積層膜からの和周波発生 (SFG) — 要点

1. 序

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解析する上で必要な定式化を行う。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。

2. 準備

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

原点：入射点とする。（広がりがある場合にはその中心）
z 軸：媒質１から媒質２に向けた法線。
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-1 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 に記した。）

“反射光”は、1/m 界面で反射した光に、膜内部に入って多重反射してから 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。

$$r_{1m} + t_{1m}t_{m1}r_{m2}\sum_{n=0\sim\infty}(r_{m2}r_{m1})^n\exp(i2\pi n_m 2nh_m\cos\theta_m/\lambda)$$
$$= r_{1m} + t_{1m}t_{m1}r_{m2}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)/[1 - r_{m2}r_{m1}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)]$$
$$= \{r_{1m} + [-r_{1m}r_{m1} + t_{1m}t_{m1}]r_{m2}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)\}/[1 - r_{m2}r_{m1}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)]$$
$$= [r_{1m} + r_{m2}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)]/[1 - r_{m2}r_{m1}\exp(i2\pi n_m 2h_m\cos\theta_m/\lambda)] \qquad (2.1)$$

“透過光”は、膜をすんなり通過した光と、一旦膜内部に入って多重反射してから m/2 界面から出てくる光が加わったものである。m/2 界面での境界条件は、この多重反射光を加えたものに適用する。“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。

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

4.1. 励起電場

屈折率の値及び 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ている。（加えて、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。）波長の違いを第２の下付きとして ir、vis、SF を付けることで示すことにする。

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。

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

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、通常の表面・界面の媒質１側にまばらに吸着した分子が感じる電場がこれに該当する。

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、

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

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

界面の内側にあるのは透過光だけであるから、

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

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_mtanθ$_{m,SF}$, z = 0$^-$）の励起電場

まばらに吸着した分子が感じる電場がこれに該当する。

x = -2nh_mtanθ$_{m,SF}$、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、**

$$E_{vis\alpha}(0^-)E_{ir,\beta}(0^-) = E^0{}_{vis\alpha}E^0{}_{ir,\beta}\,\frac{(1+r_{1m,vis\alpha})(1+r_{m2,vis\alpha}e^{2i\beta_{m\,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\beta})(1+r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{(1+r_{1m,vis\alpha}r_{m2,vis\alpha}e^{2i\beta_{m\,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\beta}r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}$$

$$\times\exp[i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.9)$$

4.1d. 1/m/2 系の 1/m 界面の m 側（x = -2nh_mtanθ$_{m,SF}$, 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これに該当する。**

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

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

$$\times\exp[i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.12)$$

と表される。

4.1e. 1/m/2 系の m/2 界面の 2 側（x = -(2n + 1)$h_m$tanθ$_{m,SF}$, 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。**

$$E_{vis\alpha}(h_m{}^+)E_{ir,\beta}(h_m{}^+) = E^0{}_{vis\alpha}E^0{}_{ir,\beta}\,\frac{t_{1m,vis\alpha}t_{m2,vis\alpha}t_{1m,ir,\beta}t_{m2,ir,\beta}e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m\,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis\alpha}r_{m2,ivis\alpha}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\beta}r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m\,ir}h_m})}$$

$$\times\exp[i(2n+1)h_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.15)$$

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

上向き (-) **光と下向き** (+) **光の和になる。**

$$E_{vis\alpha}(h_m{}^-)E_{ir,\beta}(h_m{}^-) = E^0{}_{vis\alpha}E^0{}_{ir,\beta}\,\frac{t_{1m,vis\alpha}t_{1m,ir,\beta}(1+r_{m2,vis\alpha})(1+r_{m2,ir,\beta})e^{i(\beta_{m,ir}+\beta_{m,vis})h_m}}{(1+r_{1m,vis\alpha}r_{m2,vis\alpha}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\beta}r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}$$

$$\times\exp[i(2n+1)h_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.18)$$

4.1g. 1/m/2 系の膜内部 [0 < z < h_m] の励起電場

以下の式では、k_m[$x$sinθ+ $z$cosθ] **を取るときに** h_m **の入り方に注意を払う必要がある。**

[B$_{n=-1,0,1,2}$: x = -(2(n + 1)h_m - z)tanθ$_{m,SF}$]: E$^+$ sources

$$E_{vis\alpha}(z)E_{ir,\beta}(z) = E^0{}_{vis\alpha}E^0{}_{ir,\beta}\,\frac{t_{1m,vis\alpha}t_{1m,ir,\beta}}{(1+r_{1m,vis\alpha}r_{m2,vis\alpha}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})(1+r_{1m,ir,\beta}r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}$$

