

積層膜からの和周波発生 (SFG)

1. 序論

固体表面上における SFG 活性膜の生成について、その成長を SFG 法によりその観測するとき、膜厚が増すにつれて信号強度が単調に増大するのではなく、周期的な振動がオーバーラップすることがわかる。しかも、p 偏光の反射率がゼロになるブルスター角で実験を行うと、p 偏光成分には周期的な変化が現れない。この振動現象は膜内部での多重反射に由来する干渉効果によるものであるが、可視光および赤外光に対する干渉効果（赤外光は吸収も受ける）に加えて膜内部で生成した SFG 光もまた干渉を示すため、信号は複雑な様相を呈する。しかし、この現象は、特定の分子種で SFG 活性な非等方的な膜を形成する際の成長速度をモニターしたり、膜の屈折率や吸収係数を求めたりする上でユニークで有用な手法を提供する。

現象を解析するための定式化を行う際に考慮しなければならない事項を挙げてみよう。(a) SFG 光は膜の内部（又はその表面）で生成する光であって外部からの入射ではないため、通常用いられる光干渉の表式がそのままの形では適用することはできない。(b) 波長によって屈折率と屈折角が異なるために、膜の内部での SFG 光、可視光、赤外光の進行方向が違ふ。また、ある 1 点で生じる SFG 分極に寄与する可視光の電場と赤外光の電場は膜に入射する場所が違っている。さらに、(c) 生成した SFG 光の進行方向は可視光、赤外光の進行方向と違っているため、膜内の進行に連れて SFG 光の電場が強まる効果も慎重に考えなければならない。

本稿では、SFG 活性な膜があるときの SFG 光について、(a) 媒質 1 との界面の媒質側で発生する SFG 光、(b) 媒質 1 との界面の膜側で発生する SFG 光、(c) 媒質 2 との界面の媒質側で発生する SFG 光、(d) 媒質 2 との界面の膜側で発生する SFG 光、(e) 膜内部で発生する SFG 光、のそれぞれについて、シグナル強度の挙動を定式化する。すなわち、2 つの励起光および SFG 光が示す干渉効果を明らかに出来るような形で、観測される SFG 電場の表式に膜の厚みを取り入れた形で定式化するのである。

定式のもとになる事項の多くは古典電磁気学および光学で既に知られているものであり、本稿で導く式は、T. Heinz の総説（要点を解説したものを別ファイルに示してある）、ひいては Born & Wolf の教科書や Bloembergen & Pershan の論文、Y. R. Shen の教科書に記されているものをしかるべく援用して得られるものである。また、実地の解析に役立てるために、屈折率と反射率・透過率の関係式など、ごく基本的な関係式を付録 A に記しておく。「波動はどのように式で表されるか」という点に関するおさらいを付録 B に記しておく。

2 種類の媒質がある場合、および 2 種類の媒質の間に膜が挟まっている場合の光の挙動を、付録 C に記した。膜の数が 2 つ以上になった場合の取扱いは、Born & Wolf の教科書に記してある行列法が有用である。別ファイル「Born & Wolf の取扱い」を参照されたい。

2. 準備

媒質 1（入射側）と媒質 2 の間に厚さ h_m の膜 (m) が挟まっていて、2 つの界面はともに平面でしかも互いに平行であるとする。座標軸等を次のように定義する。

原点：光線の入射点に取る。（広がりがある場合にはその中央）

z 軸：媒質 1 から媒質 2 に向けた法線の方向に取る。

x 軸：界面上でみた光の進行方向に取る。（ \mathbf{k} ベクトルの界面への射影に沿わせる）

次のように用語を定義する。

1/m 界面：媒質 1 と膜の界面。

m/2 界面：媒質 2 と膜の界面。

n_1, n_2, n_m ：媒質 1、媒質 2、膜 m の屈折率。

k_1, k_2, k_m ：媒質 1、媒質 2、膜 m の中での波動ベクトル。

$\theta_1, \theta_2, \theta_m$ ：媒質 1、媒質 2、膜 m の中を進む光の光路が法線に対してなす角。

t_{1m} ：媒質 1 側から膜側に透過する光の電場に対する透過係数。

t_{m1} ：膜側から媒質 1 側に透過する光の電場に対する透過係数。

r_{1m} ：媒質 1 側から来て 1/m 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

r_{m1} ：膜側から来て m/1 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

t_{m2} ：膜側から媒質 2 側に透過する光の電場に対する透過係数。

t_{2m} ：媒質 2 側から膜側に透過する光の電場に対する透過係数。

r_{m2} ：膜側から来て m/2 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

r_{2m} ：媒質 2 側から来て 1/m 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

上向き(-) 光：m/2 界面から m/1 界面に向かう光。反射光と同じく、-z 側に進む。

下向き(+) 光：m/1 界面から m/2 界面に向かう光。入射光と同じく、+z 側に進む。

(透過係数と反射係数の表式は、付録 A に記す。)

“反射光”には、1/m 界面で反射した光のほかに、膜の内部で多重反射してから 1/m 界面から出てくる上向き (-) 光が付け加わる。1/m 界面での境界条件にはこの多重反射光を（膜の両側について）加えたものに適用する。付録 C に記すように、“反射光”の電場振幅（入射光の振幅を 1 として）は下で与えられる。

$$\begin{aligned}
 \text{反射光の電場振幅} &= r_{1m} + t_{1m}t_{m1}r_{m2}\sum_{n=0}^{\infty}(r_{m2}r_{m1})^n \exp(i2\pi n_m 2nh_m \cos\theta_m/\lambda) \\
 &= r_{1m} + t_{1m}t_{m1}r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda) / [1 - r_{m2}r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)] \\
 &= \{r_{1m} + [-r_{1m}r_{m1} + t_{1m}t_{m1}]r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)\} / [1 - r_{m2}r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)] \\
 &= [r_{1m} + r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)] / [1 - r_{m2}r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)] \quad (2.1)
 \end{aligned}$$

絶対値の 2 乗が光の強度になるから、反射光には $2n_m h_m \cos\theta_m/\lambda$ の周期で干渉が現れる。

$$\begin{aligned}
 \text{反射光の強度} &= 1 - \frac{(1 - r_{1m}^2)(1 - r_{m2}^2)}{1 + |r_{1m}r_{m2}|^2 + (r_{1m}r_{m2} + r_{1m}^* r_{m2}^*) \cos 2\beta_m h_m + i(r_{1m}r_{m2} - r_{1m}^* r_{m2}^*) \sin 2\beta_m h_m} \\
 (\beta_m &\equiv 2\pi n_m \cos\theta_m/\lambda) \quad (2.2)
 \end{aligned}$$

r_{1m} と r_{m2} が実数なら、 $2n_m h_m \cos \theta_m / \lambda$ が整数の時に反射光は極大値を取るから、波数掃引をしたときの山の間隔は $\Delta v = 1/2 n_m h_m \cos \theta_m$ になる。しかし、膜に吸収があると r_{1m} が、媒質 2 が金属の時には r_{m2} が複素数になるので、分母の第 2 項も効いてくる。

“透過光”には、膜をすんなり通過した光に加えて、膜の内部で多重反射してから $m/2$ 界面から出てくる光が重なる。 $m/2$ 界面での境界条件にはこの多重反射光を加えたものに適用する。付録 C に記すように、“透過光”の電場振幅（入射光の振幅を 1、位相を $e^{-i\omega t}$ として）は下で与えられる。

$$\begin{aligned} & t_{1m} t_{m2} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)^n \exp(i2\pi n_m h_m \cos \theta_m / \lambda) \\ & = t_{1m} t_{m2} \exp(i2\pi n_m h_m \cos \theta_m / \lambda) / [1 - r_{m2} r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] \end{aligned} \quad (2.3)$$

$$\text{透過光の強度} = \frac{|t_{1m}|^2 |t_{m2}|^2}{1 + |r_{1m} r_{m2}|^2 + (r_{1m} r_{m2} + r_{1m}^* r_{m2}^*) \cos 2\beta_m h_m + i(r_{1m} r_{m2} - r_{1m}^* r_{m2}^*) \sin 2\beta_m h_m} \quad (2.4)$$

干渉による振れの向きが反射光と逆になり、一方の山頂の位置が他方では谷底になる。

膜の内部に取った点 (x, z) の光電場

原点における入射光の電場を $E_0 e^{-i\omega t}$ とするとき、別ファイル「膜内の電場」の (4.4式) に記したことであるが、点 (x, z) における上向き (-) 光の電場 E^- と 上向き (+) 光の電場 E^+ は (膜の数が 1 つの時に) 次のように表される。膜数が 2 個あるいは 3 個のときについては、ファイル「膜内の電場」の 4 節を参照されたい。

$$E^+ = E_0 e^{-i\omega t} \exp[ik_m (x \sin \theta_m + z \cos \theta_m)] \frac{t_{1m} a}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}} \quad (2.5)$$

$$E^- = E_0 e^{-i\omega t} \exp[ik_m (x \sin \theta_m - z \cos \theta_m)] \frac{t_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}} \quad (2.6)$$

3. SFG 光の光路

原点から媒質 1 中に出て行く SFG 光 (反射 SFG) 及び点 $(h \tan \theta_{m,SF}, h_m)$ から媒質 2 中に出て行く SFG 光 (透過 SFG) は、次のような特性を持つ。

(a) 点 $A_n(z)$; $x = -[2nh_m + z] \tan \theta_{m,SF}$, $z = z$, $n = 0, 1, 2, \dots$, $0 < z < h_m$ で生成した上向き (-) 光

原点に達するまでの位相の進み: $k_{m,SF} [2nh_m + z] / \cos \theta_{m,SF}$

$(h_m \tan \theta_{m,SF}, h_m)$ 点に達するまでの位相の進み: $k_{m,SF} [(2n + 1)h_m + z] / \cos \theta_{m,SF}$

(b) 点 $B_n(z)$; $x = -[2nh_m + (2h_m - z)] \tan \theta_{m,SF}$, $n = (-1), 0, 1, 2, \dots$, $0 < z < h_m$ で生成した上向き (+) 光

($n = -1$ は透過 SFG にのみ寄与する。)

原点に達するまでの位相の進み: $k_{m,SF} [2nh_m + (2h_m - z)] / \cos \theta_{m,SF}$

$(h_m \tan \theta_{m,SF}, h_m)$ 点に達するまでの位相の進み: $k_{m,SF} [2(n + 1)h_m - z] / \cos \theta_{m,SF}$

($B_{-1}(z)$ からのものは透過 SFG 光にのみ寄与する。)

(c) 点 $A_n'(0)$; $x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0$, ($1/m$ 界面の外側)

- 上向き (-) 光 : $n = 0$ が反射 SFG のゼロ次光となる。
- 上向き (+) 光 : $n = 0$ の $1/m$ 界面での反射光は反射 SFG のゼロ次光となる。
 $n = 0$ の $1/m$ 界面での透過光は透過 SFG に寄与する。
 $n = 1, 2, \dots$ の $1/m$ 界面での透過光は反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
- (d) 点 $A_n''(0^+)$; $x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0^+$, ($1/m$ 界面の内側)
- 上向き (-) 光 : $n = 0$ の $m/1$ 界面での透過光は反射 SFG の1次光となる。
 $n = 0$ の $m/1$ 界面での反射光は透過 SFG の1次光となる。
 $n = 1, 2, \dots$ の $m/1$ 界面での反射光は反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
- 上向き (+) 光 : $n = 0$ は透過 SFG のゼロ次光となる。
 $n = 1, 2, \dots$ は反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
- (e) 点 $B_n'(h_m^-)$; $x = -(2n + 1)h_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = h_m^-$, ($m/2$ 界面の内側)
- 上向き (-) 光 : $n = 0, 1, 2, \dots$ が反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
上向き (+) 光 : $n = -1$ の $m/2$ 界面での透過光は透過 SFG のゼロ次光となる。
 $n = 0, 1, 2, \dots$ の $m/2$ 界面での反射光は反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
- (f) 点 $B_n''(h_m^+)$; $x = -(2n + 1)h_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = h_m^+$, ($m/2$ 界面の外側)
- 上向き (-) 光 : $n = -1$ の $m/2$ 界面での反射光は透過 SFG のゼロ次光となる。
 $n = 0, 1, 2, \dots$ の $m/2$ 界面での透過光は反射 SFG と透過 SFG の両方に寄与する。
上向き (+) 光 : $n = -1$ が透過 SFG のゼロ次光となる。

上で記したことを図示すると下のようになる。

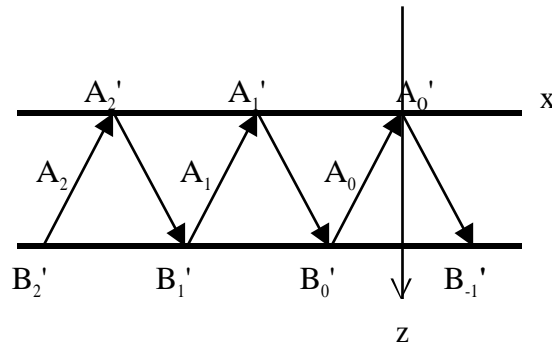


図3.1: 膜内部での光の進行

(膜内部)

$A_0, A_1, A_2, :$ ————— n 重反射 ————— $1/m$ 透過 ————— 反射 SFG
————— n 重反射 ————— $m/2$ 透過 ————— 透過 SFG
 $B_{-1} +$ ————— $m/2$ 透過 ————— 透過 SFG

$B_0, B_1, B_2, +$	—————	n 重反射	—————	$1/m$ 透過	—————	反射 SFG
	—————	n 重反射	—————	$m/2$ 透過	—————	透過 SFG
($1/m$ 界面 1 側)						
A_0'	-	—————	—————	—————	—————	反射 SFG
A_0'	+	—————	$1/m$ 反射	—————	$m/2$ 透過	反射 SFG
		—————	$1/m$ 透過	—————	—————	反射 SFG
$A_1', A_2', A_3', +$	—————	$1/m$ 透過	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	反射 SFG
		—————	—————	—————	—————	透過 SFG
($1/m$ 界面 m 側)						
A_0''	-	—————	$1/m$ 透過	—————	—————	反射 SFG
A_0''	-	—————	$1/m$ 反射	—————	$m/2$ 透過	透過 SFG
$A_1'', A_2'', A_3'', -$	—————	$1/m$ 反射	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	反射 SFG
		—————	—————	—————	—————	透過 SFG
A_0''	+	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	透過 SFG
$A_1'', A_2'', A_3'', +$	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過	—————	反射 SFG
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	透過 SFG
($m/2$ 界面 m 側)						
$B_0'', B_1'', B_2'', -$	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過	—————	反射 SFG
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	透過 SFG
B_{-1}''	+	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	透過 SFG
$B_0'', B_1'', B_2'', +$	—————	$m/2$ 反射	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	反射 SFG
		—————	—————	—————	—————	透過 SFG
($m/2$ 界面 2 側)						
B_{-1}'	-	—————	$m/2$ 反射	—————	—————	透過 SFG
$B_0', B_1', B_2', -$	—————	$m/2$ 透過	—————	多重反射	—————	$1/m$ 透過
	—————	$m/2$ 透過	—————	—————	—————	反射 SFG
		—————	—————	—————	—————	透過 SFG
B_{-1}''	+	—————	—————	—————	—————	反射 SFG

4. 光路上の SFG 分極

膜の両面と膜内部とで分極が生じると考えて、それぞれの点について励起光電場と分極を調べよう。

4.1. 励起電場

屈折率の値及び \mathbf{k} ベクトルの長さは波長に依存するから、赤外光と可視光では違った値を取る。(赤外光については吸収があるので、これらの量は複素数になる。) 波長の違いを示すために、第2の下付きとして ir, vis, SF を用いる。

なお、電場を表面固定座標系の成分で表すときに、反射係数及び透過係数は下のようになることを使って、座標成分を表している。

$$\begin{aligned}
r_{1m,x} &= -r_{m1,x} = r_{1m,p}, & r_{1m,y} &= -r_{m1,y} = r_{1m,s}, & r_{1m,z} &= -r_{m1,z} = -r_{1m,p} \\
r_{2m,x} &= -r_{m2,x} = r_{2m,p}, & r_{2m,y} &= -r_{m2,y} = r_{2m,s}, & r_{2m,z} &= -r_{m2,z} = -r_{2m,p} \\
t_{1m,x} &= (\cos\theta_m/\cos\theta_1)t_{1m,p}, & t_{1m,y} &= t_{1m,s}, & t_{1m,z} &= (\sin\theta_m/\sin\theta_1)t_{1m,p} \\
t_{m1,x} &= (\cos\theta_1/\cos\theta_m)t_{m1,p}, & t_{m1,y} &= t_{m1,s}, & t_{m1,z} &= (\sin\theta_1/\sin\theta_m)t_{m1,p} \\
t_{2m,x} &= (\cos\theta_m/\cos\theta_2)t_{2m,p}, & t_{2m,y} &= t_{2m,s}, & t_{2m,z} &= (\sin\theta_m/\sin\theta_2)t_{2m,p} \\
t_{m2,x} &= (\cos\theta_2/\cos\theta_m)t_{m2,p}, & t_{m2,y} &= t_{m2,s}, & t_{m2,z} &= (\sin\theta_2/\sin\theta_m)t_{m2,p} \\
t_{1m,\alpha}t_{m1,\alpha} &= 1 + r_{1m,\alpha}r_{m1,\alpha} = 1 - r_{1m,\alpha}^2, & t_{2m,\alpha}t_{m2,\alpha} &= 1 + r_{2m,\alpha}r_{m2,\alpha} = 1 - r_{2m,\alpha}^2, & (\alpha &= x, y, z)
\end{aligned}$$

4.1a. 1/2 系の界面外側 (1/2 界面の 1 側) の励起電場

ガラス表面や金属表面等の表面・界面の媒質 1 側にまばらに吸着している分子が感じる電場があてはまる。媒質 1 と媒質 2 だけが存在するときの界面の媒質 1 側における電場は、入射光と反射光のベクトル和になる。よって、

$$E_{vis\alpha}(0^-) = E_{vis\alpha}^0(1 + r_{12,vis\alpha}) \quad (4.1)$$

$$E_{ir,\beta}(0^-) = E_{ir,\beta}^0(1 + r_{12,ir,\beta}) \quad (4.2)$$

$$E_{vis\alpha}(0^-)E_{ir,\beta}(0^-) = E_{vis\alpha}^0E_{ir,\beta}^0(1 + r_{12,vis\alpha})(1 + r_{12,ir,\beta}) \quad (4.3)$$

但し、 $\alpha, \beta = x, y, z$ で、かつ、 $r_{12,x} = +r_{12,p}$ 、 $r_{12,y} = +r_{12,s}$ 、 $r_{12,z} = -r_{12,p}$ である。

4.1b. 1/2 系の界面内側 (1/2 界面の 2 側) の励起電場

通常の表面の媒質 2 側あるいは液体界面の内側にまばらに吸着した分子が感じる電場があてはまる。界面の内側に存在するのは透過光だけであるから、

$$E_{vis\alpha}(0^+) = E_{vis\alpha}^0 t_{12,vis\alpha} \quad (4.4)$$

$$E_{ir,\beta}(0^+) = E_{ir,\beta}^0 t_{12,ir,\beta} \quad (4.5)$$

$$E_{vis\alpha}(0^+)E_{ir,\beta}(0^+) = E_{vis\alpha}^0E_{ir,\beta}^0 t_{12,vis\alpha} t_{12,ir,\beta} \quad (4.6)$$

但し、 $t_{12,x} = +(\cos\theta_2/\cos\theta_1)t_{12,p}$ 、 $t_{12,y} = +t_{12,s}$ 、 $t_{12,z} = +(\sin\theta_2/\sin\theta_1)t_{12,p}$ である。

4.1c. 1/m/2 系の 1/m 界面の 1 側 ($x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = 0$) の励起電場

