omega,s}$, $E_{\omega,l}$ と $E_{2\omega,s}$, $E_{2\omega,l}$ とし、ビームスプリッター BS_2 の分岐比を50%とし、信号光は局発光に比べ十分に小さいものとし、光検波における係数を K とすると、ビームスプリッターの2つの出力ポート A と B において検波した基本波および第二高調波の干渉信号は次式のように与えられる。

$$I_{A,\omega}(t) = K \left[\frac{1}{2}(E_{\omega,l})^2 + E_{\omega,s}E_{\omega,l}\cos\{2\pi f_1 t + \phi(t)\} \right] \quad (1)$$

$$I_{B,\omega}(t) = K \left[\frac{1}{2}(E_{\omega,l})^2 - E_{\omega,s}E_{\omega,l}\cos\{2\pi f_1 t + \phi(t)\} \right] \quad (2)$$

$$I_{A,2\omega}(\theta, t) = K \left[\frac{1}{2}(E_{2\omega,l})^2 + E_{2\omega,s}E_{2\omega,l}\cos\{2\pi(2f_1)t + 2\phi(t) + \Phi(\theta)\} \right] \quad (3)$$

$$I_{B,2\omega}(\theta, t) = K \left[\frac{1}{2} (E_{2\omega,L})^2 - E_{2\omega,S} E_{2\omega,L} \cos\{2\pi(2f_1)t + 2\phi(t) + \Phi(\theta)\} \right] \quad (4)$$

ここで、 f_1 は外部から導入された位相変調による干渉信号の周波数で、 $\phi(t)$ は干渉計の不安定性などによる位相変動、 $\Phi(\theta)$ は測定対象の第二高調波の位相である。基本波どうしの干渉信号 $I_{A,\omega}(t)$ 、 $I_{B,\omega}(t)$ および第二高調波の干渉信号 $I_{A,2\omega}(\theta, t)$ 、 $I_{B,2\omega}(\theta, t)$ を量子効率 100% の光検波器で検波して、それぞれの検波信号を差動合成すると、次のような出力信号が得られる。

$$I_{0,\omega}(t) = I_{A,\omega}(t) - I_{B,\omega}(t) = K 2 E_{\omega,S} E_{\omega,L} \cos\{2\pi f_1 t + \phi(t)\} \quad (5)$$

$$I_{0,2\omega}(\theta, t) = I_{A,2\omega}(\theta, t) - I_{B,2\omega}(\theta, t) = K 2 E_{2\omega,S} E_{2\omega,L} \cos\{2\pi(2f_1)t + 2\phi(t) + \Phi(\theta)\} \quad (6)$$

式(5) および (6) から、基本波の干渉信号と第二高調波の干渉信号はそれぞれ周波数 f_1 および $2f_1$ の正弦信号であり、その振幅は信号光と局発光の振幅の積、すなわち、電力の積の平方根に比例し、干渉計の不安定性の影響を受けない。一方、干渉計の不安定性による位相変動 $\phi(t)$ は基本波と第二高調波の双方に影響を与えていることがわかる。したがって、式(5) の基本波干渉信号を参照信号として式(6) の第二高調波の干渉信号をロックインアンプで同期検出すると、干渉計の不安定性の影響がさらに除去され、第二高調波の振幅と位相が同時に高精度で検出できるようになる。

3. 光ホモダイン検出法を用いた表面 SHG の検出系の構成

Fig. 2 に筆者らの用いた光ホモダイン検出法を用いた表面 SHG の検出系の基本的な構成を示す。光源にはアルゴンレーザー励起・モード同期チタン・サファイアレーザー (Coherent Mira 900) を用いた。レーザーは共振波長 800 nm、繰り返し周波数 76 MHz でパルス幅約 120 fs の直線偏光の光パルス列を出力する。したがって、SHG 波は波長 400 nm で、同じ繰り返し周波数の光パルスになる。レーザーからの光パルスは偏光ビームスプリッター (PBS) によって信号光側と局発光側に分岐する。偏光ビームスプリッターの前に配置した半波長板 HWP₁ を回転させることによって、信号光側と局発光側への分岐比を調整した。信号光側では、半波長板 HWP₂ を配置し、試料に入射する光パルスの偏光方向を必要に応じて変えられるようにした。励起光は焦点距離 50 mm のレンズ L₁ で収束し、角度 45 度で試料を照射して、表面 SHG を発生さ