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

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

$$
\begin{aligned}
E_{vis\alpha}(z) E_{ir,\beta}(z) &= E^0{}_{vis\alpha} E^0{}_{ir,\beta} \frac{t_{1m,vis\alpha}\, t_{1m,ir,\beta}}{(1+r_{1m,vis\alpha}\, r_{m2,vis\alpha}\, e^{2i\beta_{m,vis} h_m})(1+r_{1m,ir,\beta}\, r_{m2,ir,\beta}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m})} \\
&\times \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF} (k_{m,vis} \sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir} \sin\theta_{m,ir})] \\
&\times\{\exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+r_{m2,ir,\beta}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m} \exp[iz(k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+r_{m2,vis\alpha}\, e^{2i\beta_{m,vis} h_m} \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1-\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))] \\
&+r_{m2,vis\alpha}\, r_{m2,ir,\beta}\, e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}) h_m} \\
&\times \exp[iz(-k_{m,vis} \cos\theta_{m,vis} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir} \cos\theta_{m,ir} (1+\tan\theta_{m,SF} \tan\theta_{m,ir}))]\} \qquad (4.24)
\end{aligned}
$$

4.2. SFG 分極

SFG 分極ベクトル $\boldsymbol{P}$ の座標軸成分 $P_\alpha(\alpha = \mathrm{x, y, z})$ は、感受率テンソル $\chi_{\alpha\beta\gamma}$ を使って下で与えられる。但し、下付きの α、β、γ (α = x, y, z) は、左から SFG 光、可視光、赤外光の順に取る。

$$
P_\alpha = \sum\nolimits_{\beta,\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma} E_{\mathrm{vis},\beta} E_{\mathrm{ir},\gamma} \qquad (4.25)
$$

SFG 光が発生する部位ごとに区別して、膜からの SFG 分極を調べてみよう。

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

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。

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

しかし、表面が薄膜として完成している場合は、分子が感じる電場および分極は、膜を m' として下のように変形される。

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

$$\times\frac{t_{1m',ir,\beta}(1+r_{m'm,ir,\beta})(1+r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{1+r_{1m',ir,\beta}r_{m'm,ir,\beta}+(r_{m'm,ir,\beta}+r_{1m',ir,\beta})r_{m2,ir,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times\exp[-2inh_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}+k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})]$$

よって、

$$P_\alpha(0^-) = \sum_{\beta\gamma}\chi_{\alpha\beta\gamma}E^0{}_{vis,\beta}E^0{}_{ir,\gamma}\frac{t_{1m',vis,\beta}(1+r_{m'm,vis,\beta})(1+r_{m2,vis,\beta}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})}{1+r_{1m',vis,\beta}r_{m'm,vis,\beta}+(r_{m'm,vis,\beta}+r_{1m',vis,\beta})r_{m2,vis,\beta}e^{2i\beta_{m,vis}h_m}}$$

$$\times\frac{t_{1m',ir,\gamma}(1+r_{m'm,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{1+r_{1m',ir,\gamma}r_{m'm,ir\gamma}+(r_{m'm,ir\gamma}+r_{1m',ir\gamma})r_{m2,ir\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times\exp[-2inh_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}+k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})]$$

$$= P_\alpha(0^-, n=0)\exp[-2inh_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}+k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.26b)$$

4.2b. 1/m 界面の内側 ($x = -2nh\tan\theta_{m,SF}$, $z = 0^+$) 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) 式により下式で与えられる。

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

$$\times\exp[i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})]$$

$$= P_\alpha(0^+, n=0)\exp[i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.27)$$

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) 式により下式で与えられる。

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

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

$$= P_\alpha(h_m^+, n=0)\exp[2inh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir}-k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \qquad (4.28a)$$

薄膜 m" が分極層になっている場合は、

$$P_\alpha(h_m^+) = \sum_{\beta,\gamma}\chi_{\alpha\beta\gamma}E^0{}_{vis,\beta}E^0{}_{ir\gamma}\frac{t_{1m,vis,\beta}t_{mm'',vis,\beta}(1+r_{m''2,vis,\beta})e^{i\beta_{m,vis}h_m}}{(1+r_{mm'',vis,\beta}r_{m''2,vis,\beta})+r_{1m,vis,\beta}(r_{mm'',vis,\beta}+r_{m''2,vis,\beta})e^{2i\beta_{m,vis}h_m}}$$

$$\times\frac{t_{1m,ir\gamma}t_{mm'',ir,\gamma}(1+r_{m''2,ir\gamma})e^{i\beta_{m,ir}h_m}}{(1+r_{mm'',ir\gamma}r_{m''2,ir,\gamma})+r_{1m,ir\gamma}(r_{mm'',ir\gamma}+r_{m''2,ir,\gamma})e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

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

$$= P_\alpha(h_m^+, n=0)\exp[2inh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \quad (4.28b)$$

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

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) 式により下式で与えられる。

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

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

$$= P_\alpha(h_m^-, n=0)\exp[i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(-k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir} - k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis})] \quad (4.29)$$