まばらに吸着した分子が感じる電場があてはまる。

$x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = 0$ での入射光と反射光の和に膜内部から出てくる光を加えたものであるから、

$$E_{vis\alpha}(0^-) = E_{vis\alpha}^0 \frac{(1 + r_{1m,vis\alpha})(1 + r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis}h_m}} \exp[-ik_{m,vis} 2nh_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,vis}] \quad (4.7)$$

$$E_{ir,\beta}(0^-) = E_{ir,\beta}^0 \frac{(1 + r_{1m,ir,\beta})(1 + r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir}h_m}} \exp[-ik_{m,ir} 2nh_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,ir}] \quad (4.8)$$

$$\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(0^-)E_{ir,\beta}(0^-) &= E_{vis\alpha}^0E_{ir,\beta}^0 \frac{(1 + r_{1m,vis\alpha})(1 + r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1 + r_{1m,ir,\beta})(1 + r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\
&\quad \times \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})] \quad (4.9)
\end{aligned}$$

4.1d. 1/m/2 系の 1/m 界面の m 側 ($x = -2nh_m \tan \theta_{mSF}$, $z = 0^+$) の励起電場

アイランド被覆又は 1 ML 被覆層 (屈折率 n) の表面直下の分子が感じる電場があてはまる。

膜内部の電場の式 (付録 C) の、上向き (-) 光と下向き (+) 光を加えたものになる。

十分厚い基板上的に薄膜層

$$E_{vis\alpha}(0^+) = E_{vis\alpha}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} (1 + r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \exp[-ik_{m,vis} 2nh_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,vis}] \quad (4.10)$$

$$E_{ir\beta}(0^+) = E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,ir\beta} (1 + r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \exp[-ik_{m,ir} 2nh_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,ir}] \quad (4.11)$$

$$E_{vis\alpha}(0^+) E_{ir\beta}(0^+) = E_{vis\alpha}^0 E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{1m,ir\beta} (1 + r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ \times \exp[i2nh_m \tan \theta_{mSF} (-k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis})] \quad (4.12)$$

4.1e. 1/m/2 系の m/2 界面の 2 側 ($x = -(2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF}$, $z = h^+$) の励起電場

分極のもとになるのは、透過してくる下向き (+) 光の電場である。

$$E_{vis\alpha}(h_m^+) = E_{vis\alpha}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{m2,vis\alpha} e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \exp[-ik_{m,vis} (2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,vis}] \quad (4.13)$$

$$E_{ir\beta}(h_m^+) = E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,ir\beta} t_{m2,ir\beta} e^{i\beta_{m,ir} h_m}}{1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \exp[-ik_{m,ir} (2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,ir}] \quad (4.14)$$

$$E_{vis\alpha}(h_m^+) E_{ir\beta}(h_m^+) = E_{vis\alpha}^0 E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{m2,vis\alpha} t_{1m,ir\beta} t_{m2,ir\beta} e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis}) h_m}}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ \times \exp[i(2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} (-k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis})] \quad (4.15)$$

4.1f. 1/m/2 系の m/2 界面の m 側 ($x = -(2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF}$, $z = h^-$) の励起電場

上向き (-) 光と下向き (+) 光の和になる。

$$E_{vis\alpha}(h_m^-) = E_{vis\alpha}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} (1 + r_{m2,vis\alpha}) e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \exp[-ik_{m,vis} (2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,vis}] \quad (4.16)$$

$$E_{ir\beta}(h_m^-) = E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,ir\beta} (1 + r_{m2,ir\beta}) e^{i\beta_{m,ir} h_m}}{1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \exp[-ik_{m,ir} (2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} \sin \theta_{m,ir}] \quad (4.17)$$

$$E_{vis\alpha}(h_m^-) E_{ir\beta}(h_m^-) = E_{vis\alpha}^0 E_{ir\beta}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{1m,ir\beta} (1 + r_{m2,vis\alpha})(1 + r_{m2,ir\beta}) e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis}) h_m}}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir\beta} r_{m2,ir\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ \times \exp[i(2n + 1)h_m \tan \theta_{mSF} (-k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis})] \quad (4.18)$$

4.1g. 1/m/2 系の膜内部 [$0 < z < h_m$] の励起電場

以下では、 $k_m[x \sin \theta + z \cos \theta]$ を取るときに h_m の入り方に注意を払う。

$[\mathbf{B}_{n=-1,0,1,2} : \mathbf{x} = -(2(n+1)\mathbf{h}_m - z)\tan\theta_{m,SF}] : \mathbf{E}^+$ sources

$$\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(z) &= E_{vis\alpha}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha}}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha}} \frac{e^{2i\beta_{m,vis} h_m}}{e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \exp[-i2(n+1)k_{m,vis} h_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,vis}] \\
&\times \{ \exp[izk_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis})] \\
&+ r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[-izk_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis})] \} \quad (4.19)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{ir,\beta}(z) &= E_{ir,\beta}^0 \frac{t_{1m,ir,\beta}}{1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta}} \frac{e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}{e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \exp[-i2(n+1)k_{m,ir} h_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,ir}] \\
&\times \{ \exp[izk_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir})] \\
&+ r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[-izk_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir})] \} \quad (4.20)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(z)E_{ir,\beta}(z) &= E_{vis\alpha}^0 E_{ir,\beta}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{1m,ir,\beta}}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha}) (1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta})} \frac{e^{2i\beta_{m,vis} h_m} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}{e^{2i\beta_{m,vis} h_m} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \exp[-i(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
&\times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,vis\alpha} r_{m2,ir,\beta} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} \\
&\times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \} \quad (4.21)
\end{aligned}$$

$[\mathbf{A}_{n=0,1,2} : \mathbf{x} = -(2nh_m + z)\tan\theta_{m,SF}] : \mathbf{E}^-$ sources

$$\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(z) &= E_{vis\alpha}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha}}{1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha}} \frac{e^{2i\beta_{m,vis} h_m}}{e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \exp[-i2nk_{m,vis} h_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,vis}] \\
&\times \{ \exp[izk_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis})] + r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[-izk_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis})] \} \quad (4.22)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{ir,\beta}(z) &= E_{ir,\beta}^0 \frac{t_{1m,ir,\beta}}{1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta}} \frac{e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}{e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \exp[-i2nk_{m,ir} h_m \tan\theta_{m,SF} \sin\theta_{m,ir}] \\
&\times \{ \exp[izk_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir})] + r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[-izk_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir})] \} \quad (4.23)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(z)E_{ir,\beta}(z) &= E_{vis\alpha}^0 E_{ir,\beta}^0 \frac{t_{1m,vis\alpha} t_{1m,ir,\beta}}{(1 + r_{1m,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha}) (1 + r_{1m,ir,\beta} r_{m2,ir,\beta})} \frac{e^{2i\beta_{m,vis} h_m} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}{e^{2i\beta_{m,vis} h_m} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
&\times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,ir,\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,vis\alpha} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+ r_{m2,vis\alpha} r_{m2,ir,\beta} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} \\
&\times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \}
\end{aligned}$$

(4.24)

4.2. SFG 分極

SFG 分極 P の座標成分 P_α ($\alpha = x, y, z$) は、感受率テンソル $\chi_{\alpha\beta\gamma}$ を使って下式で表される。但し、下付きは左から SFG 光、可視光、赤外光の順に取る。

$$P_\alpha = \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis},\beta} E_{\text{ir},\gamma} \quad (4.25)$$

4.2a. 1/m 界面の外側 ($x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = 0^-$) における SFG 分極

次に、SFG 光が発生する部位を区別して、膜からの SFG 分極を調べてみよう。表面に突き出た分子あるいはまばらに分布している分子は、表面の電場そのものによって分極する。よって、(4.9) 式により、点 ($x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = 0^-$) の分極は下で与えられる。

$$\begin{aligned} P_\alpha(0^-, n) &= \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis},\beta}^0 E_{\text{ir},\gamma}^0 \frac{(1+r_{1m,\text{vis},\beta})(1+r_{m2,\text{vis},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m})(1+r_{1m,\text{ir},\gamma})(1+r_{m2,\text{ir},\gamma} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m})}{(1+r_{1m,\text{vis},\beta} r_{m2,\text{vis},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m})(1+r_{1m,\text{ir},\gamma} r_{m2,\text{ir},\gamma} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m})} \\ &\quad \times \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,\text{ir}} \sin\theta_{m,\text{ir}} - k_{m,\text{vis}} \sin\theta_{m,\text{vis}})] \\ &= P_\alpha(0^-, n=0) \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,\text{ir}} \sin\theta_{m,\text{ir}} - k_{m,\text{vis}} \sin\theta_{m,\text{vis}})] \end{aligned} \quad (4.26a)$$

しかし、表面が薄膜として完成している場合には、分子が感じる電場は、膜を m' として下のように変形される。

$$\begin{aligned} E_{\text{vis}\alpha}(h_{m'}) E_{\text{ir},\beta}(h_{m'}) &= E_{\text{vis}\alpha}^0 E_{\text{ir},\beta}^0 \frac{t_{1m',\text{vis}\alpha} (1+r_{m'm,\text{vis}\alpha})(1+r_{m2,\text{vis}\alpha} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m})}{1+r_{1m',\text{vis}\alpha} r_{m'm,\text{vis}\alpha} + (r_{m'm,\text{vis}\alpha} + r_{1m',\text{vis}\alpha}) r_{m2,\text{vis}\alpha} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m}} \\ &\quad \times \frac{t_{1m',\text{ir},\beta} (1+r_{m'm,\text{ir},\beta})(1+r_{m2,\text{ir},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m})}{1+r_{1m',\text{ir},\beta} r_{m'm,\text{ir},\beta} + (r_{m'm,\text{ir},\beta} + r_{1m',\text{ir},\beta}) r_{m2,\text{ir},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m}} \\ &\quad \times \exp[-2inh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,\text{ir}} \sin\theta_{m,\text{ir}} + k_{m,\text{vis}} \sin\theta_{m,\text{vis}})] \end{aligned}$$

よって、

$$\begin{aligned} P_\alpha(0^-) &= \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis},\beta}^0 E_{\text{ir},\gamma}^0 \frac{t_{1m',\text{vis},\beta} (1+r_{m'm,\text{vis},\beta})(1+r_{m2,\text{vis},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m})}{1+r_{1m',\text{vis},\beta} r_{m'm,\text{vis},\beta} + (r_{m'm,\text{vis},\beta} + r_{1m',\text{vis},\beta}) r_{m2,\text{vis},\beta} e^{2i\beta_{m,\text{vis}} h_m}} \\ &\quad \times \frac{t_{1m',\text{ir},\gamma} (1+r_{m'm,\text{ir},\gamma})(1+r_{m2,\text{ir},\gamma} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m})}{1+r_{1m',\text{ir},\gamma} r_{m'm,\text{ir},\gamma} + (r_{m'm,\text{ir},\gamma} + r_{1m',\text{ir},\gamma}) r_{m2,\text{ir},\gamma} e^{2i\beta_{m,\text{ir}} h_m}} \\ &\quad \times \exp[-2inh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,\text{ir}} \sin\theta_{m,\text{ir}} + k_{m,\text{vis}} \sin\theta_{m,\text{vis}})] \\ &= P_\alpha(0^-, n=0) \exp[-2inh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,\text{ir}} \sin\theta_{m,\text{ir}} + k_{m,\text{vis}} \sin\theta_{m,\text{vis}})] \end{aligned} \quad (4.26b)$$

4.2b. 1/m 界面の内側 ($x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = 0^+$) における SFG 分極

膜の内部あるいは気液界面の液体側にある分子の分極は、(4.13) 式により下式が得られる。

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(0^{+}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis\beta} t_{1m,ir\gamma} (1 + r_{m2,vis\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}) (1 + r_{m2,ir\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis\beta} r_{m2,vis\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}) (1 + r_{1m,ir\gamma} r_{m2,ir\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})] \\
&= P_{\alpha}(0^{+}, n=0) \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})]
\end{aligned} \tag{4.27}$$

4.2c. $m/2$ 界面の外側 ($x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = h_m^{+}$) における SFG 分極
薄膜の裏側に突き出た分子の分極は、(4.15) 式により下式が得られる。

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(h_m^{+}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis\beta} t_{m2,vis\beta} t_{1m,ir\gamma} t_{m2,ir\gamma} e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis}) h_m}}{(1 + r_{1m,vis\beta} r_{m2,vis\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}) (1 + r_{1m,ir\gamma} r_{m2,ir\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \exp[i(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})] \\
&= P_{\alpha}(h_m^{+}, n=0) \exp[2inh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})]
\end{aligned} \tag{4.28a}$$

薄膜 m' が分極層になっている場合は、

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(h_m^{+}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis\beta} t_{mm',vis\beta} (1 + r_{m'2,vis\beta}) e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{(1 + r_{mm',vis\beta} r_{m'2,vis\beta}) + r_{1m,vis\beta} (r_{mm',vis\beta} + r_{m'2,vis\beta}) e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\
&\times \frac{t_{1m,ir\gamma} t_{mm',ir\gamma} (1 + r_{m'2,ir\gamma}) e^{i\beta_{m,ir} h_m}}{(1 + r_{mm',ir\gamma} r_{m'2,ir\gamma}) + r_{1m,ir\gamma} (r_{mm',ir\gamma} + r_{m'2,ir\gamma}) e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \exp[i(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})] \\
&= P_{\alpha}(h_m^{+}, n=0) \exp[2inh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})]
\end{aligned} \tag{4.28b}$$

$$E_{vis\alpha}(m') = E_{vis\alpha}^0 \frac{(1 + r_{m2,vis\alpha}) t_{1m',vis\alpha} t_{m'm,vis\alpha} e^{i\beta_{m',vis} h_{m'}}}{(1 + r_{m'm,vis\alpha} r_{m2,vis\alpha}) + r_{1m',vis\alpha} (r_{m'm,vis\alpha} + r_{m2,vis\alpha}) e^{2i\beta_{m',vis} h_{m'}}}$$

4.2d. $m/2$ 界面の内側 ($x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = h_m^{-}$) における SFG 分極
薄膜の裏側界面で膜内部にある分子の分極は、(4.18) 式により下式が得られる。

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(h_m^{-}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 e \frac{t_{1m,vis\beta} t_{1m,ir\gamma} (1 + r_{m2,vis\beta}) (1 + r_{m2,ir\gamma}) e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis}) h_m}}{(1 + r_{1m,vis\beta} r_{m2,vis\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}) (1 + r_{1m,ir\gamma} r_{m2,ir\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \exp[i(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})] \\
&= P_{\alpha}(h_m^{-}, n=0) \exp[i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (-k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis})]
\end{aligned} \tag{4.29}$$

4.2e. 膜バルク [$0 < z < h_m$, $\mathbf{A}_{n=0,1,2} : x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF} - z \tan\theta_{m,SF}$, $\mathbf{B}_{n=-1,0,1,2} : x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} + z \tan\theta_{m,SF}$] における SFG 分極

(4.21) 式により下式が得られる。

[\mathbf{B}_n]: E^{+} sources

$$\begin{aligned}
P_\alpha(z) = & \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1,m,vis,\beta} t_{1,m,ir,\gamma}}{(1+r_{1,m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})(1+r_{1,m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})} \\
& \times \exp[-2ih_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
& \times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} \\
& \times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \} \\
& \times \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
& = P_\alpha(z, n=0) \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \tag{4.30a}
\end{aligned}$$

(4.24) 式により下式が得られる。

$$\begin{aligned}
P_\alpha(z) = & \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1,m,vis,\beta} t_{1,m,ir,\gamma}}{(1+r_{1,m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1,m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
& \times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} \\
& \times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \} \\
& \times \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
& = P_\alpha(z, n=0) \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \tag{4.30b}
\end{aligned}$$

分極が無限に薄いシート状になっているとしたとして、それからどのような光が出てくるかを T. Heinz らが示している。以下では、彼らによって示された結果に基づいて考える。

5.1. L 係数、電場振幅

L 係数は、分極とそれから生成する光の電場振幅をつなげる係数である。

$$E_{SF\alpha} = \sum_{\beta} L_{\alpha\beta} P_{\beta}^{SF}$$

一般化された Snell の屈折式により、生成する SFG 光は上向き (-) 光と上向き (+) 光の両方になる。また、分極の位置によって L 係数の表式が違う。もともと導かれた式は、無限に薄い薄膜 m が分極し、そこから媒質 1 と媒質 2 に出てくる光を考えたものであって、s 偏光と p 偏光の電場振幅と分極の x、y、z 成分をつなげるものである。ここでは、これを拡張して考える。また、共通因子である $4\pi\omega_{SF}/c$ (屈折率の代わりに波数ベクトルを使うときは $4\pi\omega_{SF}^2/c^2$) を省略する。

L 係数の表記法: $L_{i,j,(s,p),\alpha}$: 分極シート m' が i 層と j 層に挟まれているときに、分極の α 成分 ($\alpha = x, y,$

z) とそれが作る光の s 偏光又は p 偏光成分(座標軸成分ではない)の間の係数。上向き (-) 光、上向き (+) 光の区別を上付き -, + で示す。

媒質 1 と積層膜 m の間の分極シート m' からの光生成に対しては、

$$L_{1/m,p,x}^- = \cos\theta_{m,SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \quad (5.1a)$$

$$L_{1/m,s,y}^- = 1 / (n_{1,SF}\cos\theta_{1,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.1b)$$

$$\begin{aligned} L_{1/m,p,z}^- &= (n_{m,SF}/n_{m',SF})\sin\theta_{m',SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \\ &= (n_{m,SF}/n_{m',SF})^2 \sin\theta_{m,SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \end{aligned} \quad (5.1c)$$

$$L_{1/m,p,x}^+ = \cos\theta_{1,SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \quad (5.2a)$$

$$L_{1/m,s,y}^+ = 1 / (n_{1,SF}\cos\theta_{1,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.2b)$$

$$\begin{aligned} L_{1/m,p,z}^+ &= -(n_{1,SF}/n_{m',SF})\sin\theta_{m',SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \\ &= -(n_{1,SF}/n_{m',SF})^2 \sin\theta_{1,SF} / (n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \end{aligned} \quad (5.2c)$$

媒質 2 と積層膜 m の間の分極シート m'' からの光生成に対しては、

$$L_{2/m,p,x}^- = \cos\theta_{2,SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \quad (5.3a)$$

$$L_{2/m,s,y}^- = 1 / (n_{2,SF}\cos\theta_{2,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.3b)$$

$$\begin{aligned} L_{2/m,p,z}^- &= (n_{2,SF}/n_{m'',SF})\sin\theta_{m'',SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \\ &= (n_{2,SF}/n_{m'',SF})^2 \sin\theta_{2,SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \end{aligned} \quad (5.3c)$$

$$L_{2/m,p,x}^+ = \cos\theta_{m,SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \quad (5.4a)$$

$$L_{2/m,s,y}^+ = 1 / (n_{2,SF}\cos\theta_{2,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.4b)$$

$$\begin{aligned} L_{2/m,p,z}^+ &= -(n_{m,SF}/n_{m'',SF})\sin\theta_{m'',SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \\ &= -(n_{m,SF}/n_{m'',SF})^2 \sin\theta_{m,SF} / (n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \end{aligned} \quad (5.4c)$$

積層膜内部の分極シートからの光生成に対しては、

$$L_{m/m,p,x}^- = L_{m/m,p,x}^+ = \cos\theta_{m,SF} / (2n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.5a)$$

$$L_{m/m,s,y}^- = L_{m/m,s,y}^+ = 1 / (2n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.5b)$$

$$L_{m/m,p,z}^- = -L_{m/m,p,z}^+ = \sin\theta_{m,SF} / (2n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF}) \quad (5.5c)$$