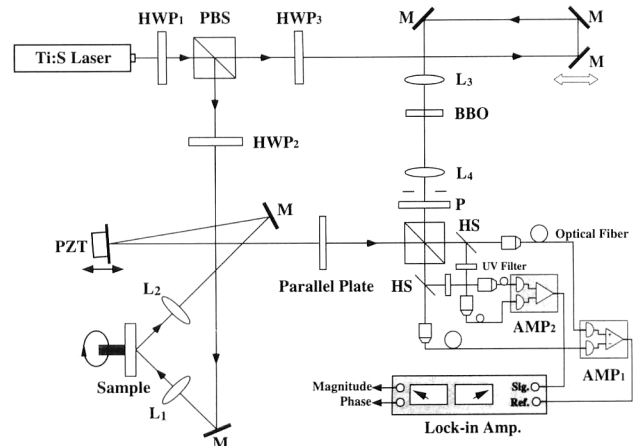


Fig. 2 Schematic diagram of the optical balanced homodyne detection system used for simultaneous measurement of the intensity and phase in surface SHG. HWP, half wave plate; PBS, polarizing beam splitter; L, Lens; PZT, piezoelectric transducer; HS, harmonic separator.

せる。このときのスポットサイズ径は約 20 μm である。試料表面で反射された基本波と試料表面で発生した SHG 波をレンズ L₂ によってコリメートして、 piezo素子 (PZT) に取り付けられた鏡で反射させて出力側の無偏光ビームスプリッターへ導く。この PZT ミラーは光路長を変調するために用いる。

一方、局発光側では、精密ステージに取り付けられたコーナーミラーを用いて、局発光の光路長を信号光の光路長と等しくなるように調節した。局発光側の第二高調波を発生させるため、第 1 種の位相整合非線形光学結晶である BBO 結晶 (位相整合角度 $\theta=28.9^\circ$) を用いた。ここでは、SHG 波を効率よく発生させるため、励起光を焦点距離 50 mm のレンズ L₃ で収束させて BBO 結晶に照射させた。ここでも BBO 結晶を透過した基本波と発生した SHG 波はレンズ L₄ でコリメートする。波面収差の影響を低減するため、焦点距離 100 mm のレンズで SHG 波を拡大し、絞りで平面波に近い中心部分だけ切り出した。また、ウォークオフによる波面収差の影響を低減するために、厚さ 0.4 mm の BBO 結晶を用いた。半波長板 HWP₃ による偏光方向の回転と BBO 結晶の方位を変えることで、p 偏光あるいは s 偏光方向をもつ局発光を発生させることができる。このように発生させた SHG 波の局発光はさらに偏光板 P を用いて不要な偏光成分を除去した。信号光の表面 SHG 波は、局発光と同じ偏光方向の成分のみ局発光と干渉するため、局発光の偏光方向を設定することで表面 SHG 波の所望の偏光成分を検出することが可能となる。また、信号光側光路に厚さ 3 mm の平行平板 (BK7) を挿入し、信号光側の分散を補償した。信

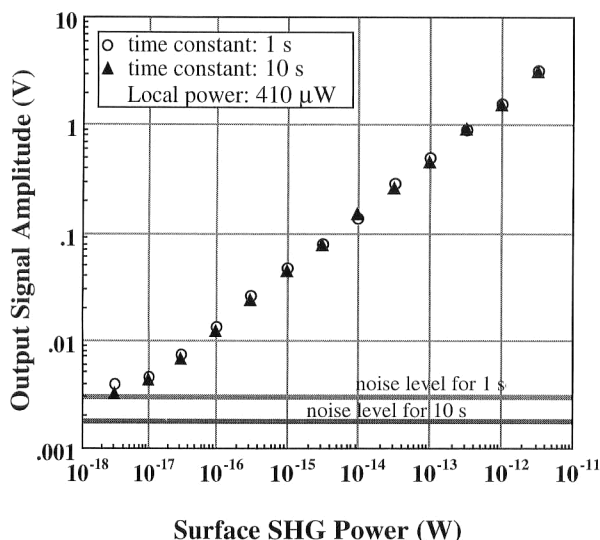


Fig. 3 Measured output signal amplitude as a function of the second-harmonic generation power.