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

　(4.21) 式により下式で与えられる。

[B$_n$]: E^+ sources

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

$$\times\exp[-2ih_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir})]$$

$$\times\{\exp[iz(k_{m,vis}\cos\theta_{m,vis}(1+\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir}\cos\theta_{m,ir}(1+\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,ir}))]$$

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

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

$$+r_{m2,vis,\beta}r_{m2,ir\gamma}e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}$$

$$\times\exp[iz(-k_{m,vis}\cos\theta_{m,vis}(1-\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir}\cos\theta_{m,ir}(1-\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,ir}))]\}$$

$$\times\exp[-i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir})]$$

$$= P_\alpha(z, n=0)\exp[-i2nh_m\tan\theta_{m,SF}(k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir})] \quad (4.30a)$$

[A$_n$]: E^- sources

　(4.24) 式により下式で与えられる。

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

$$\times\{\exp[iz(k_{m,vis}\cos\theta_{m,vis}(1-\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,vis}) + k_{m,ir}\cos\theta_{m,ir}(1-\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,ir}))]$$

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

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

$$+r_{m2,vis,\beta}\, r_{m2,ir,\gamma}\, e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}$$

$$\times \exp[iz(-k_{m,vis}\cos\theta_{m,vis}(1+\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,vis}) - k_{m,ir}\cos\theta_{m,ir}(1+\tan\theta_{m,SF}\tan\theta_{m,ir}))]\}$$

$$\times \exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF}(k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir})]$$

$$= P_\alpha(z, n=0)\exp[-i2nh_m \tan\theta_{m,SF}(k_{m,vis}\sin\theta_{m,vis} + k_{m,ir}\sin\theta_{m,ir})] \quad (4.30b)$$

分極が無限に薄いシート状になっているときに、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。そこで、彼らの成果に基づいて考えることにする。**

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** $4\pi i\omega_{SF}/c$ **（屈折率の代わりに波数ベクトルを使うときに は**$4\pi i\omega_{SF}^{\ 2}/c^2$ **）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** (α = 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、

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

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

$$L^-_{1/m,p,z} = (n_{m,SF}/n_{m',SF})\sin\theta_{m',SF}/(n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF})$$
$$= (n_{m,SF}/n_{m',SF})^2\sin\theta_{m,SF}/(n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \quad (5.1c)$$

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

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

$$L^+_{1/m,p,z} = -(n_{1,SF}/n_{m',SF})\sin\theta_{m',SF}/(n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF})$$
$$= -(n_{1,SF}/n_{m',SF})^2\sin\theta_{1,SF}/(n_{1,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{1,SF}) \quad (5.2c)$$

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、

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

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

$$L^-_{2/m,p,z} = (n_{2,SF}/n_{m'',SF})\sin\theta_{m'',SF}/(n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF})$$
$$= (n_{2,SF}/n_{m'',SF})^2\sin\theta_{2,SF}/(n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF}) \quad (5.3c)$$

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

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

$L^{+}_{2/m,p,z} = -(n_{m,SF}/n_{m'',SF})\sin\theta_{m'',SF}/(n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF})$

$= -(n_{m,SF}/n_{m'',SF})^{2}\sin\theta_{m,SF}/(n_{2,SF}\cos\theta_{m,SF} + n_{m,SF}\cos\theta_{2,SF})$ (5.4c)

積層膜内部の分極シートからの光生成に対しては、

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

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

$L^{-}_{m/m,p,z} = -L^{+}_{m/m,p,z} = \sin\theta_{m,SF}/(2n_{m,SF}\cos\theta_{m,SF})$ (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）**

$E^{-}_{1,p}(z = 0) = L^{-}_{1/m,p,x}P_x(0) + L^{-}_{1/m,p,z}P_z(0)$ (5.6a)

$E^{-}_{1,s}(z = 0) = L^{-}_{1/m,s,y}P_y(0)$ (5.6b)

$E^{+}_{m,p}(z = 0) = L^{+}_{1/m,p,x}P_x(0) + L^{+}_{1/m,p,z}P_z(0)$ (5.7a)

$E^{+}_{m,s}(z = 0) = L^{+}_{1/m,s,y}P_y(0)$ (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）

$E^{-}_{m,p}(z = h_m) = L^{-}_{2/m,p,x}P_x(h_m) + L^{-}_{2/m,p,z}P_z(h_m)$ (5.8a)

$E^{-}_{m,s}(z = h_m) = L^{-}_{2/m,s,y}P_y(h_m)$ (5.8b)

$E^{+}_{2,p}(z = h_m) = L^{+}_{2/m,p,x}P_x(h_m) + L^{+}_{2/m,p,z}P_z(h_m)$ (5.9a)

$E^{+}_{2,s}(z = h_m) = L^{+}_{2/m,s,y}P_y(h_m)$ (5.9b)

$P(z)$ に由来するもの：

$E^{-}_{m,p}(z) = L^{-}_{m/m,p,x}P_x(z) + L^{-}_{m/m,p,z}P_z(z)$ (5.10a)