よって、各部位からの SFG 光の電場振幅は次のように表される。

P(0) に由来するもの： (P(0⁻) は媒質 1 側の電場による分極、P(0⁺) は膜側の電場による分極)

$$E_{1,p}(z=0) = L_{1/m,p,x}^- P_x(0) + L_{1/m,p,z}^- P_z(0) \quad (5.6a)$$

$$E_{1,s}(z=0) = L_{1/m,s,y}^- P_y(0) \quad (5.6b)$$

$$E_{m,p}^+(z=0) = L_{1/m,p,x}^+ P_x(0) + L_{1/m,p,z}^+ P_z(0) \quad (5.7a)$$

$$E_{m,s}^+(z=0) = L_{1/m,s,y}^+ P_y(0) \quad (5.7b)$$

$P(h_m)$ に由来するもの： ($P(h_m^+)$ は媒質 2 側の電場による分極、 $P(h_m^-)$ は膜側の電場による分極)

$$E_{m,p}^-(z = h_m) = L_{2/m,p,x}^- P_x(h_m) + L_{2/m,p,z}^- P_z(h_m) \quad (5.8a)$$

$$E_{m,s}^-(z = h_m) = L_{2/m,s,y}^- P_y(h_m) \quad (5.8b)$$

$$E_{2,p}^+(z = h_m) = L_{2/m,p,x}^+ P_x(h_m) + L_{2/m,p,z}^+ P_z(h_m) \quad (5.9a)$$

$$E_{2,s}^+(z = h_m) = L_{2/m,s,y}^+ P_y(h_m) \quad (5.9b)$$

$P(z)$ に由来するもの：

$$E_{m,p}^-(z) = L_{m/m,p,x}^- P_x(z) + L_{m/m,p,z}^- P_z(z) \quad (5.10a)$$

$$E_{m,s}^-(z) = L_{m/m,s,y}^- P_y(z) \quad (5.10b)$$

$$E_{m,p}^+(z) = L_{m/m,p,x}^+ P_x(z) + L_{m/m,p,z}^+ P_z(z) \quad (5.11a)$$

$$E_{m,s}^+(z) = L_{m/m,s,y}^+ P_y(z) \quad (5.11b)$$

5.2. 反射SFGの電場

媒質 1 側に出てくる SFG 光についてまとめてみよう。

5.2a. $1/m$ 界面の外側 ($x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0^-$) からの反射 SFG

$1/m$ 界面の外側 (媒質 1 側) の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には A_n' 点が寄与し、 $n = 0$ に対する $E_{1,p}^-(z = 0^-)$ 及び $E_{1,s}^-(z = 0^-)$ と、 $n = 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^+(z = 0^-)$ 及び $E_{m,s}^+(z = 0^-)$ が膜内に入って多重反射してから媒質 1 側に出てくるものが加わったものである。

発光点から点 $(0, 0)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $2nh_m/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}2nh_m/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、 $(1/\cos\theta = \cos\theta + \sin\theta \tan\theta)$ の関係も使い、反射率と透過率については下付きの SF を省略した上で、p 偏光または s 偏光の電場振幅を E_a 、分極の x、y、z 成分を P_a で表して、

$$\begin{aligned} E_{1t}^-(0^-) &= E_{1t}^-(z = 0^-, n = 0) + r_{1m} E_{1t}^+(z = 0^-, n = 0) \\ &\quad + t_{1m} t_{m1} r_{m2} \exp(ik_{m,SF} 2h_m / \cos\theta_{m,SF}) \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^{n-1} \exp(ik_{m,SF} 2nh_m / \cos\theta_{m,SF})^{n-1} E_{1t}^+(z = 0^-, n) \\ &= (L_{1/1,ta}^- + r_{1m} L_{1/1,ta}^+) P_a(0^-, n = 0) \\ &\quad + t_{1m} t_{m1} r_{m2} \exp(2ik_{m,SF} h_m / \cos\theta_{m,SF}) L_{1/1,ta}^+ P_a(0^-, n) \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1} \exp(ik_{m,SF} 2h_m / \cos\theta_{m,SF}))^{n-1} \\ &\quad (t = s \text{ or } p, \quad a = x, y, \text{ or } z) \end{aligned}$$

となる。(4.2) 節で示した分極の表式を見ると、 n に依存するのは位相部分だけである。(4.26a) 式を代入して位相部分を整理すると、

$$E_{1t}^-(0^-) = P_a(0^-, n = 0) \left[(L_{1/1,ta}^- + r_{1m} L_{1/1,ta}^+) + t_{m1} r_{m2} e^{2i\beta_m h_m} t_{1m} L_{1/1,ta}^+ \frac{1}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}} \right] \quad (5.12)$$

上では、 $k_{m,SF} \sin\theta_{m,SF} - k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} - k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} = 0$ の関係式を使った整理も行っている。

(5.1) 節を参照すると下式が得られる。

$$\begin{aligned}
L_{1/1,px}^- + r_{1m,p} L_{1/1,px}^+ &= L_{1/m,px}^-, & t_{1m,p} L_{1/1,px}^+ &= (\cos\theta_1/\cos\theta_m) L_{1/m,px}^- \\
L_{1/1,sy}^- + r_{1m,s} L_{1/1,sy}^+ &= L_{1/m,sy}^-, & t_{1m,s} L_{1/1,sy}^+ &= L_{1/m,sy}^- \\
L_{1/1,pz}^- + r_{1m,p} L_{1/1,pz}^+ &= L_{1/m,pz}^-, & t_{1m,p} L_{1/1,pz}^+ &= -(n_1/n_m) L_{1/m,pz}^- \quad (n_m' = n_1, \theta_m' = \theta_1 \text{ として})
\end{aligned}$$

さらに、

$$r_{1m,p} + t_{m1,p}(\cos\theta_1/\cos\theta_m) = 1, \quad r_{1m,s} + t_{m1,s} = 1, \quad r_{1m,p} - t_{m1,p}(n_m/n_1) = -1$$

であるから、表面に突き出た分子あるいはまばらに分布している分子からの SFG 電場は下式で表される。

$$\begin{aligned}
E_{1p}(0^-) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{(1+r_{1m,vis,\beta})(1+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \frac{(1+r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}) L_{1/m,px}^- \chi_{x\beta\gamma} + (1-r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}) L_{1/m,pz}^- \chi_{z\beta\gamma}}{(1+r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})} \quad (5.13a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{1s}(0^-) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{(1+r_{1m,vis,\beta})(1+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \frac{(1+r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})}{(1+r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})} L_{1/m,sy}^- \chi_{y\beta\gamma} \quad (5.13b)
\end{aligned}$$

表面が薄膜として完成しているときの薄膜（屈折率 m' ）を形成する分子からの SFG では、内部反射を考慮する必要があり、以下のようにして求められる。

薄膜に対する L 係数である (4.31)、(4.32) 式を使うと、真空中に出てくる SFG 光の振幅 E^- と膜 m 中に出てくる SFG 光の振幅 E^+ が求められる。このうちで膜内に出ていく光のうちで内部反射を経て真空中に戻ってくる成分は、 m/m' 界面での反射及び m' 薄膜の透過に際して m' 薄膜内での多重反射を受ける。以上のことを考えると、原点 ($n=0$) から反射方向に出てくるネットの SFG 光の電場に寄与するものは下のように整理される。（膜 m 内部での位相変化は省略して表す。）

$n=0$ からの $E(0)$ 光

$n=1$ からの $E^+(0, n=1)$ 光のうちで $m/2$ 界面で反射して原点に達し、薄膜 m' に入って多重反射後真空側に出てきた光： $r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n=1)$

$n=2$ からの $E^+(0, n=2)$ 光は、 $m/2$ 界面で 2 回反射したものが原点に達するが、その間に (a) m/m' 界面で 1 回反射するか、または (b) m' 薄膜に入って多重反射の後に m 層に戻ってくる必要がある。よって、

(a) $r_{m2} r_{mm} r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n=2)$,

(b) $r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] r_{m'1} t_{m'm} r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n=2)$ である。

これらを合わせると、 $[r_{m2} r_{mm} + r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] r_{m'1} t_{m'm}] r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n=2)$ となる。

$n=k$ からの $E^+(0, n=k)$ 光は $m/2$ 界面で k 回反射したものが原点に達するが、その間 $1/m$ 界面側で行う $(k-1)$ 回の「反射」の中身は、

(a) m/m' 界面での反射だけをするものが 1 組で $[(r_{m2} r_{mm})^k r_{m2} t_{mm} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n=k)$,

(b) 薄膜 m' に 1 回だけ入り込むものが $(k-1)$ 組で $[(k-1)(r_{m2} r_{mm})^{k-1} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] r_{m'1} t_{m'm} r_{m2} t_{mm}]$

× $[\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n = k)$ 、・・・薄膜 m' に h 回入り込むものが ${}_k C_h$ 組で ${}_k C_h (r_{m2} r_{mm'})^{k-h} \{ [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] r_{m'1} t_{m'm} \}^h r_{m2} t_{mm'} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} E^+(0, n = k)$ 。但し、 ${}_k C_h = k!/h!(k-h)!$ 。全部を合わせると（位相も取り入れて）下のようになる。

$$\begin{aligned} & \{ r_{m2} r_{mm'} + r_{m2} t_{mm'} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] r_{m'1} t_{m'm} \}^{k-1} \\ & \times \exp[2ih_m k_m (k-1)/\cos\theta_m] r_{m2} t_{mm'} [\sum_{0 \sim \infty} (r_{m'1} r_{m'm})^n] t_{m'1} \exp[2ih_m k_m / \cos\theta_m] E^+(0, n = k) \\ & = \left\{ \left[r_{m2} r_{mm'} + \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'm} r_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} \right] e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \right\}^{k-1} \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \\ & = \left[-\frac{r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \right]^{k-1} \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \end{aligned}$$

ここで、 $t_{mm'} t_{m'm} = 1 + r_{mm'} r_{m'm}$ 、 $r_{mm'} = -r_{m'm}$ を使って得られる下式を用いた。

$$\begin{aligned} r_{m2} r_{mm'} + \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'm} r_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} &= r_{m2} \frac{r_{mm'} + r_{mm'} r_{m'm} r_{1m'} + r_{m2} t_{mm'} t_{m'm} r_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} \\ &= \frac{r_{m2} (r_{mm'} + r_{m'1})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} = -\frac{r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} \end{aligned}$$

ネットの SFG 電場は下のようになる。

$$\begin{aligned} E^-_{1/m}(0^-) &= L^-_{1/m} P(0, n = 0) \\ &+ L^+_{1/m} \sum_{k=1} P(0, n = k) \left[-\frac{r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \right]^{k-1} \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ih_m k_m / \cos\theta_m} \end{aligned}$$

(4.26b) 式により、 $P_\alpha(0, n = k) = \exp[-2ikh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] P_\alpha(0, n = 0)$ である。また、 $k_{m,SF} \sin\theta_{m,SF} + k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir} = 0$ である。よって、

$$\begin{aligned} E^-_{1/m}(0^-) &= \left\{ L^-_{1/m} + L^+_{1/m} \frac{r_{m2} t_{mm'} t_{m'1}}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2i\beta_m h_m} \sum_{n=0} \left[-\frac{r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2i\beta_m h_m} \right]^n \right\} P(0, n = 0) \\ \sum_{n=0} \left[-\frac{r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2i\beta_m h_m} \right]^n &= \frac{1 + r_{1m'} r_{m'm}}{1 + r_{1m'} r_{m'm} + r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm}) e^{2i\beta_m h_m}} \end{aligned}$$

であるから、

$$E^-_{1/m}(0^-) = \frac{(1 + r_{1m'} r_{m'm}) L^-_{1/m} + [(r_{1m'} + r_{m'm}) L^-_{1/m} + t_{mm'} t_{m'1} L^+_{1/m}] r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}}{1 + r_{1m'} r_{m'm} + r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm}) e^{2i\beta_m h_m}} P(0, n = 0)$$

ここで、下の関係式を使う。

$$1 + r_{1m'} r_{m'm} = \frac{2n_{m'} \cos\theta_{m'} (n_1 \cos\theta_1 + n_m \cos\theta_m)}{(n_1 \cos\theta_1 + n_{m'} \cos\theta_{m'}) (n_{m'} \cos\theta_{m'} + n_m \cos\theta_m)}$$

$$1 + r_{1m',p} r_{m'm,p} = \frac{2n_{m'} \cos \theta_{m'} (n_1 \cos \theta_m + n_m \cos \theta_1)}{(n_1 \cos \theta_{m'} + n_{m'} \cos \theta_1)(n_{m'} \cos \theta_m + n_m \cos \theta_{m'})}$$

$$r_{1m',s} + r_{m'm,s} = \frac{2n_{m'} \cos \theta_{m'} (n_1 \cos \theta_1 - n_m \cos \theta_m)}{(n_1 \cos \theta_1 + n_{m'} \cos \theta_{m'})(n_{m'} \cos \theta_{m'} + n_m \cos \theta_m)}$$

$$r_{1m',p} r_{m'm,p} = \frac{2n_{m'} \cos \theta_{m'} (n_1 \cos \theta_m - n_m \cos \theta_1)}{(n_1 \cos \theta_{m'} + n_{m'} \cos \theta_1)(n_{m'} \cos \theta_m + n_m \cos \theta_{m'})}$$

$$t_{1m',s} t_{m'm,s} = \frac{4n_{m'} \cos \theta_{m'} n_m \cos \theta_m}{(n_1 \cos \theta_1 + n_{m'} \cos \theta_{m'})(n_{m'} \cos \theta_{m'} + n_m \cos \theta_m)}$$

$$t_{1m',p} t_{m'm,p} = \frac{4n_{m'} \cos \theta_{m'} n_m \cos \theta_m}{(n_1 \cos \theta_{m'} + n_{m'} \cos \theta_1)(n_{m'} \cos \theta_m + n_m \cos \theta_{m'})}$$

$$(r_{1m',p} + r_{m'm,p})L_{1/m,px}^- + t_{mm',p} t_{m'1,p} L_{1/m,px}^+ = (1 + r_{1m',p} r_{m'm,p})L_{1/m,px}^-$$

$$(r_{1m',s} + r_{m'm,s})L_{1/m,sy}^- + t_{mm',s} t_{m'1,s} L_{1/m,sy}^+ = (1 + r_{1m',s} r_{m'm,s})L_{1/m,sy}^-$$

$$(r_{1m',p} + r_{m'm,p})L_{1/m,pz}^- + t_{mm',p} t_{m'1,p} L_{1/m,pz}^+ = -(1 + r_{1m',p} r_{m'm,p})L_{1/m,pz}^-$$

これらより、以下の式が導かれる。

$$E_{1m'}^-(0^-) = \frac{(1 + r_{1m'} r_{m'm})(1 \pm r_{m2} e^{2i\beta_m h_m}) L_{1/m}^-}{1 + r_{1m'} r_{m'm} + r_{m2} (r_{1m'} + r_{m'm}) e^{2i\beta_m h_m}} P(0, n = 0)$$

(upper sign for P_x and P_y components, lower sign for P_z component)

偏光成分に分けて記すと、下式ようになる。

$$\begin{aligned} E_{1p}^-(0^-) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m',vis,\beta} (1 + r_{m'm,vis,\beta}) (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})}{1 + r_{1m',vis,\beta} r_{m'm,vis,\beta} + (r_{m'm,vis,\beta} + r_{1m',vis,\beta}) r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\ &\times \frac{t_{1m',ir,\gamma} (1 + r_{m'm,ir,\gamma}) (1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1 + r_{1m',ir,\gamma} r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma}) r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\ &\times \frac{(1 + r_{1m',SF,p} r_{m'm,SF,p}) [(1 + r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m}) \chi_{x\beta\gamma} L_{1/m,px}^- + (1 - r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m}) \chi_{z\beta\gamma} L_{1/m,pz}^-]}{1 + r_{1m',SF,p} r_{m'm,SF,p} + r_{m2,SF,p} (r_{1m',SF,p} + r_{m'm,SF,p}) e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m}} \end{aligned} \quad (5.14a)$$

$$\begin{aligned} E_{1s}^-(0^-) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m',vis,\beta} (1 + r_{m'm,vis,\beta}) (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})}{1 + r_{1m',vis,\beta} r_{m'm,vis,\beta} + (r_{m'm,vis,\beta} + r_{1m',vis,\beta}) r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\ &\times \frac{t_{1m',ir,\gamma} (1 + r_{m'm,ir,\gamma}) (1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1 + r_{1m',ir,\gamma} r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma}) r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\ &\times \frac{(1 + r_{1m',SF,s} r_{m'm,SF,s}) (1 + r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF,s} h_m}) \chi_{y\beta\gamma} L_{1/m,sy}^-}{1 + r_{1m',SF,s} r_{m'm,SF,s} + r_{m2,SF,s} (r_{1m',SF,s} + r_{m'm,SF,s}) e^{2i\beta_{m,SF,s} h_m}} \end{aligned} \quad (5.14b)$$

5.2b. $1/m$ 界面の内側 ($x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0^+$) からの反射 SFG

$1/m$ 界面の内側 (膜側) の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には A_n'' 点が寄与し、

$n = 0$ に対する $E_{1,p}(z=0)$ 、 $E_{1,s}(z=0)$ と、 $n = 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}(z=0)$ と $E_{m,s}(z=0)$ 及び $E_{m,p}^+(z=0)$ と $E_{m,s}^+(z=0)$ が膜内で多重反射してから媒質 1 側に出てくるものがある。

発光点から点 $(0, 0)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $2nh_m/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}2nh_m/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、

$$\begin{aligned} E_1(0) &= t_{m1,SF}E_1(z=0^+, n=0) \\ &\quad + t_{m1,SF}\sum_{n=1}^{\infty}(r_{m2,SF}r_{m1,SF})^{n-1}\exp[ik_{m,SF}2nh_m/\cos\theta_{m,SF}]r_{m2,SF}[E_m^+(z=0^+, n) + r_{m1}E_m(z=0^+, n)] \\ &= t_{m1}\left\{\sum_{n=0}^{\infty}(r_{m2}r_{m1}e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m})^n E^-(0^+, n) + r_{m2}e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m}\sum_{n=1}^{\infty}(r_{m2}r_{m1}e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m})^{n-1} E^+(0^+, n)\right\} \\ &= t_{m1}[L_{m/m}^- P(0^+, n=0) + r_{m2}e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m}(L_{m/m}^+ + r_{m1}L_{m/m}^-)\sum_{n=1}^{\infty}(r_{m2}r_{m1}e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m})^{n-1} P(0^+, n)] \end{aligned}$$

となる。(4.27) 式を参照して、下式が得られる。

$$\begin{aligned} E_1^-(0^-) &= t_{m1}[L_{m/m}^- + r_{m2}e^{2i\beta_m h_m}(L_{m/m}^+ + r_{m1}L_{m/m}^-)]P(0^+, n=0)\sum_{n=1}^{\infty}(r_{m2}r_{m1}e^{2i\beta_m h_m})^{n-1} \\ &= t_{m1}P(0^+, n=0)\frac{L_{m/m}^- + r_{m2}e^{2i\beta_m h_m}L_{m/m}^+}{1 + r_{m1}r_{m2}e^{2i\beta_m h_m}} \end{aligned}$$

ここで、 $t_{m1,p}L_{m/m,px}^- = L_{1/m,px}^-$ 、 $t_{m1,s}L_{m/m,sy}^- = L_{1/m,sy}^-$ 、 $t_{m1,p}L_{m/m,pz}^- = L_{1/m,pz}^-$ 、 $t_{m1,p}L_{m/m,px}^+ = L_{1/m,px}^+$ 、 $t_{m1,s}L_{m/m,sy}^+ = L_{1/m,sy}^+$ 、 $t_{m1,p}L_{m/m,pz}^+ = -L_{1/m,pz}^+$ の関係を使うと、

$$E_1^-(0^-) = P(0^+, n=0)\frac{(1 \pm r_{m2})e^{2i\beta_m h_m}L_{1/m}^-}{1 + r_{m1}r_{m2}e^{2i\beta_m h_m}}$$

(upper sign for P_x and P_y components, lower sign for P_z component)

(4.27) 式により、偏光成分ごとの表式として下式が得られる。

$$\begin{aligned} E_{1p}^-(0^-) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ &\quad \times \frac{[(1 + r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m})L_{1/m,px}^- \chi_{x\beta\gamma} + (1 - r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m})L_{1/m,pz}^- \chi_{z\beta\gamma}]}{1 + r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF,p} h_m}} \end{aligned} \quad (5.15a)$$

$$\begin{aligned} E_{1s}^-(0^-) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ &\quad \times \frac{(1 + r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF,s} h_m})L_{1/m,sy}^- \chi_{y\beta\gamma}}{1 + r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF,s} h_m}} \end{aligned} \quad (5.15b)$$