号光と局発光のそれぞれの基本波と SHG 波の成分は、SHG 波に対して分岐比 50% の無偏光ビームスプリッター (NPBS) で合波させ、基本波成分と SHG 波成分の干渉信号を発生させる。無偏光ビームスプリッターの 2 つの出力信号はハーモニック・セパレーターで基本波と SHG 波の成分に分離する。ハーモニック・セパレーターで反射した SHG 波の干渉信号の基本波成分は UV 透過赤外カットフィルターを用いて完全に除去した。SHG 波成分は光カップラーを通して多モード光ファイバーに結合し、2 個のフォトダイオード (PD) (量子効率 50%) で検波する。その出力を差動合成して、低雑音増幅器 AMP₂ で増幅する。一方、HS を透過した基本波の干渉信号は同様の構成の 2 個の PD (量子効率 85%) で検波し、増幅器 AMP₁ で増幅する。このように、2 個の PD の出力を差動合成すると、バランスド・ホモダイン検波回路になる。このバランスド・ホモダイン検波では、2 個の PD の検波電流を等しくすると、信号光および局発光がもつ強度雑音は量子雑音 (ショット雑音限界) まで抑圧できる。ここでは、光ファイバーへの結合効率を調整し検波電流を調整して、局発光の強度雑音を約 35 dB 低減している。さらに、照明光などの背景光は光ファイバーにほとんど結合しないことと、局発光と干渉しないために、これらの影響をほぼ完全に除去できる。このことは、試料の加熱等による発光成分も除去でき、その場観察が可能になる。 piezoelectric 素子に関数発生器から周波数 ν の三角波の変調電圧を印加して、信号光側の光路を振幅 ΔL だけ変調する。このように、干渉計の一方の光路長を変調すると出力側ビームスプリッターへ入力する局発光と信号光の間に位相差が生じるために、

光路長の変調速度に応じた交流信号が発生する。したがって、増幅器 AMP₁ と AMP₂ からはそれぞれ周波数 $f_{1,2} = 2\nu\Delta L/\lambda_{1,2}$ で変化する交流信号が出力する。ただし、 $\lambda_{1,2}$ はそれぞれ基本波と SHG 波の波長であり、 $\lambda_2 = \lambda_1/2$ であるため、 $f_2 = 2f_1$ の関係になる。光路差を強制的に変調して発生する交流信号の振幅は、干渉縞の可視度に相当するために、干渉計の変動の影響を受けることなく非常に安定である。一方、干渉計の変動は、それぞれの交流信号の位相変化に変換されるために、このままでは位相測定はできない。しかし、基本波の位相と SHG 波の位相の間に強い相関関係があるため、ロックイン増幅器の参照信号に基本波の干渉信号を入力し、SHG 波の干渉信号をロックイン増幅器の“2f モード”で同期検出を行えば、SHG 波の振幅と位相を同時に測定することができる。以上のことから、バランスド・ホモダイン検波法の高感度特性に加えて、局発光の雑音を抑圧して同期検出を行うことによって、表面 SHG の振幅と位相の高感度・同時測定を可能にした。