$E^{-}_{m,s}(z) = L^{-}_{m/m,s,y}P_y(z)$ (5.10b)

$E^{+}_{m,p}(z) = L^{+}_{m/m,p,x}P_x(z) + L^{+}_{m/m,p,z}P_z(z)$ (5.11a)

$E^{+}_{m,s}(z) = L^{+}_{m/m,s,y}P_y(z)$ (5.11b)

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

($1/\cos\theta = \cos\theta + \sin\theta\tan\theta$ **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_t**、分極の** x、y、z **成分を** P_a **で表して)**

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

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

$$\times \frac{(1+r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{-}_{1/m,px}\chi_{x\beta\gamma}+(1-r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{-}_{1/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}}{(1+r_{1m,SF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})} \tag{5.13a}$$

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

$$\times \frac{(1+r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})}{(1+r_{1m,SF,s}r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})}L^{-}_{1/m,sy}\chi_{y\beta\gamma} \tag{5.13b}$$

表面が薄膜として完成しているときに、この薄膜（屈折率 m' **）を形成する分子からの** SFG **に対しては、膜内部での多重反射を考慮する必要がある。**

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

$$\times \frac{t_{1m',ir,\gamma}(1+r_{m'm,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{1+r_{1m',ir,\gamma}r_{m'm,ir\gamma}+(r_{m'm,ir\gamma}+r_{1m',ir\gamma})r_{m2,ir\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{(1+r_{1m',SF,p}r_{m'm,SF,p})[(1+r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})\chi_{x\beta\gamma}L^{-}_{1/m,px}+(1-r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})\chi_{z\beta\gamma}L^{-}_{1/m,pz}]}{1+r_{1m',SF,p}r_{m'm,SF,p}+r_{m2,SF,p}(r_{1m',SF,p}+r_{m'm,SF,p})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.14a}$$

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

$$\times \frac{t_{1m',ir,\gamma}(1+r_{m'm,ir,\gamma})(1+r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})}{1+r_{1m',ir,\gamma}r_{m'm,ir\gamma}+(r_{m'm,ir\gamma}+r_{1m',ir\gamma})r_{m2,ir\gamma}e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{(1+r_{1m'SF,s}r_{m'mSF,s})(1+r_{m2SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})}{1+r_{1m',SF,s}r_{m'mSF,s}+r_{m2,SF,s}(r_{1m'SF,s}+r_{m'mSF,s})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}\chi_{y\beta\gamma}L^{-}_{1/m,sy} \tag{5.14b}$$

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

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

$$\times \frac{[(1+r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{-}_{1/m,px}\chi_{x\beta\gamma}+(1-r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{-}_{1/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}]}{1+r_{1m,SF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.15a}$$

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

$$\times \frac{(1+r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{-}{}_{1/m,sy}\chi_{y\beta\gamma}}{1+r_{1m,SF,s}r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.15b}$$

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 SFG

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

$$\times \frac{t_{m1,p}e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,p}r_{m2,p}2e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}[L^{-}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma}+L^{-}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}] \tag{5.16a}$$

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

$$\times \frac{t_{m1,s}e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,s}r_{m2,s}2e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}L^{-}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma} \tag{5.16b}$$

SFG を出す界面が屈折率 m'' の薄膜の時には、

$$E^{-}{}_{1p}(0^{-})=\sum_{\beta,\gamma}E^{0}{}_{vis,\beta}E^{0}{}_{ir,\gamma}\frac{t_{1m,vis,\beta}t_{mm'',vis,\beta}(1+r_{m''2,vis,\beta})e^{i\beta_{m,vis}h_m}}{(1+r_{mm'',vis,\beta}r_{m''2,vis,\beta})+r_{1m,vis,\beta}(r_{mm'',vis,\beta}+r_{m''2,vis,\beta})e^{2i\beta_{m,vis}h_m}}$$

$$\times \frac{t_{1m,ir,\gamma}t_{mm'',ir,\gamma}(1+r_{m''2,ir,\gamma})e^{i\beta_{m,ir}h_m}}{(1+r_{mm'',ir,\gamma}r_{m''2,ir,\gamma})+r_{1m,ir,\gamma}(r_{mm'',ir,\gamma}+r_{m''2,ir,\gamma})e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{t_{m1,SF,p}e^{i\beta_{m,SF}h_m}(1+r_{mm'',SF,p}r_{m''2,SF,p})}{1+r_{mm'',SF,p}r_{m''2,SF,p}+r_{1m,SF,p}(r_{mm'',SF,p}+r_{m''2,SF,p})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}[L^{-}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma}+L^{-}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}] \tag{5.17a}$$

$$E^{-}{}_{1s}(0^{-})=\sum_{\beta\gamma}E^{0}{}_{vis,\beta}E^{0}{}_{ir,\gamma}\frac{t_{1m,vis,\beta}t_{mm'',vis,\beta}(1+r_{m''2,vis,\beta})e^{i\beta_{m,vis}h_m}}{(1+r_{mm'',vis,\beta}r_{m''2,vis,\beta})+r_{1m,vis,\beta}(r_{mm'',vis,\beta}+r_{m''2,vis,\beta})e^{2i\beta_{m,vis}h_m}}$$

