

## 積層膜からの和周波発生 (SFG) (付録集)

本稿は、「積層膜からの和周波発生 (SFG)」の巻末にある付録を別途に集めたものである。

### 付録 A . 線形光学の主な関係式

周波数  $\omega$  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。

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

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  $\nabla$  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  $\lambda$ 、屈折率を  $n$ 、誘電率を  $\varepsilon$  とするとき、次の関係式が成り立つ。

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

(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。

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

( $\kappa$ : 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  $\theta_2$  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 )

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

#### ( 透過係数 )

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

(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。)

$\epsilon$  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。

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

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

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。

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

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

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

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

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  $2\pi$ ）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  $\omega/k$  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。

$$\cos(kz - \omega t) \tag{C.1}$$

#### 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、 $\theta_i$ ：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、 $\theta_r$ ：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、 $\theta_t$ ：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。

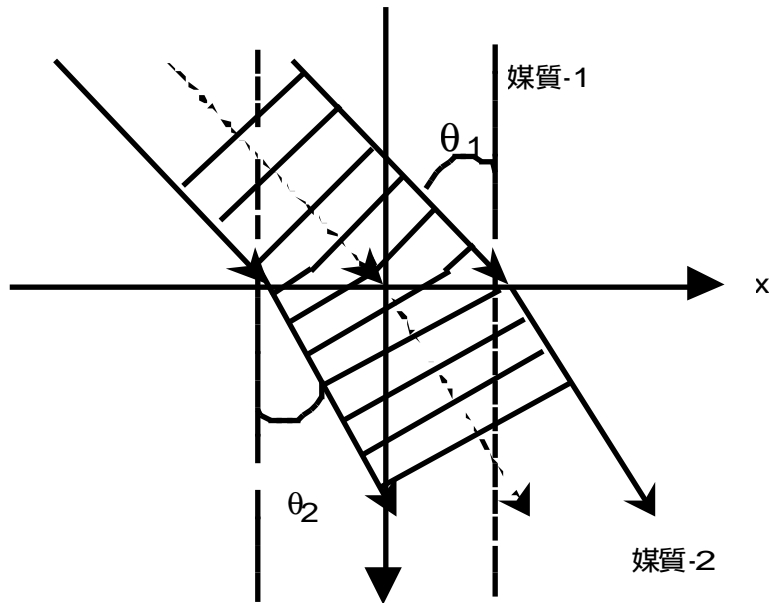
(3b) 逆に、原点と同じ位相は  $t$  より  $(x - z \tan \theta_1) \sin \theta_1 / (\omega/k_1)$  後に通過する。

(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

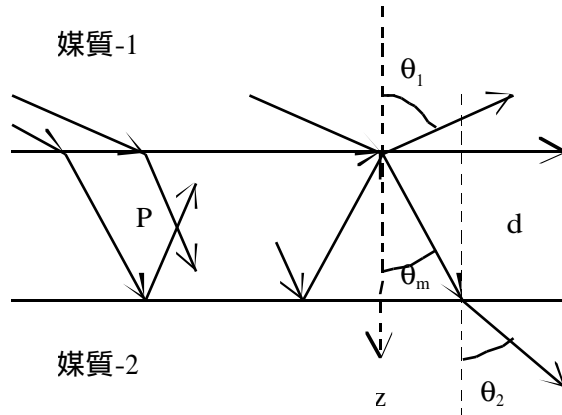
媒質 1 (入射側、1 と標記する) と媒質 2 の間に厚さ  $h_m$  の膜 (m) が挟まっている。  
 2 つの界面はともに平面でしかも互いに平行であるとする。  
 原点及び座標軸は上と同じに定義する。

### 定義：

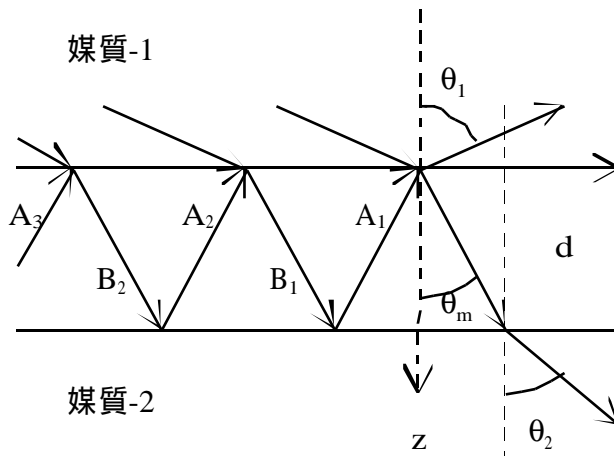
- 1/m 界面：媒質 1 と膜の界面で、媒質 1 側に注目するとき。
- m/1 界面：媒質 1 と膜の界面で、膜側に注目するとき。
- 2/m 界面：媒質 2 と膜の界面で、媒質 2 側に注目するとき。
- m/2 界面：媒質 2 と膜の界面で、膜側に注目するとき。
- $n_1, n_2, n_m$ ：媒質 1、媒質 2、膜の屈折率
- $k_1, k_2, k_m$ ：媒質 1、媒質 2、膜の中での波動ベクトル
- $\theta_1, \theta_2, \theta_m$ ：媒質 1、媒質 2、膜の中を進む光の光路が法線に対してなす角
- $t_{1m}$ ：媒質 1 側から膜側に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 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。
- $r_{m2}$ ：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： $2nh_m k_m \cos \theta_m = 2\pi n h_m \cos \theta_m / \lambda$  ( $k_1 \sin \theta_1 = k_m \sin \theta_m$  を使った)