4. 実験結果

4.1 検出感度の評価

このホモダイン検波法の検出感度を評価するため、n タイプ、Sb ドープの Si(111) 表面からの SHG 波を用いて測定を行った。測定には、p 偏光のレーザー光で励起して発生した表面 SHG 波の p 偏光成分を用い、試料を回転して SHG 波の出力信号が最大になるように調整した。平均電力 350 mW の励起光で約 3 pW の SHG 波を発生させている。局発光側の SHG 波の電力は約 410 μ W である。実験は、可変の ND フィルターを用いて表面 SHG 波の強度を変化させて行った。このとき、ロックイン増幅器の積分時間は 1 秒および 10 秒に設定した。実験結果を Fig. 3 に示す。横軸は SHG 信号光の強度、縦軸はロックイン増幅器の出力振幅を表す。この図は、出力振幅が表面 SHG 波の電力の平方根に比例していることを示しており、ホモダイン検波における出力振幅が信号電力と局発光電力の積の平方根に比例する (式(6)) ことで説明できる。信号光側に IR 透過フィルターを挿入し、SHG 信号のみをカットしたときの雑音レベルを Fig. 3 に示す。この結果、検出感度は 3 aW (3×10^{-18} : 6 フォトン/秒) になり、従来の光子数計測法に比べ、検出感度が一桁以上高くなっている。

4.2 シリコンからの第二高調波の振幅と位相の同時測定

この方法を用いて、Si(111) 表面からの SHG 波の振幅と位相の結晶方位依存性の同時測定を行った。実験結果を

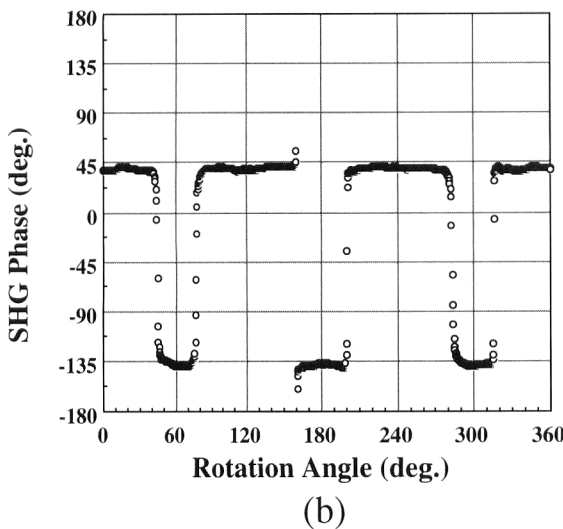
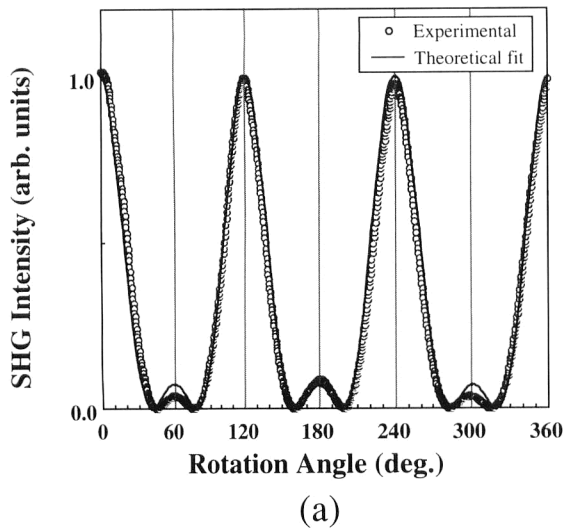


Fig. 4 Azimuthal rotation dependence of the intensity and phase in p-polarized SHG generated from a Si(111) surface.