$$\times \frac{t_{1m,ir,\gamma}t_{mm'',ir,\gamma}(1+r_{m''2,ir,\gamma})e^{i\beta_{m,ir}h_m}}{(1+r_{mm'',ir,\gamma}r_{m''2,ir,\gamma})+r_{1m,ir,\gamma}(r_{mm'',ir,\gamma}+r_{m''2,ir,\gamma})e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{t_{m1,SF,s}e^{i\beta_{m,SF}h_m}(1+r_{mm'',SF,s}r_{m''2,SF,s})}{1+r_{mm'',SF,s}r_{m''2,SF,s}+r_{1m,SF,s}(r_{mm'',SF,s}+r_{m''2,SF,s})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}L^{-}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma} \tag{5.17b}$$

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

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

$$\times\frac{t_{m1,SF,p}e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,SF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}(L^{-}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma}+L^{-}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}) \tag{5.18a}$$

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

$$\times\frac{t_{m1,SF,s}e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,SF,s}r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}}L^{-}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma} \tag{5.18b}$$

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

$$E^{-}{}_{1p}(0^{-})=\frac{i}{\delta}\sum_{\beta,\gamma}E^{0}{}_{vis,\beta}E^{0}{}_{ir,\gamma}\times\frac{t_{m1,SF,p}t_{1m,vis,\beta}t_{1m,ir,\gamma}}{(1+r_{1m,SF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})(1+r_{1m,vis,\beta}r_{m2,vis,\beta}e^{2i\beta_{m,ir}h_m})(1+r_{1m,ir,\gamma}r_{m2,ir,\gamma}e^{2i\beta_{m,vis}h_m})}$$

$$\times\{\frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{x\beta\gamma}L^{-}{}_{1/m,px}[r_{m2,vis,\beta}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})+r_{m2,SF,p}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,SF}h_m})]$$

$$+\chi_{z\beta\gamma}L^{-}{}_{1/m,pz}[r_{m2,vis,\beta}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})-r_{m2,SF,p}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,SF}h_m})]\}$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{x\beta\gamma}L^{-}{}_{1/m,px}[r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,vis}h_m})+r_{m2,SF,p}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,ir})h_m})]$$

$$+\chi_{z\beta\gamma}L^{-}{}_{1/m,pz}[r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,vis}h_m})-r_{m2,SF,p}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,ir})h_m})]\}$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{x\beta\gamma}L^{-}{}_{m/m,px}[r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,ir}h_m})+r_{m2,SF,p}r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis})h_m})]$$

$$+\chi_{z\beta\gamma}L^{-}{}_{m/m,pz}[r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i\beta_{m,ir}h_m})-r_{m2,SF,p}r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis})h_m})]\}$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{x\beta\gamma}L^{-}{}_{m/m,px}[(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1)+r_{m2,SF,p}r_{m2,vis,\beta}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})]$$

$$+\chi_{z\beta\gamma}L^{-}{}_{m/m,pz}[(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-1)-r_{m2,SF,p}r_{m2,vis,\beta}r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}-e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})]\}$$

(5.19a)

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

$$\times\{\frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{y\beta\gamma} L^{-}{}_{1/m,sy}[r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}) + r_{m2,SF,s}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,SF}h_m})]$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}-\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{y\beta\gamma} L^{-}{}_{1/m,sy}[r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}) + r_{m2,SF,s} r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,ir})h_m})]$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}-\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{y\beta\gamma} L^{-}{}_{m/m,sy}[r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}) + r_{m2,SF,s} r_{m2,vis,\beta}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis})h_m})]$$

$$+\frac{1}{\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir}}$$

$$\times\{\chi_{y\beta\gamma} L^{-}{}_{m/m,sy}[(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - 1) + r_{m2,SF,s} r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma}(e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m})] \tag{5.19b}$$

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、生成するすべての部分からの** SFG **光電場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「和を２乗したもの」が** SFG **光の強度である。**

5.3.　透過SFGの電場

透過 SF G**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、**$x = 0 \sim h_{\mathrm{m}}\tan\theta_{\mathrm{m,SF}}$ **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。**

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

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

$$\times \frac{t_{1m,SF,p}\, t_{m2,SF,p}\, e^{i\beta_{m,SF}h_m}}{1+r_{1m,SF,p} r_{m2,SF,p} e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} [\chi_{x\beta\gamma} L^{+}{}_{m/1,px} + \chi_{z\beta\gamma} L^{+}{}_{m/1,pz}] \tag{5.20a}$$