5.2c. m/2 界面の外側 ($x = -(2n + 1)h_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = h_m^+$) からの反射 FG

m/2 界面の外側 (媒質 2 側) の電場によって作られる分極から出てくる反射 SFG の電場には B_n' 点が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^-(z = h_m^+)$ 及び $E_{m,s}^-(z = h_m^+)$ が膜内に入って多重反射してから媒質 1

側に出てくるものである。

発光点から点 (0, 0) に達するまでに膜内部を走る距離は $(2n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}(2n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、

$$\begin{aligned} E_1^-(0) &= t_{2m,SF}t_{m1,SF}\sum_{n=0}^{\infty}(r_{m2,SF}r_{m1,SF})^n\exp[ik_{m,SF}(2n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}]E_2^-(z=h_m^+) \\ &= t_{2m,SF}t_{m1,SF}\exp(ik_{m,SF}h_m/\cos\theta_{m,SF})\sum_{n=0}^{\infty}[r_{m2,SF}r_{m1,SF}\exp(ik_{m,SF}2h_m/\cos\theta_{m,SF})]^nL_{2/2}^-(h_m^+,n) \end{aligned}$$

となる。関係式 $t_{2m,p}L_{2/2,px}^- = L_{m2,px}^-$ 、 $t_{2m,s}L_{2/2,sy}^- = L_{m2,sy}^-$ 、 $t_{2m,p}L_{2/2,pz}^- = L_{m2,pz}^-$ と (4.28) 式により、

$$P_\alpha(h_m^+,n) = P_\alpha(h_m^+,n=0)\exp[i(2n+1)h_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})]$$

よって、

$$\begin{aligned} E_1^-(0^-) &= \frac{t_{2m}t_m e^{i\beta_m h_m}}{1+r_{1m}r_{m2}}L_{2/2}^-(h_m^+,n=0) \\ E_{1p}^-(0^-) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{m2,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} t_{m2,ir,\gamma} e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta}r_{m2,wvis,\beta}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma}r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ &\quad \times \frac{t_{m1,p} e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,p}r_{m2,p}}[L_{2/m,px}^- \chi_{\beta\gamma} + L_{2/m,pz}^- \chi_{\beta\gamma}] \end{aligned} \quad (5.16a)$$

$$\begin{aligned} E_{1s}^-(0^-) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{m2,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} t_{m2,ir,\gamma} e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta}r_{m2,wvis,\beta}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma}r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ &\quad \times \frac{t_{m1,s} e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,s}r_{m2,s}}L_{2/m,sy}^- \chi_{\beta\gamma} \end{aligned} \quad (5.16b)$$

SFG を出す界面が屈折率 n'' の薄膜 m'' の時には、 m 側に出てくる光だけについて、5.2a で行ったと同様な考察を行う。

$$\begin{aligned} n=0 & \quad t_{m1}\exp(ih_mk_m/\cos\theta_m) \\ n=1 & \quad [r_{m1}r_{mm''}+r_{m1}t_{mm''}\sum(r_{m''2}r_{m''m})^n r_{m''2}t_{m''m}] \exp(2ih_mk_m/\cos\theta_m)t_{m1}\exp(ih_mk_m/\cos\theta_m) \\ n=k & \quad \{[r_{m1}r_{mm''}+r_{m1}t_{mm''}\sum(r_{m''2}r_{m''m})^n r_{m''2}t_{m''m}] \exp(2ih_mk_m/\cos\theta_m)\}^k t_{m1}\exp(ih_mk_m/\cos\theta_m) \\ &= t_{m1}e^{ih_mk_m/\cos\theta_m}r_{m1}\left[r_{mm''}+\frac{t_{mm''}t_{m''m}r_{m''2}}{1+r_{mm''}r_{m''2}}\right]^k e^{2ik_mk_m/\cos\theta_m} \\ &= t_{m1}e^{ih_mk_m/\cos\theta_m}r_{m1}\left[\frac{r_{mm''}+r_{mm''}^2r_{m''2}+(1-r_{mm''}^2)r_{m''2}}{1+r_{mm''}r_{m''2}}\right]^k e^{2ik_mk_m/\cos\theta_m} \\ &= t_{m1}e^{ih_mk_m/\cos\theta_m}\left[\frac{r_{m1}(r_{mm''}+r_{m''2})e^{2ih_mk_m/\cos\theta_m}}{1+r_{mm''}r_{m''2}}\right]^k \end{aligned}$$

よって、

$$E_1^-(0^-) = L^{-2/m} t_{m1} e^{i h_m k_m / \cos \theta_m} \sum_{n=0} \left[\frac{r_{m1} (r_{mm}^n + r_{m2}^n) e^{2i h_m k_m / \cos \theta_m}}{1 + r_{mm}^n r_{m2}^n} \right]^n P(h_m^+, n)$$

(4.28b) 式により、

$$\begin{aligned} E_1^-(0^-) &= L^{-2/m} t_{m1} e^{i \beta_m h_m} \left[\frac{1}{r_{1m} (r_{mm}^n + r_{m2}^n) e^{2i \beta_m h_m}} \right] P(h_m^+, n=0) \\ &= L^{-2/m} t_{m1} e^{i \beta_m h_m} \left[\frac{1 + r_{mm}^n r_{m2}^n}{1 + r_{mm}^n r_{m2}^n + r_{1m} (r_{mm}^n + r_{m2}^n) e^{2i \beta_m h_m}} \right] P(h_m^+, n=0) \end{aligned}$$

偏光別に記すと、

$$\begin{aligned} E_{1p}^-(0^-) &= \sum_{\beta \gamma} E_{vis, \beta}^0 E_{ir, \gamma}^0 \frac{t_{1m, vis, \beta} t_{mm^n, vis, \beta} (1 + r_{m2, vis, \beta}) e^{i \beta_m, vis, h_m}}{(1 + r_{mm^n, vis, \beta} r_{m2, vis, \beta}) + r_{1m, vis, \beta} (r_{mm^n, vis, \beta} + r_{m2, vis, \beta}) e^{2i \beta_m, vis, h_m}} \\ &\times \frac{t_{1m, ir, \gamma} t_{mm^n, ir, \gamma} (1 + r_{m2, ir, \gamma}) e^{i \beta_m, ir, h_m}}{(1 + r_{mm^n, ir, \gamma} r_{m2, ir, \gamma}) + r_{1m, ir, \gamma} (r_{mm^n, ir, \gamma} + r_{m2, ir, \gamma}) e^{2i \beta_m, ir, h_m}} \\ &\times \frac{t_{m1, SF, p} e^{i \beta_m, SF, h_m} (1 + r_{mm^n, SF, p} r_{m2, SF, p})}{1 + r_{mm^n, SF, p} r_{m2, SF, p} + r_{1m, SF, p} (r_{mm^n, SF, p} + r_{m2, SF, p}) e^{2i \beta_m, SF, h_m}} [L^{-2/m, px} \chi_{x\beta\gamma} + L^{-2/m, pz} \chi_{z\beta\gamma}] \end{aligned} \quad (5.17a)$$

$$\begin{aligned} E_{1s}^-(0^-) &= \sum_{\beta \gamma} E_{vis, \beta}^0 E_{ir, \gamma}^0 \frac{t_{1m, vis, \beta} t_{mm^n, vis, \beta} (1 + r_{m2, vis, \beta}) e^{i \beta_m, vis, h_m}}{(1 + r_{mm^n, vis, \beta} r_{m2, vis, \beta}) + r_{1m, vis, \beta} (r_{mm^n, vis, \beta} + r_{m2, vis, \beta}) e^{2i \beta_m, vis, h_m}} \\ &\times \frac{t_{1m, ir, \gamma} t_{mm^n, ir, \gamma} (1 + r_{m2, ir, \gamma}) e^{i \beta_m, ir, h_m}}{(1 + r_{mm^n, ir, \gamma} r_{m2, ir, \gamma}) + r_{1m, ir, \gamma} (r_{mm^n, ir, \gamma} + r_{m2, ir, \gamma}) e^{2i \beta_m, ir, h_m}} \\ &\times \frac{t_{m1, SF, s} e^{i \beta_m, SF, h_m} (1 + r_{mm^n, SF, s} r_{m2, SF, s})}{1 + r_{mm^n, SF, s} r_{m2, SF, s} + r_{1m, SF, s} (r_{mm^n, SF, s} + r_{m2, SF, s}) e^{2i \beta_m, SF, h_m}} L^{-2/m, sy} \chi_{y\beta\gamma} \end{aligned} \quad (5.17b)$$

5.2d. m/2 界面の内側 ($x = -(2n+1)h_m \tan \theta_{m, SF}$, $z = h_m^-$) からの反射 SFG

m/2 界面の内側 (膜側) の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には B_n^- 点が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}(z = h_m^-)$ 及び $E_{m,s}(z = h_m^-)$ が膜内で多重反射してから媒質 1 側に出てくる。

発光点から点 (0, 0) に達するまでに膜内部を走る距離は $(2n+1)h_m / \cos \theta_{m, SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m, SF}(2n+1)h_m / \cos \theta_{m, SF}$ であるから、

$$E_1(0) = t_{m1, SF} (1 + r_{m2}) \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2, SF} r_{m1, SF})^n \exp[i k_{m, SF} (2n+1) h_m / \cos \theta_{m, SF}] E_m(z = h_m^-, n)$$

となる。(4.29) 式により、

$$\begin{aligned} E_{11}^-(0^-) &= t_{m1} e^{i \beta_m h_m} \left[\sum_{n=0} (r_{m2} r_{m1} e^{2i \beta_m h_m})^n \right] (L^{-m/m} + r_{m2} L^{+m/m}) P(h_m^-, n=0) \\ &= \frac{t_{m1} e^{i \beta_m h_m}}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i \beta_m h_m}} (L^{-m/m} + r_{m2} L^{+m/m}) P(h_m^-, n=0) \end{aligned}$$

ここで、

$$L_{m/m,px}^- + r_{m2,p} L_{m/m,px}^+ = \frac{\cos\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} \frac{2n_m \cos\theta_2}{n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2} = L_{2/m,px}^-$$

$$L_{m/m,sy}^- + r_{m2,s} L_{m/m,sy}^+ = \frac{1}{2n_m \cos\theta_m} \frac{2n_m \cos\theta_m}{n_2 \cos\theta_2 + n_m \cos\theta_m} = L_{2/m,sy}^-$$

$$L_{m/m,pz}^- + r_{m2,p} L_{m/m,pz}^+ = \frac{\sin\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} \frac{2n_2 \cos\theta_m}{n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2} = L_{2/m,pz}^-$$

であるから、偏光別に記すと、

$$E_{1p}^-(0^-) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1+r_{m2,vis,\beta})(1+r_{m2,ir,\gamma}) e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ \times \frac{t_{m1,SF,p} e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} (L_{2/m,px}^- \chi_{x\beta\gamma} + L_{2/m,pz}^- \chi_{z\beta\gamma}) \quad (5.18a)$$

$$E_{1s}^-(0^-) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1+r_{m2,vis,\beta})(1+r_{m2,ir,\gamma}) e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ \times \frac{t_{m1,SF,s} e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} L_{2/m,sy}^- \chi_{y\beta\gamma} \quad (5.18b)$$

5.2e. 膜バルク [$0 < z < h_m$, $\mathbf{A}_{n=0,1,2} : x = -2nh_m \tan\theta_{m,SF} - z \tan\theta_{m,SF}$, $\mathbf{B}_n = -1, 0, 1, 2 : x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF} + z \tan\theta_{m,SF}$] からの反射 FG

膜の内側の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には A_n 点の上向き (-) 光と B_n 点の下向き (+) 光が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}(A_n)$ 及び $E_{m,s}(A_n)$ が膜内で多重反射してから媒質 1 側に出てくるもの、及び、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^+(B_n)$ 及び $E_{m,s}^+(B_n)$ が膜内で多重反射してから媒質 1 側に出てくるものが加わったものである。

発光点から点 (0, 0) に達するまでに膜内部を走る距離は、 A_n 点の上向き (-) 光が $(2nh_m + z)/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}(2nh_m + z)/\cos\theta_{m,SF}$ であり、 B_n 点の下向き (+) 光が $[2(n+1)h_m - z]/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}[2(n+1)h_m - z]/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、

$$E_1(0) = t_{m1,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \{ \exp[ik_{m,SF}(2nh_m + z)/\cos\theta_{m,SF}] E_m(A_n(z)) \\ + r_{m2,SF} \exp[ik_{m,SF}(2(n+1)h_m - z)/\cos\theta_{m,SF}] E_m^+(B_n(z)) \}$$

となる。(4.30a) 式と (4.30b) 式により、

$$P_\alpha(z, B_n) = P_\alpha(z, B_{n=0}) \exp[-2inh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\ P_\alpha(z, A_n) = P_\alpha(z, A_{n=0}) \exp[-2inh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})]$$

であるから、

$$E^-(0^-) = [t_{m1} L_{m/m}^- e^{ik_m z / \cos\theta_m} P(z, A_{n=0}) + t_{m1} r_{m2} e^{ik_m h_m / \cos\theta_m} L_{m/m}^+ e^{-ik_m z / \cos\theta_m} P(z, B_{n=0})] \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1} e^{2i\beta_m h_m})^n$$

となる。さらに、

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(z, A_{n=0}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis}, \beta}^0 E_{\text{ir}, \gamma}^0 \frac{t_{1m, \text{vis}, \beta} t_{1m, \text{ir}, \gamma}}{(1 + r_{1m, \text{vis}, \beta} r_{m2, \text{vis}, \beta} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m})(1 + r_{1m, \text{ir}, \gamma} r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m})} \\
&\times \{ \exp[iz(k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) + k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} \exp[iz(k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) - k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{vis}, \beta} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} \exp[iz(-k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) + k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{vis}, \beta} r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i(\beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}}) h_m} \\
&\times \exp[iz(-k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) - k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
P_{\alpha}(z, B_{n=0}) &= \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis}, \beta}^0 E_{\text{ir}, \gamma}^0 \frac{t_{1m, \text{vis}, \beta} t_{1m, \text{ir}, \gamma}}{(1 + r_{1m, \text{vis}, \beta} r_{m2, \text{vis}, \beta} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m})(1 + r_{1m, \text{ir}, \gamma} r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m})} \\
&\times \exp[-2ih_m \tan \theta_{m, SF} (k_{m, \text{vis}} \sin \theta_{m, \text{vis}} + k_{m, \text{ir}} \sin \theta_{m, \text{ir}})] \\
&\times \{ \exp[iz(k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) + k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} \exp[iz(k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) - k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{vis}, \beta} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} \exp[iz(-k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) + k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 + \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \\
&+ r_{m2, \text{vis}, \beta} r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i(\beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}}) h_m} \\
&\times \exp[iz(-k_{m, \text{vis}} \cos \theta_{m, \text{vis}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{vis}}) - k_{m, \text{ir}} \cos \theta_{m, \text{ir}} (1 - \tan \theta_{m, SF} \tan \theta_{m, \text{ir}}))] \}
\end{aligned}$$

であるから、

$$P_{\alpha}^* \equiv \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\text{vis}, \beta}^0 E_{\text{ir}, \gamma}^0 \frac{t_{1m, \text{vis}, \beta} t_{1m, \text{ir}, \gamma}}{(1 + r_{1m, \text{vis}, \beta} r_{m2, \text{vis}, \beta} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m})(1 + r_{1m, \text{ir}, \gamma} r_{m2, \text{ir}, \gamma} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m})}$$

と置くと、

$$\begin{aligned}
E_{-1}^{-}(0^{-}) &= t_{m1, SF} \left[\sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2, SF} r_{m1, SF} e^{2i\beta_{m, SF} h_m})^n \right] P_{\alpha}^* \\
&\times \{ L^{-m/m} [e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z}] \\
&+ r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} e^{i(\beta_{m, SF} - \beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(\beta_{m, SF} - \beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z}] \\
&+ r_{m2, SF} e^{2i\beta_{m, SF} h_m} L^{+m/m} [e^{i(-\beta_{m, SF} + \beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(-\beta_{m, SF} + \beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z}] \\
&+ r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} e^{i(-\beta_{m, SF} - \beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(-\beta_{m, SF} - \beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z} \} \\
&= \frac{t_{m1, SF}}{1 + r_{1m, SF} r_{m2, SF} e^{2i\beta_{m, SF} h_m}} P_{\alpha}^* \\
&\times [e^{i\beta_{m, SF} z} L^{-m/m} + r_{m2, SF} e^{2i\beta_{m, SF} h_m} e^{-i\beta_{m, SF} z} L^{+m/m}] \\
&\times [e^{i(\beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(\beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z}] \\
&+ r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} e^{i(-\beta_{m, \text{vis}} + \beta_{m, \text{ir}})z} + r_{m2, \text{vis}} e^{2i\beta_{m, \text{vis}} h_m} r_{m2, \text{ir}} e^{2i\beta_{m, \text{ir}} h_m} e^{i(-\beta_{m, \text{vis}} - \beta_{m, \text{ir}})z}]
\end{aligned}$$

を得る。SFG 電場が積み重なっていくから、 z の値についてゼロから h_m の間で積分することになるが、

この積分は光の進行方向に沿ってなされなければならない。即ち、 $L_{m,m}^-$ がかかる項については h_m からゼロまで、 $L_{m,m}^+$ がかかる項についてはゼロから h_m まで（互いに逆の方向に）積分する。

公式 $\int e^{i(a+bz)} dz = \frac{-ie^{i(a+bz)}}{b} + C$ により、

$$\begin{aligned}
E_1^-(0^-) &= \frac{i}{\delta} \frac{t_{m,SF}}{1+r_{m,SF}r_{m2,SF}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} P^* \alpha \\
&\times \left\{ L_{m/m}^- \left[\frac{e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} + r_{m2,ir}e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} \right. \right. \\
&+ r_{m2,vis}e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{e^{i(\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} + r_{m2,vis}e^{2i\beta_{m,vis}h_m} r_{m2,ir}e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} \left. \right] \\
&+ r_{m2,SF}e^{2i\beta_{m,SF}h_m} L_{m/m}^+ \left[\frac{e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} + r_{m2,ir}e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} \right. \\
&+ r_{m2,vis}e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1}{-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} + r_{m2,vis}e^{2i\beta_{m,vis}h_m} r_{m2,ir}e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir})h_m}-1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} \left. \right] \left. \right\} \\
&= \frac{i}{\delta} \frac{t_{m1,SF}}{1+r_{m,SF}r_{m2,SF}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} P^* \alpha \\
&\times \left\{ \frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} \right. \\
&\quad \times [L_{m/m}^- r_{m2,vis} r_{m2,ir} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}) \\
&\quad + r_{m2,SF} L_{m/m}^+ (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,SF}h_m})] \\
&+ \frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} \\
&\quad \times [L_{m/m}^- r_{m2,vis} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}) \\
&\quad + r_{m2,SF} L_{m/m}^+ r_{m2,ir} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,ir})h_m})] \\
&+ \frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}} \\
&\quad \times [L_{m/m}^- r_{m2,ir} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}) \\
&\quad + r_{m2,SF} L_{m/m}^+ r_{m2,vis} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis})h_m})] \\
&+ \frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}} \\
&\quad \times [L_{m/m}^- (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - 1) \\
&\quad + r_{m2,SF} L_{m/m}^+ r_{m2,vis} r_{m2,ir} (e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})]
\end{aligned}$$

上で入った因子 $1/\delta$ は、ここで用いている感受率が面感受率であるのに対して通常の感受率は体積感受率であり、上で行った積分は後者を前提にしていることによる。分極シートの間隔を δ とし、因子 $1/\delta$ を付けることによってディメンションを調節した。

$$\begin{aligned}
t_{m1p}L_{m/m,px}^- &= L_{1/m,px}^-, & t_{m1s}L_{m/m,sy}^- &= L_{1/m,sy}^-, \\
t_{m1p}L_{m/m,pz}^- &= L_{1/m,pz}^-, & t_{m1p}L_{m/m,px}^+ &= L_{1/m,px}^-, \\
t_{m1s}L_{m/m,sy}^+ &= L_{1/m,sy}^-, & t_{m1p}L_{m/m,pz}^+ &= -L_{1/m,pz}^-
\end{aligned}$$