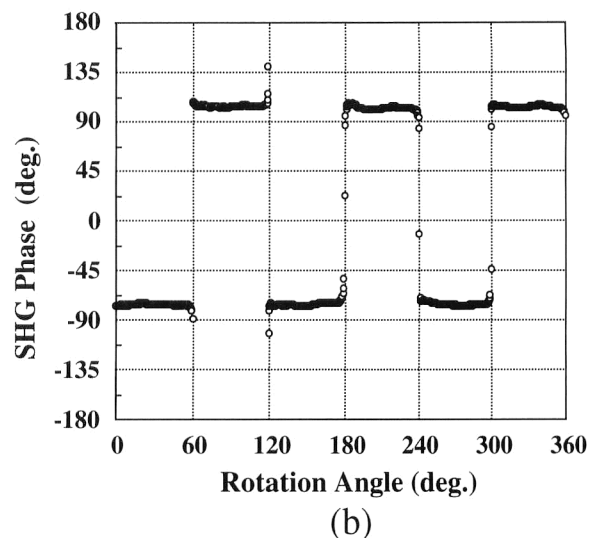
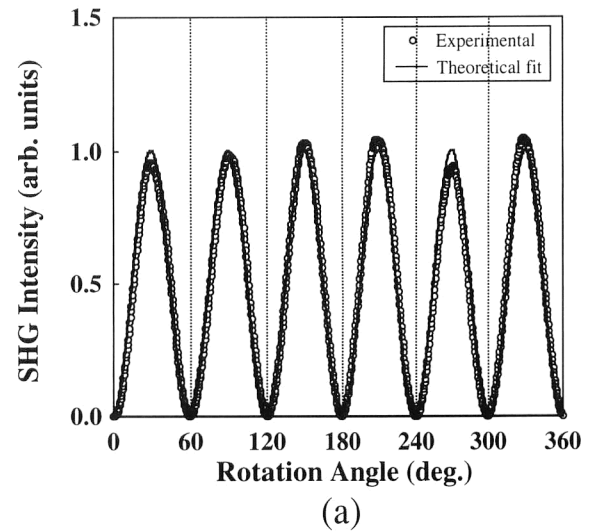


Fig. 5 Azimuthal rotation dependence of the intensity and phase in s-polarized SHG generated from a Si(111) surface.

述べる前に、ここでまず、シリコン表面からの第二高調波発生を簡単に述べる。Si(111) 表面に p 偏光のレーザー光を斜め方向から入射させて励起すると、発生する SHG 波の電界は試料の方位によって変化する。すなわち、発生した SHG 波の p 偏光成分には表面とバルクの等方性成分および異方性成分が寄与し、s 偏光成分には異方性成分だけが寄与する。したがって、SHG 波の p 偏光と s 偏光の電界はそれぞれ、

$$E_p(2\omega) = a + b\cos(3\theta) \quad (7)$$

$$E_s(2\omega) = c\sin(3\theta) \quad (8)$$

で与えられる^{2,3)}。ここで、 a は表面とバルクの等方性成分で、 b と c は異方性成分を表す定数で、 θ は結晶の $[2\bar{1}\bar{1}]$ 方向と励起光の入射面との角度である。SHG 波の強度は電界 $E(2\omega)$ の 2 乗であり、s 偏光成分の強度と位相は試

料の回転角の周期 60 度で変化する特性を示すが、p 偏光成分は等方性成分が寄与するため、強度は周期 120 度で変化する特性を示すことになる。

試料はパルスモーター駆動の回転ステージにマウントし、励起光の入射角を 45 度とした。発振波長 800 nm のチタン・サファイアレーザーの出力パルス光は入力側 PBS で分岐し、信号光側は平均電力 300 mW の p 偏光で試料に入射した。局発光側は約 55 mW で局発光 SHG 波の発生に用いた。 piezo 素子によって信号光の光路を振幅 16 μm 、周波数 150 Hz で変調して、光路長の位相変調を行った。これにより、基本波の干渉信号の周波数は 6 kHz で、SHG 波の干渉信号はその 2 倍の周波数 12 kHz の交流信号になる。パルスモーターによって試料を面内で 360 度回転させて、ロックイン増幅器からの振幅と位相の