（ $n_m$ : 膜の屈折率、 $\lambda$ : 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。

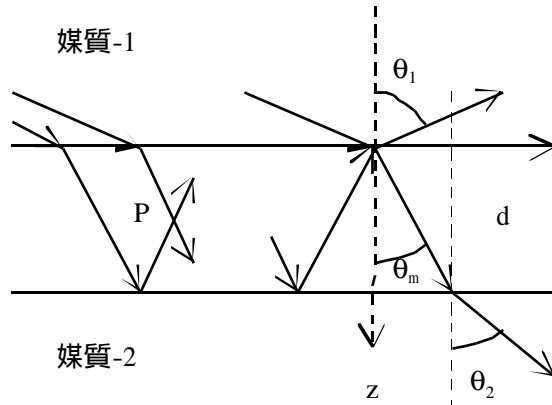
$$r_{1m} + t_{1m} t_{m1} r_{m2} \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^{n-1} \exp(i2\pi n 2n_m h_m \cos \theta_m / \lambda)$$

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

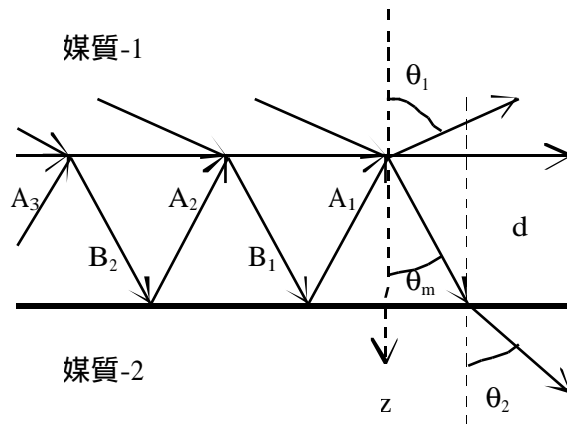
(絶対値の2乗が光の強度になるので、 $2n_m h_m \cos\theta_m/\lambda$  の周期で干渉による強度変化が現れる。)

(波数掃引をしたときの縞の間隔は、 $\Delta v = 1/2n_m h_m \cos\theta_m$  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： $2n h_m k_m \cos\theta_m = 2\pi n n_m h_m \cos\theta_m / \lambda$  ( $k_1 \sin\theta_1 = k_m \sin\theta_m$ を使った)

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。

$$\begin{aligned} & [t_{1m} t_{m2} + t_{1m} t_{m2} \sum_{n=1}^{\infty} (r_{m2} r_{m1})^n \exp(in_m 2\pi n 2h_m \cos\theta_m / \lambda)] \exp(i2\pi n_m h_m \cos\theta_m / \lambda) \\ & = t_{1m} t_{m2} \exp(i2\pi n_m h_m \cos\theta_m / \lambda) / [1 - r_{m2} r_{m1} \exp(i2\pi n_m 2h_m \cos\theta_m / \lambda)] \end{aligned} \quad (C.3)$$

(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)

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

(p 偏光： $P_x$  に由来する成分)

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

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

(p 偏光 :  $P_z$  に由来する成分)

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

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、下のように表される。

(s 偏光 :  $P_y$  に由来する)

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

(p 偏光 :  $P_x$  に由来する成分)

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

(p 偏光 :  $P_z$  に由来する成分)

$$E_{\text{SF,p}}^+(\text{from } P_z) = [L^{-m/m,z} P_z \frac{r_{m1,p}^-}{1-r_{m1,p}^+ r_{m2,p}^-} + L^{+m/m,z} P_z \frac{1}{1-r_{m1,p}^+ r_{m2,p}^-}] t_{m2,p}$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{-\sin\theta_m}{2n_m \cos\theta_m} P_z \frac{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)}{2n_m \cos\theta_m (n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} \frac{2n_1 \cos\theta_m}{(n_1 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_1)} \\
&\times \frac{2n_m \cos\theta_m}{(n_2 \cos\theta_m + n_m \cos\theta_2)} \\
&= \frac{-(n_1/n_m) \sin\theta_m}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = \frac{-(n_1/n_m)^2 \sin\theta_1}{(n_1 \cos\theta_2 + n_2 \cos\theta_1)} P_z = L^{+1/2,z} P_z
\end{aligned}$$

q.e.d.