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

$$\times \frac{t_{1m,SF,s}\, t_{m2,SF,s}\, e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m,SF,s}\, r_{m2,SF,s}\, e^{2i\beta_{m,SF} h_m}} \chi_{y\beta\gamma} L^{+}{}_{m/1,sy} \tag{5.20b}$$

発光層が薄膜 m' のときには、

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

$$\times \frac{t_{1m',ir,\gamma}(1 + r_{m'm,ir,\gamma})(1 + r_{m2,ir,\gamma}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1 + r_{1m',ir,\gamma}\, r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma})\, r_{m2,ir,\gamma}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}$$

$$\times \frac{t_{m2,SF,p}(1 + r_{1m',SF,p}\, r_{m'm,SF,p})\, e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m',SF,p}\, r_{m'm,SF,p} + r_{m2,SF,p}(r_{mm',SF,p} + r_{m'1,SF,p})\, e^{2i\beta_{m,SF} h_m}})(L^{+}{}_{1/m,px}\chi_{x\beta\gamma} + L^{+}{}_{1/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}) \tag{5.21a}$$

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

$$\times \frac{t_{1m',ir,\gamma}(1 + r_{m'm,ir,\gamma})(1 + r_{m2,ir,\gamma}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m})}{1 + r_{1m',ir,\gamma}\, r_{m'm,ir,\gamma} + (r_{m'm,ir,\gamma} + r_{1m',ir,\gamma})\, r_{m2,ir,\gamma}\, e^{2i\beta_{m,ir} h_m}}$$

$$\times \frac{t_{m2,SF,s}(1 + r_{1m',SF,s}\, r_{m'm,SF,s})\, e^{i\beta_{m,SF} h_m}}{1 + r_{1m',SF,s}\, r_{m'm,SF,s} + r_{m2,SF,s}(r_{mm',SF,s} + r_{m'1,SF,s})\, e^{2i\beta_{m,SF} h_m}})L^{+}{}_{1/m,sy}\chi_{y\beta\gamma} \tag{5.21b}$$

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

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

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

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

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

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

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

$$\times \frac{(1-r_{1m,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma} + (1+r_{1m,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}}{1+r_{1m,SF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.23a}$$

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

$$\times \frac{(1-r_{1m,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma}}{1+r_{1m,SF,s}r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.23b}$$

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

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

$$\times \frac{(1+r_{m1,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma} + (-1+r_{m1,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}}{1+r_{1mSF,p}r_{m2,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.24a}$$

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

$$\times \frac{(1+r_{m1,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma}}{1+r_{1mSF,s}r_{m2,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.24b}$$

裏面の SFG **分極が薄膜** (m") **によるときには、**

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

$$\times \frac{t_{1m,ir,\gamma}t_{mm",ir,\gamma}(1+r_{m"2,ir,\gamma})e^{i\beta_{m,ir}h_m}}{(1+r_{mm",ir,\gamma}r_{m"2,ir,\gamma})+r_{1m,ir,\gamma}(r_{mm",ir,\gamma}+r_{m"2,ir,\gamma})e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{(1+r_{mm",SF,p}r_{m"2,SF,p})[(1-r_{1m,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma} + (1+r_{1m,SF,p}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}]}{1+r_{mm",SF,p}r_{m"2,SF,p}+r_{1m,SF,p}(r_{mm",SF,p}+r_{m"2,SF,p})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.25a}$$

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

$$\times \frac{t_{1m,ir,\gamma}t_{mm",ir,\gamma}(1+r_{m"2,ir,\gamma})e^{i\beta_{m,ir}h_m}}{(1+r_{mm",ir,\gamma}r_{m"2,ir,\gamma})+r_{1m,ir,\gamma}(r_{mm",ir,\gamma}+r_{m"2,ir,\gamma})e^{2i\beta_{m,ir}h_m}}$$

$$\times \frac{(1+r_{mm",SF,s}r_{m"2,SF,s})(1-r_{1m,SF,s}e^{2i\beta_{m,SF}h_m})L^{+}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma}}{1+r_{mm",SF,s}r_{m"2,SF,s}+r_{1m,SF,s}(r_{mm",SF,s}+r_{m"2,SF,s})e^{2i\beta_{m,SF}h_m}} \tag{5.25b}$$

5.3e. 膜バルク [$0 < z < h_m$, $A_{n=0,1,2}$: $x = -2nh_m\tan\theta_{m,SF} - z\tan\theta_{m,SF}$, $B_{n=-1,0,1,2}$: $x = -(2n+1)h_m\tan\theta_{m,SF} + z\tan\theta_{m,SF}$] からの透過 SFG

$$E^{+}{}_{2p}(h_m{}^{+}) = \frac{i}{\delta}\sum_{\beta\gamma} E^{0}{}_{vis,\beta} E^{0}{}_{ir,\gamma}$$