の関係を使ってさらに整理することも可能である。偏光成分ごとに記すと、

$$\begin{aligned}
E_{1p}^-(0^-) &= \frac{i}{\delta} \sum_{\beta, \gamma} E_{vis, \beta}^0 E_{ir, \gamma}^0 \\
&\times \frac{t_{m1, SF, p} t_{1m, vis, \beta} t_{1m, ir, \gamma}}{(1 + r_{1m, SF, p} r_{m2, SF, p} e^{2i\beta_{m, SF} h_m})(1 + r_{1m, vis, \beta} r_{m2, vis, \beta} e^{2i\beta_{m, ir} h_m})(1 + r_{1m, ir, \gamma} r_{m2, ir, \gamma} e^{2i\beta_{m, vis} h_m})} \\
&\times \left\{ \frac{1}{\beta_{m, SF} - \beta_{m, vis} - \beta_{m, ir}} \right. \\
&\quad \times \{ \chi_{x\beta\gamma} L_{1/m, px}^- [r_{m2, vis, \beta} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m}) \\
&\quad + r_{m2, SF, p} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2\beta_{m, SF} h_m})] \\
&\quad + \chi_{z\beta\gamma} L_{1/m, pz}^- [r_{m2, vis, \beta} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m}) \\
&\quad - r_{m2, SF, p} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2\beta_{m, SF} h_m})] \} \\
&\quad + \frac{1}{\beta_{m, SF} - \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}} \\
&\quad \times \{ \chi_{x\beta\gamma} L_{1/m, px}^- [r_{m2, vis, \beta} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m, vis} h_m}) \\
&\quad + r_{m2, SF, p} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, ir}) h_m})] \\
&\quad + \chi_{z\beta\gamma} L_{1/m, pz}^- [r_{m2, vis, \beta} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2\beta_{m, vis} h_m}) \\
&\quad - r_{m2, SF, p} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, ir}) h_m})] \} \\
&\quad + \frac{1}{\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} - \beta_{m, ir}} \\
&\quad \times \{ \chi_{x\beta\gamma} L_{m/m, px}^- [r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m, ir} h_m}) \\
&\quad + r_{m2, SF, p} r_{m2, vis, \beta} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis}) h_m})] \\
&\quad + \chi_{z\beta\gamma} L_{m/m, pz}^- [r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m, ir} h_m}) \\
&\quad - r_{m2, SF, p} r_{m2, vis, \beta} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis}) h_m})] \} \\
&\quad + \frac{1}{\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}} \\
&\quad \times \{ \chi_{x\beta\gamma} L_{m/m, px}^- [(e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - 1) \\
&\quad + r_{m2, SF, p} r_{m2, vis, \beta} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m})] \\
&\quad + \chi_{z\beta\gamma} L_{m/m, pz}^- [(e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - 1) \\
&\quad - r_{m2, SF, p} r_{m2, vis, \beta} r_{m2, ir, \gamma} (e^{i(\beta_{m, SF} + \beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m, vis} + \beta_{m, ir}) h_m})] \} \}
\end{aligned} \tag{5.19a}$$

$$\begin{aligned}
E_{1s}^-(0^-) &= \frac{i}{\delta} \sum_{\beta, \gamma} E_{vis, \beta}^0 E_{ir, \gamma}^0 \\
&\times \frac{t_{m1, SF, s} t_{1m, vis, \beta} t_{1m, ir, \gamma}}{(1 + r_{1m, SF, s} r_{m2, SF, s} e^{2i\beta_{m, SF} h_m})(1 + r_{1m, vis, \beta} r_{m2, vis, \beta} e^{2i\beta_{m, ir} h_m})(1 + r_{1m, ir, \gamma} r_{m2, ir, \gamma} e^{2i\beta_{m, vis} h_m})}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \times \left\{ \frac{1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\
& \quad \times \{ \chi_{y\beta\gamma} L^{-1/m, sy} [r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}) \\
& \quad + r_{m2,SF,s} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,SF}h_m})] \\
& + \frac{1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\
& \quad \times \{ \chi_{y\beta\gamma} L^{-1/m, sy} [r_{m2,vis,\beta} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}) \\
& \quad + r_{m2,SF,s} r_{m2,ir,\gamma} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,ir})h_m})] \\
& + \frac{1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \\
& \quad \times \{ \chi_{y\beta\gamma} L^{-m/m, sy} [r_{m2,ir,\gamma} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}) \\
& \quad + r_{m2,SF,s} r_{m2,vis,\beta} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis})h_m})] \\
& + \frac{1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\
& \quad \times \{ \chi_{y\beta\gamma} L^{-m/m, sy} [(e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1) \\
& \quad + r_{m2,SF,s} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} (e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m})] \\
& \left. \right\} \tag{5.19b}
\end{aligned}$$

5.2f. ネットの反射 SFG 電場

実際に観測される SFG 光の電場は、すべての部分からの SFG 光を光路に沿って足し合わせたものである。従って、上で示した表式について和を取ると、その「和の2乗」が SFG 光の強度になる。

5.3. 透過 SFG の電場

透過 SFG を考えるに当たっては、上で記した反射 SFG で考慮したものに加えて、 $x = 0 \sim h_m \tan \theta_{m,SF}$ の範囲（及び $m/2$ 界面外側）からの寄与も取り入れなければならない。

前節の考察では、赤外光と可視光の位相が SFG 光の出口で揃うようにした。しかし、透過 SFG では、位相を裏面でそろえる必要がある。そのためには、4.1 節の赤外光と可視光の電場に位相因子 $\exp(-ih_m \tan \theta_{m,SF} k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir})$ と $\exp(-ih_m \tan \theta_{m,SF} k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis})$ を付け加えればよい。また、4.2 節で記した分極の位相因子には、 $\exp[-ih_m \tan \theta_{m,SF} (k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir} + k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis})]$ を追加する。

5.3a. $1/m$ 界面の外側 ($x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0^-$) からの透過 SFG

$1/m$ 界面の外側（媒質 1 側）の電場によって作られる分極からの透過 SFG の電場には A_n' 点が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^+(z = 0^-)$ 及び $E_{m,s}^+(z = 0^-)$ が膜内に入って多重反射してから媒質 2 側に出てくるものより成る。

発光点から点 $(h_m \tan \theta_{m,SF}, h)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}$ であるから、

$$E_2^+(h_m^+) = t_{1m,SF} t_{m2,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp[ik_{m,SF}(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}] E_m^+(z = 0^-, n)$$

となる。(4.26a) 式および位相因子により、

$$\begin{aligned} E_{2}^{+}(h_{m}^{+}) &= t_{1m,SF} t_{m2,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp[ik_{m,SF}(2n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}] L_{1/1}^{+} P^{+}(0, n=0) \\ &= \frac{t_{1m,SF} t_{m2,SF} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} L_{1/1}^{+} P(0^{-}, n=0) \end{aligned}$$

ここで、

$$t_{1m,p} L_{1/1,px}^{+} = L_{m/1,px}^{+}, \quad t_{1m,s} L_{1/1,sy}^{+} = L_{m/1,sy}^{+}, \quad t_{1m,p} L_{1/1,pz}^{+} = L_{m/1,pz}^{+} \quad (n_{m'} = n_1 \text{ として})$$

であるから、偏光成分ごとの表式が下式ようになる。

$$\begin{aligned} E_{2p}^{+}(h_{m}^{+}) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{(1+r_{1m,vis,\beta})(1+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ &\quad \times \frac{t_{1m,SF,p} t_{m2,SF,p} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1+r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} [\chi_{x\beta\gamma} L_{m/1,px}^{+} + \chi_{z\beta\gamma} L_{m/1,pz}^{+}] \end{aligned} \quad (5.20a)$$

$$\begin{aligned} E_{2s}^{+}(h_{m}^{+}) &= \sum_{\beta,\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{(1+r_{1m,vis,\beta})(1+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\ &\quad \times \frac{t_{1m,SF,s} t_{m2,SF,s} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1+r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} \chi_{y\beta\gamma} L_{m/1,sy}^{+} \end{aligned} \quad (5.20b)$$

発光層が薄膜 m' のときには、次のように考察する。

$n=0$ からの寄与 : $t_{m2} \exp(ih_m k_m / \cos\theta_m)$

$n=1$ からの寄与 : $t_{m2} \exp(ih_m k_m / \cos\theta_m) \{ r_{m2} r_{mm'} + r_{m2} t_{mm'} r_{m1} [\sum_n (r_{m1} r_{m'm})^n t_{m'm}] \} \exp(2ih_m k_m / \cos\theta_m)$

$n=k$ からの寄与 : $t_{m2} \exp(ih_m k_m / \cos\theta_m) \{ r_{m2} r_{mm'} + r_{m2} t_{mm'} r_{m1} [\sum_n (r_{m1} r_{m'm})^n t_{m'm}] \}^k \exp(2ikh_m k_m / \cos\theta_m)$

$$= t_{m2} e^{ik_m h_m / \cos\theta_m} \left[\frac{r_{m2}(r_{mm'} + r_{m1})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2ik_m h_m / \cos\theta_m} \right]^k$$

(4.26b) 式および位相因子により、

$$\begin{aligned} E_{2}^{+}(h_{m}^{+}) &= t_{m2} e^{i\beta_{m'} h_m} \sum_{k=0}^{\infty} \left[\frac{r_{m2}(r_{mm'} + r_{m1})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2i\beta_{m'} h_m} \right]^k L_{1/m}^{+} P(0, n=0) \\ &= t_{m2} e^{i\beta_{m'} h_m} \frac{1}{1 + \frac{r_{m2}(r_{mm'} + r_{m1})}{1 + r_{1m'} r_{m'm}} e^{2i\beta_{m'} h_m}} L_{1/m}^{+} P(0, n=0) \\ &= \frac{t_{m2} (1 + r_{1m'} r_{m'm}) e^{i\beta_{m'} h_m}}{1 + r_{1m'} r_{m'm} + r_{m2} (r_{mm'} + r_{m1}) e^{2i\beta_{m'} h_m}} L_{1/m}^{+} P(0, n=0) \end{aligned}$$

偏光成分ごとに記すと、

$$\begin{aligned}
E_{2p}^+(h_m^+) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m',vis,\beta} (1+r_{m'm,vis,\beta}) (1+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})}{1+r_{1m',vis,\beta} r_{m'm,vis,\beta} + (r_{m'm,vis,\beta} + r_{1m',vis,\beta}) r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\
&\times \frac{t_{1m',ir,\gamma} (1+r_{m'm,ir,\gamma}) (1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1+r_{1m',ir,\gamma} r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma}) r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \frac{t_{m2,SF,p} (1+r_{1m',SF,p} r_{m'm,SF,p}) e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1+r_{1m',SF,p} r_{m'm,SF,p} + r_{m2,SF,p} (r_{mm',SF,p} + r_{m1,SF,p}) e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} (L_{1/m,px}^+ \chi_{x\beta\gamma} + L_{1/m,pz}^+ \chi_{z\beta\gamma}) \quad (5.21a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{2s}^+(h_m^+) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{mm',vis,\beta} (1+r_{m^2,vis,\beta}) e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{(1+r_{mm',vis,\beta} r_{m^2,vis,\beta}) + r_{1m,vis,\beta} (r_{mm',vis,\beta} + r_{m^2,vis,\beta}) e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\
&\times \frac{t_{1m',ir,\gamma} (1+r_{m'm,ir,\gamma}) (1+r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1+r_{1m',ir,\gamma} r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma}) r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \frac{t_{m2,SF,s} (1+r_{1m',SF,s} r_{m'm,SF,s}) e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1+r_{1m',SF,s} r_{m'm,SF,s} + r_{m2,SF,s} (r_{mm',SF,s} + r_{m1,SF,s}) e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} L_{1/m,sy}^+ \chi_{y\beta\gamma} \quad (5.21b)
\end{aligned}$$

5.3b. 1/m 界面の内側 ($x = -2nh_m \tan \theta_{m,SF}$, $z = 0^+$) からの透過 SFG

1/m 界面の内側 (膜側) の電場によって作られる分極からの透過 SFG の電場には A_n 点が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_m^+(z = 0^+)$ 及び $r_{m1} E_m(z = 0^+)$ が膜内で多重反射してから媒質 2 側に出てくるものから成る。

発光点から点 $(h_m \tan \theta_{m,SF}, h)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}$ であるから、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = t_{m2,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp[ik_{m,SF}(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}] [E_m^+(z = 0^+, n) + r_{m1} E_m(z = 0^+, n)]$$

となる。(4.27) 式および位相因子により、

$$\begin{aligned}
E_{2p}^+(h_m^+) &= t_{m2,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp[ik_{m,SF}(2n + 1)h_m / \cos \theta_{m,SF}] [L_{m/m}^+ + r_{m1} L_{m/m}^-] P^+(0^+, n = 0) \\
&= \frac{t_{m2,SF} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} (L_{m/m}^+ + r_{m1} L_{m/m}^-) P(0^-, n = 0) \\
&= \frac{t_{m2,SF} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} L_{1/m}^+ P(0^-, n = 0)
\end{aligned}$$

上では、

$$L_{m/m,px}^+ + r_{m1,p} L_{m/m,px}^- = L_{1/m,px}^+, \quad L_{m/m,sy}^+ + r_{m1,s} L_{m/m,sy}^- = L_{1/m,sy}^+, \quad L_{m/m,pz}^+ + r_{m1,p} L_{m/m,pz}^- = L_{1/m,pz}^+$$

($m' = m$) を使った。これより、偏光成分ごとの表式が下式のように得られる。

$$E_{2p}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}$$

$$\times \frac{t_{m2,SF,p} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} (L_{1/m,px}^+ \chi_{x\beta\gamma} + L_{1/m,pz}^+ \chi_{z\beta\gamma}) \quad (5.22a)$$

$$E_{2s}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1 + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}$$

$$\times \frac{t_{m2,SF,s} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} L_{1/m,sy}^+ \chi_{y\beta\gamma} \quad (5.22b)$$

5.3c. m/2 界面の外側 ($x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = h_m^+$) からの透過 SFG

m/2 界面の外側 (媒質 2 側) の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には B_n^+ 点が寄与し、 $n = -1$ に対する $E_{2,p}^+(z = h_m^+)$ 及び $E_{2,s}^+(z = h_m^+)$ と、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^+(z = h_m^+)$ 及び $E_{m,s}^+(z = h_m^+)$ が膜内に入って多重反射してから媒質 2 側に出てくるものがある。

発光点から点 $(h_m \tan\theta_{m,SF}, h_m)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $2(n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF} 2(n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = E_{2p}^+(z = h_m^+, n = -1) + r_{2m,SF} E_{2p}^+(z = h_m^+, n = -1)$$

$$+ t_{2m,SF} \sum_{n=0}^{\infty} r_{m1,SF} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp(ik_{m,SF} 2(n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}) t_{m2,SF} E_{2p}^+(z = h_m^+, n)$$

となる。(4.28) 式および位相因子により、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = (L_{2/2}^+ + r_{2m,SF} L_{2/2}^-) P(z = h_m^+, n = -1)$$

$$+ t_{2m,SF} \sum_{n=0}^{\infty} r_{m1,SF} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp(ik_{m,SF} 2(n+1)h_m/\cos\theta_{m,SF}) t_{m2,SF} L_{2/2}^- P(z = h_m^+, n = 0)$$

$$= P(h_m^+, n = -1) [(L_{2/2}^+ + r_{2m} L_{2/2}^-) + t_{m2} t_{2m} r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF} h_m} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})^n L_{2/2}^-]$$

$$= P(h_m^+, n = -1) [L_{2/2}^+ + L_{2/2}^- (r_{2m} + \frac{t_{m2} t_{2m} r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}})]$$

$$= P(h_m^+, n = -1) [L_{2/2}^+ + L_{2/2}^- \frac{r_{2m} + (r_{1m} r_{m2} r_{2m} + (1 + r_{m2} r_{2m})(-r_{1m})) e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}]$$

$$= P(h_m^+, n = -1) \frac{L_{2/2}^+ + r_{2m} L_{2/2}^- - r_{1m} (r_{2m} L_{2/2}^+ + L_{2/2}^-) e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}$$

$$L_{2/2,px}^+ + r_{2m,p} L_{2/2,px}^- = L_{2/m,px}^+, \quad L_{2/2,sy}^+ + r_{2m,s} L_{2/2,sy}^- = L_{2/m,sy}^+, \quad L_{2/2,pz}^+ + r_{2m,p} L_{2/2,pz}^- = L_{2/m,pz}^+ \quad (m'' = 2),$$

$$r_{2m,p} L_{2/2,px}^+ + L_{2/2,px}^- = L_{2/m,px}^+, \quad r_{2m,s} L_{2/2,sy}^+ + L_{2/2,sy}^- = L_{2/m,sy}^+, \quad r_{2m,p} L_{2/2,pz}^+ + L_{2/2,pz}^- = -L_{2/m,pz}^+ \quad (m'' = 2),$$

であるから、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = P(h_m^+, n = -1) \frac{(1 - r_{1m} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}) L_{2/m}^+}{1 + r_{1m} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF} h_m}}$$

(upper for P_x and P_y components and lower for P_z component)

となり、偏光成分ごとの式は下式になる。

$$E_{2p}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{2m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} t_{2m,ir,\gamma} e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis})h_m}}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{2m,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{2m,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ \times \frac{(1 - r_{1m,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}) L_{2/m,px}^+ \chi_{x\beta\gamma} + (1 + r_{1m,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}) L_{2/m,pz}^+ \chi_{z\beta\gamma}}{1 + r_{1m,SF,p} r_{2m,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \quad (5.23a)$$

$$E_{2s}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{2m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} t_{2m,ir,\gamma} e^{i(\beta_{m,ir} + \beta_{m,vis})h_m}}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{2m,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{2m,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})} \\ \times \frac{(1 - r_{1m,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}) L_{2/m,sy}^+ \chi_{y\beta\gamma}}{1 + r_{1m,SF,s} r_{2m,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \quad (5.23b)$$

5.3d. $m/2$ 界面の内側 ($x = -(2n + 1)h_m \tan\theta_{m,SF}$, $z = h_m^-$) からの透過 SFG

$m/2$ 界面の内側 (膜側) の電場によって作られる分極からの透過 SFG の電場には B_n 点が寄与し、 $n = -1$ に対する $E_{2,p}^+(z = h_m^-)$ および $E_{2,s}^+(z = h_m^-)$ と、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{m,p}^-(z = h_m^-)$ 及び $E_{m,s}^-(z = h_m^-)$ が膜内で多重反射してから媒質 2 側に出てくるものから成る。

発光点から点 $(h_m \tan\theta_{m,SF}, h_m^+)$ に達するまでに膜内部を走る距離は $2(n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ 、その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}2(n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}$ であるから、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = t_{m2,SF} E_{2p}^+(z = h_m^-, n = -1) \\ + t_{m2,SF} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp(ik_{m,SF}2(n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}) r_{m1,SF} [E_{m,p}^-(z = h_m^-, n) + r_{m2,SF} E_{m,p}^+(z = h_m^-, n)]$$

となる。(4.29) 式および位相因子により、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = t_{m2,SF} L_{m/m}^+ P(z = h_m^-, n = -1) \\ + \sum_{n=0}^{\infty} r_{m1,SF} (r_{m2,SF} r_{m1,SF})^n \exp(ik_{m,SF}2(n + 1)h_m/\cos\theta_{m,SF}) t_{m2,SF} [L_{m/m}^- + r_{m2,SF} L_{m/m}^+] P(z = h_m^-, n = 0) \\ = P(h_m^-, n = -1) t_{m2} (L_{m/m}^+ + r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF}h_m} L_{m/m}^-) \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})^n \\ = P(h_m^+, n = -1) (L_{m/m}^+ + r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF}h_m} L_{m/m}^-) \frac{1}{1 + r_{m1} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}$$

$$t_{m2p} L_{m/m,px}^+ = L_{2/m,px}^+, \quad t_{m2s} L_{m/m,sy}^+ = L_{2/m,sy}^+, \quad t_{m2p} L_{m/m,pz}^+ = -L_{2/m,pz}^+ (m'' = m) \\ t_{m2p} L_{m/m,px}^- = L_{2/m,px}^+, \quad t_{m2s} L_{m/m,sy}^- = L_{2/m,sy}^+, \quad t_{m2p} L_{m/m,pz}^- = L_{2/m,pz}^+ (m'' = m)$$