出力をそれぞれデジタルマルチメーターを用いて同時に測定した。全測定時間は20秒であり、振幅と位相のデータをそれぞれ1000点収集することが可能なために、1点あたりの測定時間はわずか0.02秒になる。表面SHG波のp偏光成分の振幅と位相の結晶方位依存性をそれぞれFig. 4に示す。実線は理論値である。この結果、試料の60度回転角ごとに、SHG波の強度は大きいピークと小さいピークが交互に現れており、式(7)のシリコン表面とバルクの対称性を反映している。Fig. 4(b)に示すように、SHG波の強度の大きいピークと小さいピークとでは、その位相が180度シフトしており、式(1)の位相特性が測定できたことを示している。Fig. 5には表面SHG波のs偏光成分の振幅と位相の結晶方位依存性を示す。この場合、表面とバルクの異方性成分しか寄与しないため、試料を60度回転させるごとに、SHG波の強度はほぼ同じピークを示すが、隣り合うピーク間では、その位相が180度シフトしていることを示している。さらに、Fig. 4およびFig. 5の位相特性の測定より、位相反転の急峻さからSHG波電力のゼロ付近における振幅と位相の高感度測定がされていることがわかる。

5. ま と め

光ホモダイン検波法を用いた表面SHG波の検出法を開発し、表面SHG波の振幅と位相の高精度・同時検出を実現した。この方法では、光源にフェムト秒パルスレーザーを用い、局発光の発生に非線形光学結晶BBOを用いた。試料から発生する表面SHG波を局発光と干渉させて、ホモダイン検波することで高感度化が達成できた。さらに、基本波の干渉信号を基準信号として用いた同期検出を行うことで、SHG波の振幅と位相の高精度・同時検出を初めて実現した。検出感度は3 aW (6 フォトン/秒) に達し、従来の方法より一桁以上改善した。また、この方法では、表面SHG波のコヒーレント成分のみ検出するため、背景光に影響されず、試料加熱時などの表面ダイナミクスのリ

アルタイム観察に適している。また、本方法は表面SHG波の測定に限らず、光計測の他の分野にも応用が可能で、大きな波及効果が期待される。

文 献

- 1) Y. R. Shen: "Surface properties probed by second-harmonic and sum-frequency generation," *Nature*, **337** (1989) 519-525.
- 2) T. F. Heinz: "Second-order nonlinear optical effects at surfaces and interfaces," *Nonlinear Surface Electromagnetic Phenomena*, eds. H. -E. Ponath and G. I. Stegman (North-Holland, Amsterdam, 1991) pp. 353-416.
- 3) H. W. K. Tom, T. F. Heinz and Y. R. Shen: "Second-harmonic reflection from silicon surfaces and its relation to structural symmetry," *Phys. Rev. Lett.*, **51** (1983) 1983-1986.
- 4) T. F. Heinz, M. M. T. Loy and W. A. Thompson: "Study of Si(111) surfaces by optical second-harmonic generation: Reconstruction and surface phase transformation," *Phys. Rev. Lett.*, **54** (1985) 63-65.
- 5) R. K. Chang, J. Ducuing and N. Bloembergen: "Relative phase measurement between fundamental and second-harmonic light," *Phys. Rev. Lett.*, **15** (1965) 6-9.
- 6) K. Kemnitz, K. Bhattacharyya, J. M. Hicks, G. R. Pinto, K. B. Eisenthal and T. H. Heinz: "The phase of second-harmonic light generation at an interface and its relation to absolute molecular orientation," *Chem. Phys. Lett.*, **131** (1986) 285-290.
- 7) D. Frohlich, Th. Kiefer, St. Leute and Th. Lottermoser: "Nonlinear spectroscopy of antiferromagnetics," *Appl. Phys. B*, **68** (1999) 465-471.
- 8) S. Machida and Y. Yamamoto: "Quantum-limited operation of balanced mixer homodyne and heterodyne receivers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22** (1986) 617-624.
- 9) S. Jiang, S. Machida, Y. Takiguchi, H. Cao and Y. Yamamoto: "Wide band AC balanced homodyne detection of weak coherent pulses," *Opt. Commun.*, **145** (1998) 91-94.
- 10) J. Chen, S. Machida and Y. Yamamoto: "Simultaneous measurement of amplitude and phase in surface second-harmonic generation," *Opt. Lett.*, **23** (1998) 676-678.
- 11) J. Chen, S. Machida and Y. Yamamoto: "Balanced-homodyne detection of surface second-harmonic generation," *Proceedings of 18th ICO Conference on Optics for the Next Millennium*, Proc. SPIE, **3749** (1999) 332-333.