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

$$\times\{L^{+}{}_{2/m,px}\chi_{x\beta\gamma}[\frac{[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - 1] + r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} r_{m2ir,\gamma}[e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}] + r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta}[e^{2i\beta_{m,vis}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}] + r_{m1,SF,p} r_{m2,ir,\gamma}[e^{2i\beta_{m,ir}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}] + r_{m1,SF,p}[1 - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}]$$
$$+L^{+}{}_{2/m,pz}\chi_{z\beta\gamma}[\frac{[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - 1] - r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta} r_{m2ir,\gamma}[e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}] - r_{m1,SF,p} r_{m2,vis,\beta}[e^{2i\beta_{m,vis}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}] - r_{m1,SF,p} r_{m2,ir,\gamma}[e^{2i\beta_{m,ir}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}] - r_{m1,SF,p}[1 - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}]\} \tag{5.26a}$$

$$E^{+}{}_{2s}(h_m{}^{+}) = \frac{i}{\delta}\sum_{\beta,\gamma} E^{0}{}_{vis,\beta} E^{0}{}_{ir,\gamma}$$

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

$$\times L^{+}{}_{2/m,sy}\chi_{y\beta\gamma}\{\frac{[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - 1] + r_{m1,SF,s} r_{m2,vis,\beta} r_{m2ir,\gamma}[e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,ir}h_m}] + r_{m1,SF,s} r_{m2,vis,\beta}[e^{2i\beta_{m,vis}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} - \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i\beta_{m,vis}h_m}] + r_{m1,SF,s} r_{m2,ir,\gamma}[e^{2i\beta_{m,ir}h_m} - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} - \beta_{m,ir}}$$
$$+\frac{r_{m2,vis,\beta} r_{m2,ir,\gamma}[e^{i(-\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m} - e^{2i(\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}] + r_{m1,SF,s}[1 - e^{i(\beta_{m,SF}+\beta_{m,vis}+\beta_{m,ir})h_m}]}{\beta_{m,SF} + \beta_{m,vis} + \beta_{m,ir}}\} \tag{5.26b}$$

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、べての部分からの寄与を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「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 $\boldsymbol{r}$ で持つ電場ベクトル $\boldsymbol{E}_\omega(\boldsymbol{r}, t)$ は、指数関数を使って下式で表される。

$$\boldsymbol{E}_\omega(\mathrm{r}, \mathrm{t}) = \boldsymbol{E}_\omega^0 \exp[i(\omega t - \boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})] + \mathrm{c.\,c.} \qquad \text{(A.1)}$$

上式で、$\boldsymbol{k}$ 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 $\boldsymbol{k}$ 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。

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

（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。

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

(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。いずれにしろ、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；

$$n_2 = n_2(1 + i\kappa_2) = n_2 + i\,n_2\kappa_2 \qquad \text{(A.4)}$$
$$n_2\cos\theta_2 = u_2 + iv_2 \qquad \text{(A.5)}$$

但し、u_2 と v_2 は下式で定義される実数（$u_2v_2 \leq 0$）である。

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

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

反射と屈折

界面における光の反射と屈折を考えるときは、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、

　$\boldsymbol{k}$、$\boldsymbol{E}$、$\boldsymbol{H}$ ベクトルの面内成分は、界面の両側で等しい。
　$\boldsymbol{D}$ (= ε$\boldsymbol{E}$)、$\boldsymbol{B}$ (= μ$\boldsymbol{H}$) 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）

$$r_{12}^s = E^s_r/E^s_i = (k_{1z} - k_{2z})/(k_{1z} + k_{2z}) = (n_1\cos\theta_1 - n_2\cos\theta_2)/(n_1\cos\theta_1 + n_2\cos\theta_2)$$
$$= -\sin(\theta_1 - \theta_2)/\sin(\theta_1 + \theta_2)$$
$$r_{12}^p = E^p_r/E^p_i = (\varepsilon_1 k_{2z} - \varepsilon_2 k_{1z})/(\varepsilon_2 k_{1z} + \varepsilon_1 k_{2z}) = (n_1\cos\theta_2 - n_2\cos\theta_1)/(n_2\cos\theta_1 + n_1\cos\theta_2)$$
$$= -\tan(\theta_1 - \theta_2)/\tan(\theta_1 + \theta_2) \qquad \text{(A.7)}$$

（透過係数）

$$t_{12}^s = E^s_t/E^s_i = 2k_{1z}/(k_{1z} + k_{2z}) = 2n_1\cos\theta_1/(n_1\cos\theta_1 + n_2\cos\theta_2)$$
$$= 2\cos\theta_1\sin\theta_2/\sin(\theta_1 + \theta_2)$$
$$t_{12}^p = E^p_t/E^p_i = 2\varepsilon_1 k_{2z}\cos\theta_1/(\varepsilon_2 k_{1z} + \varepsilon_1 k_{2z}) = 2n_1\cos\theta_1/(n_2\cos\theta_1 + n_1\cos\theta_2)$$
$$= 2\cos\theta_1\sin\theta_2/\sin(\theta_1 + \theta_2)\cos(\theta_1 - \theta_2) \qquad \text{(A.8)}$$