であるから、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = P(h_m^+, n = -1) L_{2/m}^+ \frac{(\pm 1 + r_{m1} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})}{1 + r_{m1} r_{m2} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}$$

偏光成分ごとに記すと、

$$E_{2p}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 e^{\frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1+r_{m2,vis,\beta})(1+r_{m2,ir,\gamma}) e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}} \times \frac{(1+r_{m1,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L_{2/m,p,x}^+ \chi_{x\beta\gamma} + (-1+r_{m1,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L_{2/m,p,z}^+ \chi_{z\beta\gamma}}{1+r_{m1,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \quad (5.24a)$$

$$E_{2s}^+(h_m^+) = \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 e^{\frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} (1+r_{m2,vis,\beta})(1+r_{m2,ir,\gamma}) e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}} \times \frac{(1+r_{m1,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L_{2/m,s,y}^+ \chi_{y\beta\gamma}}{1+r_{m1,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \quad (5.24b)$$

裏面の SFG 分極が薄膜 (mⁿ) によるときには、前で行ったと同じ考察を進める。

$n = -1$ からの寄与 : $E_{2}^+(h_m, n = -1)$

$n = 0$ からの寄与 : $E(h_m, n = 0) \exp(2ik_m h_m / \cos\theta_m) r_{m1} t_{mm} [\sum_{n=0} (r_{m^2} r_{m^m})^n] t_{m^2}$

$n = 1$ からの寄与 : $E(h_m, n = 1) \exp(2ik_m h_m / \cos\theta_m) r_{m1} \{ r_{mm^*} + t_{mm^*} [r_{m^2} \sum_{n=0} (r_{m^m} r_{m^2})^n] t_{m^m} \} r_{m1} \exp(2ik_m h_m / \cos\theta_m) \times t_{mm^*} [\sum_{n=0} (r_{m^2} r_{m^m})^n] t_{m^2}$

$n = k$ からの寄与 : $E(h_m, n = k) \exp(2ik_m h_m / \cos\theta_m) r_{m1} \{ r_{mm^*} + t_{mm^*} [r_{m^2} \sum_{n=0} (r_{m^m} r_{m^2})^n] t_{m^m} \}^k r_{m1}^k \exp(2ikk_m h_m / \cos\theta_m) \times t_{mm^*} [\sum_{n=0} (r_{m^2} r_{m^m})^n] t_{m^2}$
 $= E^-(h_m, n = k) e^{2ik_u h_u / \cos\theta_m} r_{m1} \{ [r_{mm^*} + \frac{t_{mm^*} t_{m^m} r_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}}] r_{m1} \}^k e^{2ikk_u h_u / \cos\theta_m} \frac{t_{mm^*} t_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}}$
 $= E^-(h_m, n = k) e^{2ik_u h_u / \cos\theta_m} r_{m1} [\frac{r_{mm^*} + r_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}} r_{m1}]^k e^{2ikk_u h_u / \cos\theta_m} \frac{t_{mm^*} t_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}}$

(但し、位相因子は $n = -1$ による SFG 光を基準にしている。(4.28b) 式および位相因子により、

$$E^+(h_m^+) = P(h_m, n = -1) L_{2/m}^+ + P_{\alpha}(h_m, n = -1) L_{2/m}^- e^{2i\beta_m h_m} r_{m1} \frac{t_{mm^*} t_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}} \sum_{n=0} [\frac{r_{mm^*} + r_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}} r_{m1} e^{2i\beta_m h_m}]^n = P_{\alpha}(h_m, n = -1) \{ L_{2/m}^+ + L_{2/m}^- e^{2i\beta_m h_m} r_{m1} \frac{t_{mm^*} t_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2}} \frac{1+r_{mm^*} r_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2} + r_{1m} (r_{mm^*} + r_{m^2}) e^{2i\beta_m h_m}} \} = P_{\alpha}(h_m, n = -1) \{ L_{2/m}^+ + L_{2/m}^- e^{2i\beta_m h_m} \frac{r_{m1} t_{mm^*} t_{m^2}}{1+r_{mm^*} r_{m^2} + r_{1m} (r_{mm^*} + r_{m^2}) e^{2i\beta_m h_m}} \} = P_{\alpha}(h_m, n = -1) \frac{(1+r_{mm^*} r_{m^2}) L_{2/m}^+ + r_{1m} [(r_{mm^*} + r_{m^2}) L_{2/m}^+ - t_{mm^*} t_{m^2} (r_{mm^*} + r_{m^2}) L_{2/m}^-] e^{2i\beta_m h_m}}{1+r_{mm^*} r_{m^2} + r_{1m} (r_{mm^*} + r_{m^2}) e^{2i\beta_m h_m}}$$

$$\begin{aligned}
1 + r_{mm^*s}r_{m^*2s} &= \frac{2n_m \cos\theta_m (n_m \cos\theta_m + n_2 \cos\theta_2)}{(n_m \cos\theta_m + n_{m^*} \cos\theta_{m^*})(n_{m^*} \cos\theta_{m^*} + n_2 \cos\theta_2)} \\
r_{mm^*s} + r_{m^*2s} &= \frac{2n_{m^*} \cos\theta_{m^*} (n_m \cos\theta_m - n_2 \cos\theta_2)}{(n_m \cos\theta_m + n_{m^*} \cos\theta_{m^*})(n_{m^*} \cos\theta_{m^*} + n_2 \cos\theta_2)} \\
t_{mm^*s}t_{m^*2s} &= \frac{4n_{m^*} \cos\theta_{m^*} n_m \cos\theta_m}{(n_m \cos\theta_m + n_{m^*} \cos\theta_{m^*})(n_{m^*} \cos\theta_{m^*} + n_2 \cos\theta_2)} \\
1 + r_{mm^*p}r_{m^*2p} &= \frac{2n_m \cos\theta_m (n_m \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_m)}{(n_m \cos\theta_{m^*} + n_{m^*} \cos\theta_m)(n_{m^*} \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_{m^*})} \\
r_{mm^*p} + r_{m^*2p} &= \frac{2n_{m^*} \cos\theta_{m^*} (n_m \cos\theta_2 - n_2 \cos\theta_m)}{(n_m \cos\theta_{m^*} + n_{m^*} \cos\theta_m)(n_{m^*} \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_{m^*})} \\
t_{mm^*p}t_{m^*2p} &= \frac{4n_{m^*} \cos\theta_{m^*} n_m \cos\theta_m}{(n_m \cos\theta_{m^*} + n_{m^*} \cos\theta_m)(n_{m^*} \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_{m^*})}
\end{aligned}$$

$$L_{2/m,px}^- = (\cos\theta_2/\cos\theta_m)L_{2/m,px}^+, \quad L_{2/m,sy}^- = L_{2/m,sy}^+, \quad L_{2/m,pz}^- = -(n_2/n_m)L_{2/m,pz}^+$$

であるから、

$$E^+(h_m^+) = P_\alpha(h_m, n = -1) \frac{(1 + r_{mm^*}r_{m^*2})(1 \mp r_{1m}e^{2i\beta_m h_m})}{1 + r_{mm^*}r_{m^*2} + r_{1m}(r_{mm^*} + r_{m^*2})e^{2i\beta_m h_m}} L_{2/m}^+$$

(upper sign for P_x and P_y components, lower sign for P_z component)

よって、偏光成分ごとの表式は、下式ようになる。

$$\begin{aligned}
E_{2p}(h_m^+) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis\beta} t_{mm^*,vis\beta} (1 + r_{m^*2,vis\beta}) e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{(1 + r_{mm^*,vis\beta} r_{m^*2,vis\beta}) + r_{1m,vis\beta} (r_{mm^*,vis\beta} + r_{m^*2,vis\beta}) e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\
&\times \frac{t_{1m,ir\gamma} t_{mm^*,ir\gamma} (1 + r_{m^*2,ir\gamma}) e^{i\beta_{m,ir} h_m}}{(1 + r_{mm^*,ir\gamma} r_{m^*2,ir\gamma}) + r_{1m,ir\gamma} (r_{mm^*,ir\gamma} + r_{m^*2,ir\gamma}) e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \frac{(1 + r_{mm^*SFp} r_{m^*2SFp}) [(1 - r_{1mSFp} e^{2i\beta_{m,SFp} h_m}) L_{2/m,px}^+ \chi_{\beta\gamma} + (1 + r_{1mSFp} e^{2i\beta_{m,SFp} h_m}) L_{2/m,pz}^+ \chi_{z\beta\gamma}]}{1 + r_{mm^*SFp} r_{m^*2SFp} + r_{1mSFp} (r_{mm^*SFp} + r_{m^*2SFp}) e^{2i\beta_{m,SFp} h_m}} \quad (5.25a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{2s}(h_m^+) &= \sum_{\beta\gamma} E_{vis\beta}^0 E_{ir\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis\beta} t_{mm^*,vis\beta} (1 + r_{m^*2,vis\beta}) e^{i\beta_{m,vis} h_m}}{(1 + r_{mm^*,vis\beta} r_{m^*2,vis\beta}) + r_{1m,vis\beta} (r_{mm^*,vis\beta} + r_{m^*2,vis\beta}) e^{2i\beta_{m,vis} h_m}} \\
&\times \frac{t_{1m,ir\gamma} t_{mm^*,ir\gamma} (1 + r_{m^*2,ir\gamma}) e^{i\beta_{m,ir} h_m}}{(1 + r_{mm^*,ir\gamma} r_{m^*2,ir\gamma}) + r_{1m,ir\gamma} (r_{mm^*,ir\gamma} + r_{m^*2,ir\gamma}) e^{2i\beta_{m,ir} h_m}} \\
&\times \frac{(1 + r_{mm^*SFs} r_{m^*2SFs}) (1 - r_{1mSFs} e^{2i\beta_{m,SFs} h_m}) L_{2/m,sy}^+ \chi_{\beta\gamma}}{1 + r_{mm^*SFs} r_{m^*2SFs} + r_{1mSFs} (r_{mm^*SFs} + r_{m^*2SFs}) e^{2i\beta_{m,SFs} h_m}} \quad (5.25b)
\end{aligned}$$

5.3e. 膜バルク [$0 < z < h_m$, $\mathbf{A}_{n=0,1,2} : x = -2nh_m \tan\theta_{mSF} - z \tan\theta_{mSF}$, $\mathbf{B}_{n=-1,0,1,2} : x = -(2n+1)h_m \tan\theta_{mSF} + z \tan\theta_{mSF}$] からの透過 SFG

膜の内側の電場によって作られる分極からの反射 SFG の電場には A_n 点の上向き (-) 光と B_n 点の下向き (+) 光が寄与し、 $n = 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{mp}(A_n)$ 及び $E_{ms}(A_n)$ が膜内で多重反射してから媒質 2 側に出てくるもの、及び、 $n = -1, 0, 1, 2, \dots$ に対する $E_{mp}^+(B_n)$ 及び $E_{ms}^+(B_n)$ が膜内で多重反射してから媒

質 2 側に出てくるものが加わったものである。

発光点から点 $(h_m \tan \theta_{m,SF}, h_m)$ に達するまでに膜内部を走る距離は、 A_n 点の上向き (-) 光が $[(2n+1)h_m + z]/\cos \theta_{m,SF}$ その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}[(2n+1)h_m + z]/\cos \theta_{m,SF}$ であり、 B_n 点の下向き (+) 光が $[(2n+3)h_m - z]/\cos \theta_{m,SF}$ その間に受ける位相の変化は $k_{m,SF}[(2n+3)h_m - z]/\cos \theta_{m,SF}$ であるから、

$$\begin{aligned}
E_2^+(h_m^+) &= t_{m2} \{ E_m^+(B_{n=-1}(z)) \exp[ik_m(h_m - z)/\cos \theta_m] \\
&\quad + \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \{ r_{m1} \exp[ik_m[(2n+1)h_m + z]/\cos \theta_m] E_m^-(A_n(z)) \\
&\quad \quad + r_{m2} r_{m1} \exp[ik_m[(2n+3)h_m - z]/\cos \theta_m] E_m^+(B_n(z)) \} \} \\
&= t_{m2} L_{2/m}^+ \exp[ik_m(h_m - z)/\cos \theta_m] \{ P(z, B_{n=-1}) \\
&\quad + r_{m2} r_{m1} \exp(2ik_m h_m / \cos \theta_m) \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \exp(2ink_m h_m / \cos \theta_m) P(z, B_n) \} \\
&\quad + t_{m2} r_{m1} L_{2/m}^- \exp[ik_m(h_m + z)/\cos \theta_m] \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \exp(2ink_m h_m / \cos \theta_m) P(z, A_n)
\end{aligned}$$

上式で、位相部分の基準は出射点に取っている。(4.30a) 式と (4.30b) 式 および位相因子により、

$$\begin{aligned}
P_\alpha(z, B_n) &= P_\alpha(z, B_{n=0}) \exp[-i(2n+1)h_m \tan \theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir})] \\
P_\alpha(z, A_n) &= P_\alpha(z, A_{n=0}) \exp[-i(2n+1)h_m \tan \theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir})]
\end{aligned}$$

であるから、

$$\begin{aligned}
E_m^+(h_m^+) &= t_{m2} L_{m/m}^+ P(z, B_{n=0}) e^{ik_m(h_m - z)} [1 + r_{m2} r_{m1} e^{2ik_m h_m / \cos \theta_m} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n e^{2i\beta_{m,ir} h_m}] \\
&\quad + t_{m2} r_{m1} L_{m/m}^- P(z, A_{n=0}) e^{ik_m(h_m + z)} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n e^{2i\beta_{m,vis} h_m}
\end{aligned}$$

となる。さらに、

$$\begin{aligned}
P_\alpha(z, A_{n=0}) &= \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma}}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\quad \times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 - \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 - \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))] \\
&\quad + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 - \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))] \\
&\quad + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 - \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))] \\
&\quad + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} \\
&\quad \times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))] \}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
P_\alpha(z, B_{n=0}) &= \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma}}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\quad \times \exp[-2ih_m \tan \theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin \theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin \theta_{m,ir})] \\
&\quad \times \{ \exp[iz(k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))] \\
&\quad + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos \theta_{m,vis} (1 + \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos \theta_{m,ir} (1 - \tan \theta_{m,SF} \tan \theta_{m,ir}))]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis}(1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir}(1 + \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
& + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \\
& \times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis}(1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir}(1 - \tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))]
\end{aligned}$$

であるから、

$$P_{\alpha}^* \equiv \sum_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma}}{(1 + r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1 + r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}$$

と置くと、下式が導かれる。

$$\begin{aligned}
E^+(h_m^+) &= P^* \{ t_{m2,SF} L^+_{m/m} e^{i\beta_{m,SF}h_m} [1 + r_{m2,SF} r_{m1,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})^n] \\
& \times [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z} \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z}] \\
& + t_{m2,SF} r_{m1,SF} L^-_{m/m} P(z, A_{n=0}) e^{i\beta_{m,SF}h_m} \sum_{n=0}^{\infty} (r_{m2,SF} r_{m1,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m})^n \\
& \times [e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z} \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z}] \} \\
& = P^* \frac{1}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \{ t_{m2,SF} L^+_{m/m} e^{i\beta_{m,SF}h_m} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z} \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z}] \\
& + t_{m2,SF} r_{m1,SF} L^-_{m/m} e^{i\beta_{m,SF}h_m} [e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z} \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})z} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})z}] \}
\end{aligned}$$

SFG 電場が積み重なっていくから、 z の値がゼロから h_m の間で積分することになるが、この積分は光の進行方向に沿ってなされなければならない。即ち、 $L^+_{m/m}$ がかかる項については h_m からゼロまで、 $L^-_{m/m}$ がかかる項についてはゼロから h_m まで（互いに逆の方向に）積分する。

公式 $\int e^{i(a+bz)} dz = \frac{-ie^{i(a+bz)}}{b} + C$ により、

$$\begin{aligned}
E^+_2(h_m^+) &= \frac{i}{\delta} \frac{t_{m2,SF}}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} P^*_{\alpha} \\
& \times \{ L^+_{m/m} e^{i\beta_{m,SF}h_m} \left[\frac{e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right. \\
& + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \left. \right] \\
& + r_{m1,SF} L^-_{m/m} e^{i\beta_{m,SF}h_m} \left[\frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\
& \left. + r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right] \}
\end{aligned}$$

$$+r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \Big] \Big\}$$

上で入った因子 $1/\delta$ は、ここで用いている感受率が面感受率であるのに対して通常の感受率は体積感受率であり、上で行った積分は後者を前提にしていることによる。分極シートの間隔を δ として、因子 $1/\delta$ を付けることによってディメンションを調節した。

$$\begin{aligned} t_{m2,p} L_{m/m,px}^+ &= L_{2m,px}^+ & t_{m2,s} L_{m/m,sy}^+ &= L_{2m,sy}^+ \\ t_{m2,p} L_{m/m,pz}^+ &= L_{2m,pz}^+ & t_{m2,p} L_{m/m,px}^- &= L_{2m,px}^- \\ t_{m2,s} L_{m/m,sy}^- &= L_{2m,sy}^- & t_{m2,p} L_{m/m,pz}^- &= -L_{2m,pz}^- \quad (m'' = m) \end{aligned}$$

の関係を使ってさらに整理することも可能である。

$$\begin{aligned} E_{2m}^+(h_m^+) &= \frac{i}{\delta} \frac{L_{2m}^+}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} P^* \alpha \\ &\times \left\{ e^{i\beta_{m,SF}h_m} \left[\frac{e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right. \right. \\ &+ r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \frac{e^{i(-\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m} - 1}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \Big] \\ &\pm r_{m1,SF} e^{i\beta_{m,SF}h_m} \left[\frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} + r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir}h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\ &+ r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis}h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} + r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} \frac{1 - e^{i(\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir})h_m}}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \Big] \Big\} \\ &\text{(upper sign for } P_x \text{ and } P_y \text{ components, lower sign for } P_z \text{ component)} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{i}{\delta} \frac{L_{2m}^+ e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1 + r_{1m,SF} r_{m2,SF} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} P^* \alpha \\ &\times \left\{ \frac{[e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - 1] \pm r_{m1,SF} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} h_m - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\ &+ \frac{r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}] \pm r_{m1,SF} r_{m2,vis,\beta} [e^{2i\beta_{m,vis}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\ &+ \frac{r_{m2,vis,\beta} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}] \pm r_{m1,SF} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i\beta_{m,ir}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \\ &+ \left. \frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}] \pm r_{m1,SF} [1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right\} \end{aligned}$$

よって、偏光成分ごとの表式は下式ようになる。

$$\begin{aligned}
E_{2p}^+(h_m^+) &= \frac{i}{\delta} \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \\
&\times \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{(1+r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \{ L_{2/m,p\alpha}^+ \chi_{\alpha\beta\gamma} \left[\frac{[e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - 1] + r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\
&+ \frac{r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,ir} h_m}] + r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} [e^{2i\beta_{m,vis} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\
&+ \frac{r_{m2,vis,\beta} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,vis} h_m}] + r_{m1,SF,p} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i\beta_{m,ir} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \\
&+ \left. \frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}] + r_{m1,SF,p} [1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right] \\
&+ L_{2/m,p\alpha}^+ \chi_{\alpha\beta\gamma} \left[\frac{[e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - 1] - r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\
&+ \frac{r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,ir} h_m}] - r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} [e^{2i\beta_{m,vis} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\
&+ \frac{r_{m2,vis,\beta} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,vis} h_m}] - r_{m1,SF,p} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i\beta_{m,ir} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \\
&+ \left. \frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}] - r_{m1,SF,p} [1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right] \} \quad (5.26a)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{2s}^+(h_m^+) &= \frac{i}{\delta} \sum_{\beta\gamma} E_{vis,\beta}^0 E_{ir,\gamma}^0 \\
&\times \frac{t_{1m,vis,\beta} t_{1m,ir,\gamma} e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{(1+r_{1m,SF,s} r_{m2,SF,s} e^{2i\beta_{m,SF} h_m})(1+r_{1m,vis,\beta} r_{m2,vis,\beta} e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma} r_{m2,ir,\gamma} e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times L_{2/m,sy}^+ \chi_{\alpha\beta\gamma} \left\{ \frac{[e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - 1] + r_{m1,SF,s} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \right. \\
&+ \frac{r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,ir} h_m}] + r_{m1,SF,s} r_{m2,vis,\beta} [e^{2i\beta_{m,vis} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \\
&+ \frac{r_{m2,vis,\beta} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i\beta_{m,vis} h_m}] + r_{m1,SF,s} r_{m2,ir,\gamma} [e^{2i\beta_{m,ir} h_m} - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}} \\
&+ \left. \frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma} [e^{i(-\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}] + r_{m1,SF,s} [1 - e^{i(\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}) h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}} \right\} \quad (5.26b)
\end{aligned}$$

5.4. ネットの透過 SFG 電場

、実際に観測される SFG 光の電場は、SFG 光を生成するすべての部位からの寄与を光路に沿って足し合わせたものである。従って、上で示した表式について和を取り、その「電場の和の2乗」が SFG 光

の強度である。

付録 A . 線形光学の主な関係式

周波数 ω の平面波が時刻 t 、位置 r で持つ電場ベクトル $E_\omega(r, t)$ は、指数関数を使って下式で表される。

$$E_\omega(r, t) = E_\omega^0 \exp[i(\omega t - k \cdot r)] + c. c. \quad (\text{A.1})$$

上式で、 k は波動ベクトル、 $c. c.$ は直前の項の複素共役を表す。 $\exp(\pm i\alpha) = \cos\alpha \pm i \sin\alpha$ により上式は実数になる。(A.1) 式は、単一の周波数で振動する平面波に対して、マクスウェル方程式に出てくる微分演算子 ∇ を波動ベクトル k で置き換えられることを使って導かれる。波長を λ 、屈折率を n 、誘電率を ϵ とするとき、次の関係式が成り立つ。

$$k = 2\pi/\lambda = 2n\pi/\lambda_0, \quad c = \omega/k_0, \quad \epsilon = c^2 k^2 / \omega^2, \quad n = ck/\omega. \quad (\text{A.2})$$

(下付きの 0 は真空中における値を示す。)

吸収を持つ媒質では、次の表式が使われる。

$$\begin{aligned} \epsilon &= 1 + 4\pi\chi, \quad \chi = \chi' + i\chi'', \\ n &= n(1 + i\kappa), \quad n^2(1 - \kappa^2) = \mu + 4\pi\mu\chi', \quad n^2\kappa = 2\pi\mu\chi'' \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

(κ : attenuation index, extinction index)

金属に対しては、いくつか異なる屈折率の表示方式がある。たとえば、Born & Wolf の教科書では $n(1 + i\kappa)$ 、APS のハンドブックでは $n - ik$ と表す。このように、虚数部の符号に 2 つの取り方があるのである。いずれにしても、金属表面に複素屈折率を与えれば、Snell の法則を適用することができる。

Snell の法則を使うときに定義される屈折率 n_2 と屈折角 θ_2 を複素数にして、下のような定義が Born & Wolf の教科書には示されている。下付き 1、2 が付いたものは入射側と透過側の値を示す。

金属表面の屈折率を下のように置き、空気の屈折率を 1 とする；

$$n_2 = n_2(1 + i\kappa_2) = n_2 + i n_2 \kappa_2 \quad (\text{A.4})$$

$$n_2 \cos\theta_2 = u_2 + i v_2 \quad (\text{A.5})$$

但し、 u_2 と v_2 は下式で定義される実数 ($u_2 v_2 \leq 0$) である。

$$u_2^2 = \left(\frac{1}{2}\right) \left\{ [n_2^2(1 - \kappa_2^2) - n_1^2 \sin^2 \theta_1^2] + \sqrt{[n_2^2(1 - \kappa_2^2) - n_1^2 \sin^2 \theta_1^2]^2 + 4n_2^2 \kappa_2^2} \right\} \quad (\text{A.6a})$$

$$v_2^2 = \left(\frac{1}{2}\right) \left\{ -[n_2^2(1 - \kappa_2^2) - n_1^2 \sin^2 \theta_1^2] + \sqrt{[n_2^2(1 - \kappa_2^2) - n_1^2 \sin^2 \theta_1^2]^2 + 4n_2^2 \kappa_2^2} \right\} \quad (\text{A.6b})$$

反射と屈折

界面における光の反射と屈折を考えると、屈折角に対して Snell の法則、反射率・透過率に対して Fresnel の係数を用いる。これらはいずれも界面での境界条件から導かれる。即ち、

k 、 E 、 H ベクトルの面内成分は、界面の両側で等しい。

$D (= \epsilon E)$ 、 $B (= \mu H)$ ベクトルの法線成分は、界面の両側で等しい。

この時に、入射側界面の光については入射光と反射光のベクトルのベクトル和を、透過側界面の光については透過光のベクトルだけを取る。また、薄膜などで反対面からの反射光が入射光に重畳する場合には、それからの寄与（即ち膜内で多重反射している光の電場）も加えたものに対して境界条件を適用する。

[反射係数・透過係数]

別ファイル「フレネル係数など」で示すように、入射光を s 偏光と p 偏光の 2 種類に分けて考え、入射光の振幅 E_s^i 、 E_p^i に対する反射光および透過光の振幅 (E_s^r 、 E_p^r 、 E_s^t 、 E_p^t) の相対比（振幅反射係数、透過係数）を求めると、次のようになる。（電場振幅の下付き文字は偏光方向を表し、上付き文字は入射光 (i)、反射光 (r)、透過光 (t) の区別を表す。振幅反射率および透過率では偏光方向を上付きで表しており、下付きは左側が光が入る側の媒質、右側が透過する側の媒質を表す。）

(反射係数)

$$\begin{aligned} r_{12}^s &= E_r^s/E_i^s = (k_{1z} - k_{2z})/(k_{1z} + k_{2z}) = (n_1 \cos \theta_1 - n_2 \cos \theta_2)/(n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2) \\ &= -\sin(\theta_1 - \theta_2)/\sin(\theta_1 + \theta_2) \\ r_{12}^p &= E_r^p/E_i^p = (\epsilon_1 k_{2z} - \epsilon_2 k_{1z})/(\epsilon_2 k_{1z} + \epsilon_1 k_{2z}) = (n_1 \cos \theta_2 - n_2 \cos \theta_1)/(n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2) \\ &= -\tan(\theta_1 - \theta_2)/\tan(\theta_1 + \theta_2) \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

(透過係数)

$$\begin{aligned} t_{12}^s &= E_t^s/E_i^s = 2k_{1z}/(k_{1z} + k_{2z}) = 2n_1 \cos \theta_1/(n_1 \cos \theta_1 + n_2 \cos \theta_2) \\ &= 2\cos \theta_1 \sin \theta_2/\sin(\theta_1 + \theta_2) \\ t_{12}^p &= E_t^p/E_i^p = 2\epsilon_1 k_{2z} \cos \theta_1/(\epsilon_2 k_{1z} + \epsilon_1 k_{2z}) = 2n_1 \cos \theta_1/(n_2 \cos \theta_1 + n_1 \cos \theta_2) \\ &= 2\cos \theta_1 \sin \theta_2/\sin(\theta_1 + \theta_2) \cos(\theta_1 - \theta_2) \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

(本稿では、 r_{12}^p の符号が Born & Wolf の教科書の出ている式と逆になっている。これは、入射角がブリュスター角以下のときの電場の面内成分—x, y 成分—に対する符号が同じになるようにしたためである。)

ϵ と k を使った表式は、吸収がある媒質や金属表面での反射を扱うときに有用である。

逆向きに媒質 2 から媒質 1 へと進む光に対しては下式が成り立つ。

$$r_{21}^s = -r_{12}^s, \quad r_{21}^p = -r_{12}^p \quad (\text{A.9a})$$

$$t_{21}^s = (n_2 \cos \theta_2/n_1 \cos \theta_1)t_{12}^s, \quad t_{21}^p = (n_2 \cos \theta_2/n_1 \cos \theta_1)t_{12}^p \quad (\text{A.9b})$$

界面の内向き法線を z 軸に、s-偏光の電場の方向に y 軸を、光の進行方向が正になるように x 軸を定義して、電場の軸方向成分に対する係数を求めると次のようになる。

$$\begin{aligned} E_{x,i} &= E_i^p \cos\theta_1, & E_{y,i} &= E_i^s, & E_{z,i} &= -E_i^p \sin\theta_1 \\ E_{x,r} &= E_r^p \cos\theta_1, & E_{y,r} &= E_r^s, & E_{z,r} &= E_r^p \sin\theta_1 \\ E_{x,t} &= E_t^p \cos\theta_2, & E_{y,t} &= E_t^s, & E_{z,t} &= -E_t^p \sin\theta_2 \end{aligned}$$

これより下を得る。

$$r_{12}^x = r_{12}^p, \quad r_{12}^y = r_{12}^s, \quad r_{12}^z = -r_{12}^p, \quad (\text{A.10a})$$

$$r_{21}^x = -r_{12}^p, \quad r_{21}^y = -r_{12}^s, \quad r_{21}^z = r_{12}^p, \quad (\text{A.10b})$$

$$t_{12}^x = (\cos\theta_2/\cos\theta_1)t_{12}^p, \quad t_{12}^y = t_{12}^s, \quad t_{12}^z = (\sin\theta_2/\sin\theta_1)t_{12}^p = (n_1/n_2) t_{12}^p \quad (\text{A.11a})$$

$$t_{21}^x = (n_2/n_1)t_{12}^p, \quad t_{21}^y = t_{12}^s, \quad t_{21}^z = (\cos\theta_2/\cos\theta_1) (n_2/n_1)^2 t_{12}^p \quad (\text{A.11b})$$

上式は次の関係式を満足する。

$$\begin{aligned} 1 + r_{12}^x &= t_{12}^x, \quad 1 + r_{12}^y = t_{12}^y, \quad 1 + r_{12}^z = (n_2/n_1)^2 t_{12}^z \quad (\text{電場に対する境界条件}) \\ 1 + r_{12}^s r_{21}^s &= 1 - (r_{12}^s)^2 = t_{12}^s t_{21}^s, \quad 1 + r_{12}^p r_{21}^p = 1 - (r_{12}^p)^2 = t_{12}^p t_{21}^p \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

因みに、光の強度は $n E^2 \cos\theta$ に比例するので、 $n_1 \cos\theta_1 r_{12}^2 + n_2 \cos\theta_2 t_{12}^2 = n_1 \cos\theta_1$ となり、光の強度は保存される。

付録 B. 波動のおさらい

波動は、山 / 谷のうねりが時間につれて一定の方向に動いて行く運動であるから、空間と時間の両方の関数である。山の位置、谷の位置が一平面の上にあるときを平面波、球面上にある時を球面波という。

(a) ある瞬間に進行方向に沿って取った断面は、サイン曲線になっている。変位は、

$$\cos(2\pi z/\lambda) = \cos(kz), \quad \lambda: \text{波長}, \quad k = 2\pi/\lambda: \text{波数ベクトル},$$

を使って表される。

(b) 一点に立って時間経過を見てやると、時間に対してもサイン関数になっており、

$$\cos(2\pi t/T) = \cos(\omega t) = \cos(2\pi \nu t), \quad T: \text{周期}, \quad \omega: \text{角周波数}, \quad \nu = 2\pi\omega: \text{周波数},$$

を使って表される。

上で示した二つの関数は偶関数である。よって、時間と座標の符号は意味を持たない。時間と空間の両方を取り入れた表式を作ってみよう。

単純に $\cos(kz)\cos(\omega t)$ としたのでは、時間とともに山の位置が動いてゆく事実が表現されない。これを表現するには、サイン関数の括弧内に空間と時間の両方が入る必要がある。即ち、時間と空間の関係（進

行方向)を指定するためには次のような式が必要である。

$$\cos(kz + \omega t), \quad \cos(kz - \omega t)$$

$\cos(kz + \omega t)$ では、 $kz + \omega t$ が一定(例えば 2π)となっている位置(すなわち定位相点)が、時間につれて z が小さくなる方向に動く。一方、 $\cos(kz - \omega t)$ では $kz - \omega t$ が一定な位置は時間につれて z が大きくなる方向に動く。波頭の移動速度はともに ω/k である。ちなみに、 $\cos(kz)\cos(\omega t) = (1/2)[\cos(kz - \omega t) + \cos(kz + \omega t)]$ であるから、 $\cos(kz)\cos(\omega t)$ は定在波を表す。

波の進行方向に座標軸を取る場合には、 $\cos(kz - \omega t)$ を使うのが順当である。光について言えば、その電場を次のように表す。

$$E(\omega, z) = E_0(\omega)\cos(kz - \omega t) \quad \text{又は} \quad E_0(\omega)\cos(\omega t - kz)$$

(どちらかに決めたら一貫する必要がある。ここでは前者を取る。)

$$E(\omega, z) = E_0(\omega)\cos(kz - \omega t) \tag{B.1}$$

しばしば、指数関数 $e^{i\alpha}$ は次のように三角関数と関係づけられる事を利用して関数変換が行われる。

$$e^{i\alpha} = \cos\alpha + i\sin\alpha, \quad e^{-i\alpha} = \cos\alpha - i\sin\alpha, \quad \text{であるから、}$$

$$\cos\alpha = (e^{i\alpha} + e^{-i\alpha})/2, \quad \sin\alpha = -i(e^{i\alpha} - e^{-i\alpha})/2 \tag{B.2}$$

(表現法—1)

$$E_0(\omega)\cos(kz - \omega t) = (1/2)[\exp(ikz - i\omega t) + \text{c.c.}], \quad \text{c.c. は直前にある項の複素共役を表す。}$$

(表現法—2)

$$E_0(\omega)\cos(kz - \omega t) = \text{Re}[\exp(ikz - i\omega t)]$$

$e^{i\alpha}$ の実数部と虚数部を表すものとして、 $\text{Re}(e^{i\alpha})$ と $\text{Im}(e^{i\alpha})$ の表記が使われる。

指数関数を使う場合には、次のどちらかを「約束事」にする。

- (1) 指数関数 $A\exp(i\alpha)$ において、観測量にする段階で $(1/2)[A\exp(i\alpha) + A^*\exp(-i\alpha)]$ に置き換えて、絶対値の2乗はその複素共役との積にする。
- (2) 指数関数 $A\exp(i\alpha)$ において、観測量にする段階では実数部分だけを採用する。観測量は必ず実数であり、多くの場合に2乗を使って表現する。

付録 C. 波の伝播

平面波を想定して、必要な場合を除いて入射光の振幅を1と置いて考えよう。 z 軸を波の進行方向に取る。

$$\cos(kz - \omega t)$$

(C.1)

単一かつ均一な媒質

「波が (z_0, t_0) にある」とは、時空点 (z_0, t_0) で位相が $kz_0 - \omega t_0 = 0$ となっていることを意味するものとする。点 $z = z_0 - \Delta z$ において時刻 t_0 にある波の位相は $-k\Delta z$ である。また、この波の波頭が時刻 $t = t_0 + \Delta t$ に到達する位置は、 $kz - \omega t = 0$ であるから $z = z_0 + (\omega/k)\Delta t$ である。光路に沿って波源が存在するときには、 $z_0 - \Delta z$ にある波源で時刻 $t_0 - \Delta z/(\omega/k)$ に生成した光が伝播して、時空点 (z_0, t_0) に達したときにそこで生成する光とぴったり重なる（位相が同じになる）。時空点 $(z_0 - \Delta z, t_0 - \Delta t)$ における位相は、 $-k\Delta z + \omega\Delta t$ である。

二つの媒質より成る系

界面は平面であるとする。媒質 1 側から媒質 2 との界面に光が入射するものとして、座標軸等を次のように定義する。

原点：光線の入射点に取る。（広がりがある場合にはその中央）

z 軸：媒質 1 から媒質 2 に向けた界面の法線。

x 軸：界面上でみた光の進行方向にとる。（ k ベクトルの界面への射影に合わせる）

入射角、 θ_i ：入射光線が外向き法線（-z 方向）となす角 ($0 < \theta_i < \pi/2$)。

反射角、 θ_r ：反射光線が外向き法線（-z 方向）となす角 ($0 < \theta_r < \pi/2$)。

屈折角、 θ_t ：透過光線が内向き法線（z 方向）となす角 ($0 < \theta_t < \pi/2$)。

屈折率を n_1 と n_2 、波動ベクトルの長さを k_1 と k_2 とする。（ $k = n\omega/c$ ）。

Snell の法則により、 $\theta_i = \theta_r = \theta_1$ 、 $\theta_t = \theta_2$ とするときには、 $n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2$ （ $k_1 \sin \theta_1 = k_2 \sin \theta_2$ ）である。

平面波では、進行方向に垂直な面内にあるすべての点が光電場が同じ位相を取る。進行方向での等位相面の間隔が波長で、 $\lambda = 2\pi/k = 2\pi c/\omega n$ である。（下図参照）

原点における電場が $E_0 e^{-i\omega t}$ と表される光を考える。

媒質 2 内の点 (x, z) を通る光を追跡してみよう。

(1) この光が界面に入射する位置は $(x - z \tan \theta_2, 0)$ である。

(1a) 同じ時刻 t では、原点に入射する光より $(x - z \tan \theta_2) \sin \theta_1$ だけ先に進んでいるので、入射点での位相は原点を通る光より $k_1(x - z \tan \theta_2) \sin \theta_1$ だけ進んでいる。

(1b) 逆に、原点と同じ位相は t より $(x - z \tan \theta_2) \sin \theta_1 / (\omega/k_1)$ 後に通過する。

(2) 媒質 2 の内部に入ってから (x, z) 点までの距離は $z/\cos \theta_2$ である。

(2a) 界面に入射した時の位相に比べると (x, z) 点の位相は $k_2 z / \cos \theta_2$ だけ進んでいる。

(2b) 界面に入射してから (x, z) 点に達するまでの経過時間は $\omega z / k_2 \cos \theta_2$ である。

(2c) (1a) と Snell の法則をあわせると、原点を通る光の位相 $(-\omega t)$ に対して、位相が $k_2(x \sin \theta_2 + z \cos \theta_2)$ だけ進んでいる。

媒質 1 側の点 $(x, -z)$ 、 $z > 0$ を通る反射光を追跡してみよう。

(3) この光が界面に入射する位置は $(x - z \tan \theta_1, 0)$ である。

(3a) 同じ時刻 t では、原点に入射する光より $(x - z \tan \theta_1) \sin \theta_1$ だけ先に進んでいるので、入射点での位相は原点を通る光より $k_1(x - z \tan \theta_1) \sin \theta_1$ だけ進んでいる。

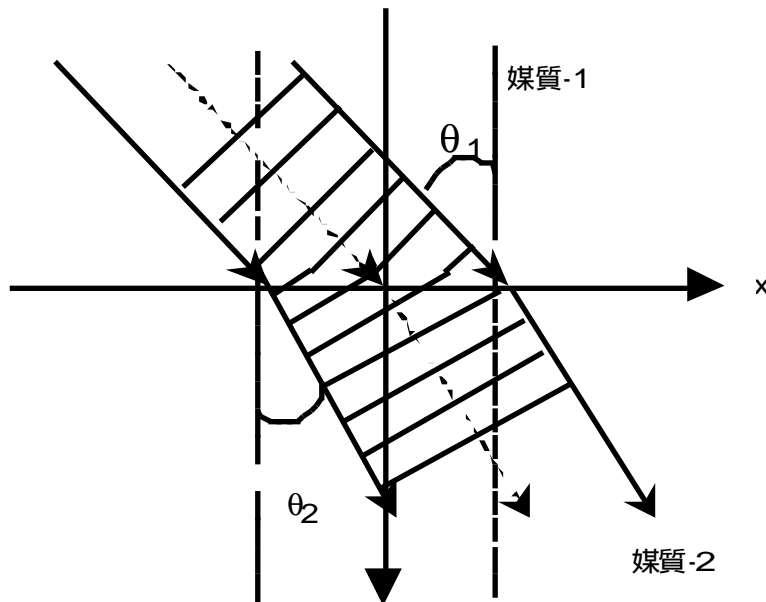
(3b) 逆に、原点と同じ位相は t より $(x - z \tan \theta_1) \sin \theta_1 / (\omega / k_1)$ 後に通過する。