（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。

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

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。

$$E_{x,i} = E^p_i\cos\theta_1,\quad E_{y,i} = E^s_{ri},\quad E_{z,i} = -E^p_i\sin\theta_1$$

$E_{x,r} = E^p{}_r\cos\theta_1$,　$E_{y,r} = E^s{}_r$,　$E_{z,r} = E^p{}_r\sin\theta_1$

$E_{x,t} = E^p{}_t\cos\theta_2$,　$E_{y,t} = E^s{}_t$,　$E_{z,t} = -E^p{}_t\sin\theta_2$

これより下を得る。

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

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

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

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

上式は次の関係式を満足する。

$1 + r_{12}{}^x = t_{12}{}^x$, $1 + r_{12}{}^y = t_{12}{}^y$, $1 + r_{12}{}^z = (n_2/n_1)^2 t_{12}{}^z$　**（電場に対する境界条件）**

$1 + r_{12}{}^s r_{21}{}^s = 1 - (r_{12}{}^s)^2 = t_{12}{}^s\, t_{21}{}^s$,　$1 + r_{12}{}^p r_{21}{}^p = 1 - (r_{12}{}^p)^2 = t_{12}{}^p t_{21}{}^p$　(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 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)

$$E^-_{SF,s} = \left[L^-{}_{m/m,y}P_y \frac{1}{1-r_{m1,s}r_{m2,s}} + L^+{}_{m/m,y}P_y \frac{r_{m2,s}}{1-r_{m1,s}r_{m2,s}}\right]t_{m1,s}$$

$$= \frac{P_y}{2n_m\cos\theta_m}\,\frac{(n_1\cos\theta_1 + n_m\cos\theta_m)(n_2\cos\theta_2 + n_m\cos\theta_m)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_1 + n_2\cos\theta_2)}\,\frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_2\cos\theta_2 + n_m\cos\theta_m)} \times \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_1\cos\theta_1 + n_m\cos\theta_m)}$$

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

(p 偏光：P_x に由来する成分)

$$E^-_{SF,p}(\text{from } P_x) = \left[L^-{}_{m/m,x}P_x \frac{1}{1-r_{m1,p}r_{m2,p}} + L^+{}_{m/m,x}P_x \frac{r_{m2,p}}{1-r_{m1,p}r_{m2,p}}\right]t_{m1,p}$$

$$= \frac{\cos\theta_m}{2n_m\cos\theta_m} P_x \frac{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_2 + n_2\cos\theta_1)} \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)}$$

$$\times \frac{2n_m\cos\theta_2}{(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}$$

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

(p 偏光：P_z に由来する成分)

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

$$= \frac{\sin\theta_m}{2n_m\cos\theta_m} P_z \frac{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_2 + n_2\cos\theta_1)} \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)}$$

$$\times \frac{2n_2\cos\theta_m}{(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}$$

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

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)

$$E^{+}_{\mathrm{SF},s} = [L^{-}_{m/m,y} P_y \frac{r_{m1,s}}{1 - r_{m1,s} r_{m2,s}} + L^{+}_{m/m,y} P_y \frac{1}{1 - r_{m1,s} r_{m2,s}}] t_{m2,s}$$

$$= \frac{P_y}{2n_m\cos\theta_m} \frac{(n_1\cos\theta_1 + n_m\cos\theta_m)(n_2\cos\theta_2 + n_m\cos\theta_m)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_1 + n_2\cos\theta_2)} \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_2\cos\theta_2 + n_m\cos\theta_m)}$$

$$\times \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_1\cos\theta_1 + n_m\cos\theta_m)}$$

$$= \frac{P_y}{(n_1\cos\theta_1 + n_2\cos\theta_2)} = L^{+}_{1/2,y} P_y$$

(p 偏光：P_x に由来する成分)

$$E^{+}_{\mathrm{SF},p}(\mathrm{from}\ P_x) = [L^{-}_{m/m,x} P_x \frac{r_{m1,p}}{1 - r_{m1,p} r_{m2,p}} + L^{+}_{m/m,x} P_x \frac{1}{1 - r_{m1,p} r_{m2,p}}] t_{m2,p}$$

$$= \frac{\cos\theta_m}{2n_m\cos\theta_m} P_x \frac{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_2 + n_2\cos\theta_1)} \frac{2n_m\cos\theta_1}{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)}$$

$$\times \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}$$

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

(p 偏光：P_z に由来する成分)

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

$$= \frac{-\sin\theta_m}{2n_m\cos\theta_m} P_z \frac{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}{2n_m\cos\theta_m(n_1\cos\theta_2 + n_2\cos\theta_1)} \frac{2n_1\cos\theta_m}{(n_1\cos\theta_m + n_m\cos\theta_1)}$$

$$\times \frac{2n_m\cos\theta_m}{(n_2\cos\theta_m + n_m\cos\theta_2)}$$

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

q.e.d.