(4) 反射してからの伝播距離は $z / \cos \theta_1$ である。

(4a) 界面で反射した時の位相に比べると、 (x, z) 点の位相は $k_1 z / \cos \theta_1$ だけ進んでいる。

(4b) 界面に入射してから (x, z) 点に達するまでの経過時間は $\omega z / k_1 \cos \theta_1$ である。

(4c) (3a)とあわせると、原点を通る光の位相 $(-\omega t)$ に対して、位相が $k_1(x \sin \theta_1 + z \cos \theta_1)$ だけ進んでいる。



二つの媒質の間に膜がはさまっている系

媒質 1 (入射側、1 と標記する) と媒質 2 の間に厚さ h_m の膜 (m) が挟まっている。

2 つの界面はともに平面でしかも互いに平行であるとする。

原点及び座標軸は上と同じに定義する。

定義：

1/m 界面：媒質 1 と膜の界面で、媒質 1 側に注目するとき。

m/1 界面：媒質 1 と膜の界面で、膜側に注目するとき。

2/m 界面：媒質 2 と膜の界面で、媒質 2 側に注目するとき。

m/2 界面：媒質 2 と膜の界面で、膜側に注目するとき。

n_1, n_2, n_m ：媒質 1、媒質 2、膜の屈折率

k_1, k_2, k_m ：媒質 1、媒質 2、膜の中での波動ベクトル

$\theta_1, \theta_2, \theta_m$ ：媒質 1、媒質 2、膜の中を進む光の光路が法線に対してなす角

t_{1m} ：媒質 1 側から膜側に透過する光の電場に対する透過係数。

t_{m1} ：膜側から媒質 1 側に透過する光の電場に対する透過係数。

t_{m2} ：膜側から媒質 2 側に透過する光の電場に対する透過係数。

r_{1m} ：媒質 1 側から来て m/1 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

r_{m1} ：膜側から来て m/1 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

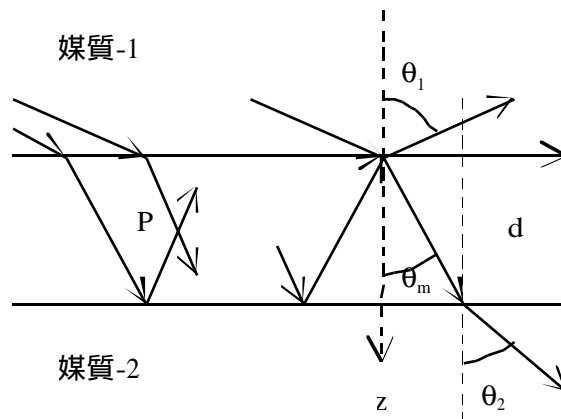
r_{m2} ：膜側から来て m/2 界面で反射する光の電場に対する反射係数。

上向き (-) 光：m/2 界面から m/1 界面に向かう光

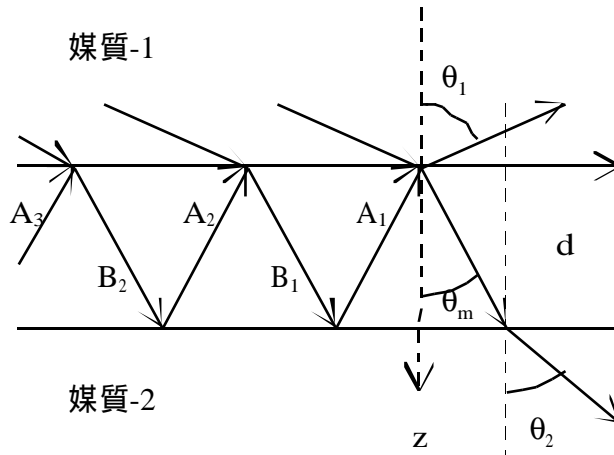
下向き (+) 光：m/1 界面から m/2 界面に向かう光

(透過係数と反射係数の表式は、付録 B に記した。)

入射光が膜内部の点 P に作る電場 (下図で、 $d = h_m$ である)



原点で反射される光に寄与する多重反射光がたどる膜内部の光路 (下図で、 $d = h_m$ である)



“ 反射光 ” は、1/m 界面で反射した光のほか、一旦膜内部に入って多重反射してから m/1 界面から出てくる上向き (-) 光が付け加わる。1/m 界面での境界条件には、この多重反射光を（膜の両側で）加えたものに適用する。

原点における反射光に含まれる多重反射光の属性は、下の通りである。

入射点の座標： $(-2 h_m \tan \theta_m, 0)$, $n = 1, 2, \dots$

入射点での光路差： $-2nh_m \tan \theta_m \sin \theta_1$ （原点に入る光との位相差： $-2nh_m k_1 \tan \theta_m \sin \theta_1$ ）

原点に達するまでの膜内部での光路長： $2nh_m / \cos \theta_m$ 、（位相の進み： $2nh_m k_m / \cos \theta_m$ ）

反射光とのネットの位相差： $2nh_m k_m \cos \theta_m = 2\pi n n_m h_m \cos \theta_m / \lambda$ ($k_1 \sin \theta_1 = k_m \sin \theta_m$ を使った)

（ n_m : 膜の屈折率、 λ : 波長）

膜内に入ってから外部に出てくるまでに行う透過と反射： $t_{1m} t_{m1} r_{m2} (r_{m2} r_{m1})^{n-1}$

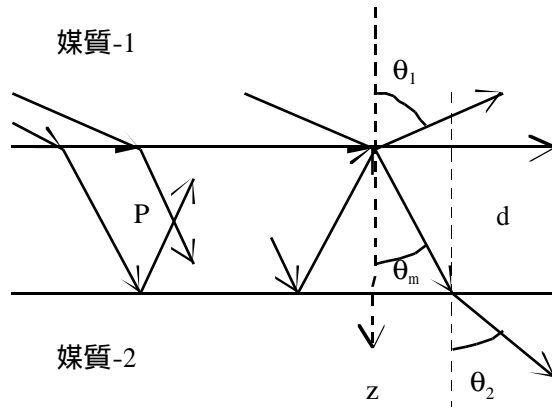
“ 反射光 ” の電場振幅（入射光の振幅を 1 として）は、下式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 & r_{1m} + t_{1m} t_{m1} r_{m2} \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^{n-1} \exp(i2\pi n 2n_m h_m \cos \theta_m / \lambda) \\
 & = r_{1m} + t_{1m} t_{m1} r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda) / [1 - r_{m2} r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] \\
 & = \{r_{1m} + [-r_{1m} r_{m1} + t_{1m} t_{m1}] r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)\} / [1 - r_{m2} r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] \\
 & = [r_{1m} + r_{m2} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] / [1 - r_{m2} r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] \quad (C.2)
 \end{aligned}$$

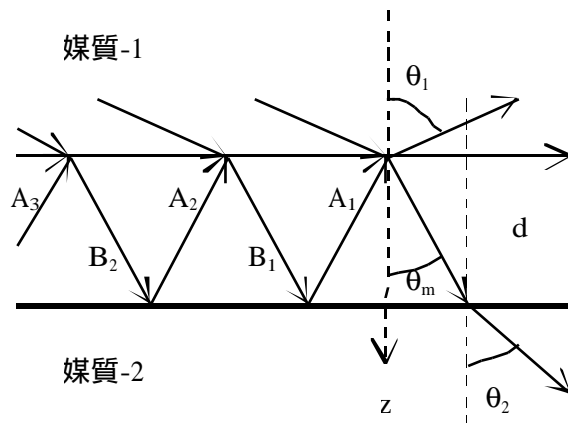
（絶対値の 2 乗が光の強度になるので、 $2n_m h_m \cos \theta_m / \lambda$ の周期で干渉による強度変化が現れる。）

（波数掃引をしたときの縞の間隔は、 $\Delta v = 1/2 n_m h_m \cos \theta_m$ となる。）

膜内部の点 P において入射光が作る電場（下図で、 $d = h_m$ である）



原点で反射される光に寄与する加重反射光がたどる膜内部の光路（下図で、 $d = h_m$ である）



“透過光”は、膜をすんなり通過する光の他に、一旦膜内部に入って多重反射した上で $m/2$ 界面から出てくる光が付け加わる。 $2/m$ 界面での境界条件にはこの多重反射光を加えたものに対して適用する。点 $(h_m \tan \theta_m, h_m)$ における透過光に含まれる多重反射光の属性は、下の通りである。

入射点の座標： $(-2nh_m \tan \theta_m, 0)$, $n = 0, 1, 2, \dots$ ($n = 0$ は透過光である。)

入射点での光路差： $-2nh_m \tan \theta_m \sin \theta_1$ (原点に入る光との位相差： $-2nh_m k_1 \tan \theta_m \sin \theta_1$)

点 $(h_m \tan \theta_m, h_m)$ に達するまでの膜内部での光路長： $(2n + 1)h_m / \cos \theta_m$ 、

(位相の進み： $(2n + 1)h_m k_m / \cos \theta_m$)

透過光とのネットの位相差： $2nh_m k_m \cos \theta_m = 2\pi n h_m \cos \theta_m / \lambda$ ($k_1 \sin \theta_1 = k_m \sin \theta_m$ を使った)

膜内に入ってから出てくるまでに行う透過と反射： $t_{1m} t_{m2} (r_{m2} r_{m1})^n$

“透過光”の電場（入射光の振幅と位相をそれぞれ 1 と $e^{-i\omega t}$ として）は、下式で与えられる。

$$[t_{1m} t_{m2} + t_{1m} t_{m2} \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \exp(i n 2\pi 2h_m \cos \theta_m / \lambda)] \exp(i 2\pi h_m \cos \theta_m / \lambda)$$

$$= t_{1m}t_{m2}\exp(i2\pi n_m h_m \cos\theta_m/\lambda)/[1 - r_{m2}r_{m1}\exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m/\lambda)] \quad (C.3)$$

(絶対値の2乗が光の強度になるので、 $2n_m h_m \cos\theta_m/\lambda$ の周期で干渉が起こる。)

(波数掃引をしたときの干渉縞の間隔は、 $\Delta v = 1/2n_m h_m \cos\theta_m$ となる。)

(反射光の山は透過光の谷になる。)

“内部光”について

この用語を、膜の内部に取った点 P における光に対して定義する。膜の内部には下向き (+) 光と上向き (-) 光の両方が存在する。

まず、膜内部の任意の点 (x, z) 、 $0^+ < z < h_m^-$ における 下向き (+) 光と上向き (-) 光について考えよう。

下向き (+) 光；

入射する位置： $[x - (2nh_m + z)\tan\theta_m, 0]$ 、 $n = 0, 1, 2, \dots$

入射光と原点に入る光との入射点での光路差： $[x - (2nh_m + z)\tan\theta_m]\sin\theta_1$ 、

位相差は： $k_1[x - (2nh_m + z)\tan\theta_m]\sin\theta_1 = k_m[x - (2nh_m + z)\tan\theta_m]\sin\theta_m$

入射してからの光路長： $(2nh_m + z)/\cos\theta_m$ 、位相の進み： $k_m(2nh_m + z)/\cos\theta_m$

原点に入射する光とのネットの位相差： $k_m[x\sin\theta_m + (2nh_m + z)\cos\theta_m]$

ネットの電場： $t_{1m}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + z\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m 2h_m \cos\theta_m)]$

$m/2$ 界面から出射する位置： $[x + (h_m - z)\tan\theta_m, 0]$

出射点までの距離： $(h_m - z)/\cos\theta_m$ 、位相の進み： $k_m(h_m - z)/\cos\theta_m$

上向き (-) 光；

入射する位置： $[x - (2nh_m - z)\tan\theta_m, 0]$ 、 $n = 1, 2, \dots$

入射光と原点に入る光との入射点での光路差： $[x - (2nh_m - z)\tan\theta_m]\sin\theta_1$ 、

位相差は： $k_1[x - (2nh_m - z)\tan\theta_m]\sin\theta_1 = k_m[x - (2nh_m - z)\tan\theta_m]\sin\theta_m$

入射してからの光路長： $(2nh_m - z)/\cos\theta_m$ 、位相の進み： $k_m(2nh_m - z)/\cos\theta_m$

原点に入射する光とのネットの位相差： $k_m[x\sin\theta_m + (2nh_m - z)\cos\theta_m]$

ネットの電場： $t_{1m}r_{m2}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + (2h_m - z)\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m 2h_m \cos\theta_m)]$

$m/2$ 界面から出射する位置： $[x + (h_m + z)\tan\theta_m, 0]$

出射点までの距離： $(h_m + z)/\cos\theta_m$ 、位相の進み： $k_m(h_m + z)/\cos\theta_m$

次に、原点から媒質 1 側に出ていく光 ($m/1$ 界面で反射すると $(h_m \tan\theta_m, h_m)$ から媒質 2 側に出ていく光になる) の光路の座標を求めてみよう。深さ z における光路上の点を考え、上向き(-)光を A_0, A_1, A_2, \dots と表し、下向き (+) 光を B_0, B_1, B_2, \dots (透過光を考えるときには $n = -1$ が加わる) と表すとき、それぞれの点の x 座標は次のようになる。

A_n : $x = -[2nh_m + z]\tan\theta_m$ 、 $n = 0, 1, 2, \dots$

原点に達するまでの位相の進み： $k_m[2nh_m + z]/\cos\theta_m$

$(h_m \tan\theta_m, h_m)$ 点に達するまでの位相の進み： $k_m[(2n + 1)h_m + z]/\cos\theta_m$

入射光があるとして

上向き (-) 光の電場： $t_{1m}r_{m2}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + (2h_m - z)\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m2h_m\cos\theta_m)]$

下向き (+) 光の電場： $t_{1m}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + z\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m2h_m\cos\theta_m)]$

$B_n : x = -[2(n+1)h_m - z]\tan\theta_m, n = (-1), 0, 1, 2, \dots$

原点に達するまでの位相の進み： $k_m[2(n+1)h_m - z]/\cos\theta_m$

$(h_m\tan\theta_m, h_m)$ 点に達するまでの位相の進み： $k_m[2(n+1)h_m - z]/\cos\theta_m$

入射光があるとして

上向き (-) 光の電場： $t_{1m}r_{m2}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + (2h_m - z)\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m2h_m\cos\theta_m)]$

下向き (+) 光の電場： $t_{1m}\exp[-i\omega t + ik_m(x\sin\theta_m + z\cos\theta_m)]/[1 - (r_{m2}r_{m1})\exp(ik_m2h_m\cos\theta_m)]$

付録 D: 媒質に挟まれた分極シートの L 係数

本文の (4.29) ~ (4.32) 式は、分極シートから発生した SFG 光が (無限に薄い) シート内で多重反射してから両側の媒質中に出てくるときの電場を分極と関係付ける係数である。シート内部での L 係数である (4.33) ~ (4.36) 式をもとにして、このことを証明しておこう。なお、媒質 1 または媒質 2 の厚みが有限でその内部の多重反射が問題になるようなときには、下で示す考え方は不十分で、(4.29) ~ (4.32) 式は厳密には使えない。

媒質 1 と媒質 2 の間に挟まれた分極シート m について考える。媒質 1 側に出てくる SFG 光は上向き (-) 光であるが、膜内部で多重反射してから出てくる成分も考慮すると、下のように表される。

(s 偏光： P_y に由来する)

$$\begin{aligned} E_{SF,s} &= [L_{m/m,y}^- P_y \frac{1}{1 - r_{m1,s} r_{m2,s}} + L_{m/m,y}^+ P_y \frac{r_{m2,s}}{1 - r_{m1,s} r_{m2,s}}] t_{m1,s} \\ &= \frac{P_y}{2n_m \cos\theta_m} \frac{(n_1 \cos\theta_1 + n_m \cos\theta_m)(n_2 \cos\theta_2 + n_m \cos\theta_m)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2)} \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_2 + n_m \cos\theta_m)} \\ &\quad \times \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_1 + n_m \cos\theta_m)} \\ &= \frac{P_y}{(n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2)} = L_{1/2,y}^- P_y \end{aligned}$$

(p 偏光： P_x に由来する成分)

$$\begin{aligned} E_{SF,p}(\text{from } P_x) &= [L_{m/m,x}^- P_x \frac{1}{1 - r_{m1,p} r_{m2,p}} + L_{m/m,x}^+ P_x \frac{r_{m2,p}}{1 - r_{m1,p} r_{m2,p}}] t_{m1,p} \\ &= \frac{\cos\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} P_x \frac{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)} \\ &\quad \times \frac{2n_m \cos\theta_2}{(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)} \end{aligned}$$

$$= \frac{\cos\theta_2}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_x = L^{-1/2,x} P_x$$

(p 偏光 : P_z に由来する成分)

$$\begin{aligned} E_{\text{SF,p}}^-(\text{from } P_z) &= [L^{-m/m,z} P_z \frac{1}{1-r_{m,p} r_{m2,p}} - L^{+m/m,z} P_z \frac{r_{m2,p}}{1-r_{m1,p} r_{m2,p}}] t_{m1,p} \\ &= \frac{\sin\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} P_z \frac{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)} \\ &\times \frac{2n_2 \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)} \\ &= \frac{(n_2/n_m) \sin\theta_m}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = \frac{(n_2/n_m)^2 \sin\theta_2}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = L^{-1/2,z} P_z \end{aligned}$$

一方、媒質 2 側に出てくる SFG 光は下向き (+) 光であるが、膜内部で多重反射してから出てくる成分も考慮すると、下のよう表される。

(s 偏光 : P_y に由来する)

$$\begin{aligned} E_{\text{SF,s}}^+ &= [L^{-m/m,y} P_y \frac{r_{m1,s}}{1-r_{m1,s} r_{m2,s}} + L^{+m/m,y} P_y \frac{1}{1-r_{m1,s} r_{m2,s}}] t_{m2,s} \\ &= \frac{P_y}{2n_m \cos\theta_m} \frac{(n_1 \cos\theta_1 + n_m \cos\theta_m)(n_2 \cos\theta_2 + n_m \cos\theta_m)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2)} \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_2 + n_m \cos\theta_m)} \\ &\times \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_1 + n_m \cos\theta_m)} \\ &= \frac{P_y}{(n_1 \cos\theta_1 + n_2 \cos\theta_2)} = L^{+1/2,y} P_y \end{aligned}$$

(p 偏光 : P_x に由来する成分)

$$\begin{aligned} E_{\text{SF,p}}^+(\text{from } P_x) &= [L^{-m/m,x} P_x \frac{r_{m1,p}}{1-r_{m1,p} r_{m2,p}} + L^{+m/m,x} P_x \frac{1}{1-r_{m1,p} r_{m2,p}}] t_{m2,p} \\ &= \frac{\cos\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} P_x \frac{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} \frac{2n_m \cos\theta_1}{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)} \\ &\times \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)} \\ &= \frac{\cos\theta_1}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_x = L^{+1/2,x} P_x \end{aligned}$$

(p 偏光 : P_z に由来する成分)

$$\begin{aligned}
E_{\text{SF},p}^+(\text{from } P_z) &= [L_{m/m,z}^- P_z \frac{r_{m1,p}}{1-r_{m1,p}r_{m2,p}} + L_{m/m,z}^+ P_z \frac{1}{1-r_{m1,p}r_{m2,p}}] t_{m2,p} \\
&= \frac{-\sin\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} P_z \frac{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} \frac{2n_1 \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)} \\
&\quad \times \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)} \\
&= \frac{-(n_1/n_m) \sin\theta_m}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = \frac{-(n_1/n_m)^2 \sin\theta_1}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = L_{1/2,z}^+ P_z
\end{aligned}$$

q.e.d.