

光致各向异性中光学序参量的理论分析和仿真

吴洋¹, 邢美术¹, 林兆培¹, 张明²

(1.中国电子科技集团公司第二十三研究所,上海 201900;2.兰州交通大学 电子与信息工程学院,兰州 730070)

摘要:为了系统清晰地了解光学序参量在光致各向异性过程中的动力学原理,对其进行了理论研究学习.通过分析 *Trans* 和 *Cis* 分子光致各向异性的耦合速率方程(单位时间内信号强度和入射角的不同),利用勒让德多项式正交函数定理,计算得到了 *Trans* 和 *Cis* 分子光学序参量的解析解.并对 *Trans* 和 *Cis* 异构体浓度和光学序参量在时域上的变化进行了仿真,详细讨论了 *Trans* 和 *Cis* 分子在线性偏振激光照射下分子浓度和光学序参量的变化特性.

关键词:光致各向异性;耦合速率方程;勒让德多项式;光学序参量

中图分类号:O411.1

文献标志码:A

由于偶氮苯衍生物的光学属性可由光激发调整,与其相关的研究得到了越来越多的关注^[1-6].在过去的数十年中,一系列有意义的现象先后被科学家发现,特别是通过光致异构化和偏振全息,将光化学和非线性光学紧紧联系在了一起.其中光致异构化广泛应用在光开关,光存储等领域^[7-15].

HARTLEY 第一次发现了偶氮共聚物中 *Trans-Cis-Trans* 的光化学现象^[16],从那时起,偶氮共聚物的光致异构化成为光化学分支中的一个焦点.偶氮共聚物及其大量衍生物的分子在初始状态下均为 *Trans* 形态,经过光照后,*Trans* 分子吸收光子能量并阶跃至较高能级的 *Cis* 能级.由于受激辐射和热弛豫效应,*Trans*→*Cis* 的过程中同时伴随着少部分 *Cis* 分子向下阶跃至 *Trans* 形态.如果泵浦光为线性偏振光,则聚合物在发生异构化的同时还伴随着光致各向异性^[17-21].

光致异构化的耦合速率方程虽然在十几年前就被演算出来,但是目前并没有发现有人对光学序参量进行全面的理论分析.在光致各向异性过程中,分子浓度和光学序参量为直接影响光学材料吸光度、折射率以及衍射率等重要属性的参量.大量的研究者仅通过速率方程计算分子浓度数据解.本文重点研究了光学序参量在光致各向异性过程中的动力学原理.在分析 *Trans* 和 *Cis* 分子光致异构化的耦合速率方程的同时,利用勒让德多项式的正交函数定理和边界条件以及慢变振幅近似法,通过计算得到了 *Trans* 和 *Cis* 分子浓度和光学序参量速率方程的解析解.并通过仿真,分析了在线偏振激光的照射下,*Trans* 和 *Cis* 分子浓度和光学序参量在时域上的变化特性.

1 耦合速率方程

偶氮键是由双键链接的两个氮原子组成,激发其核构造变化的能量小于其他的共价双键.典型的偶氮分子具有的 *Trans* 和 *Cis* 两种形态,这两种形态分子的能级如图 1 所示,其中量子效率 ϕ 为单位面积单位时间内吸收的光子数.对于非中心对称的分子,其吸收横截面可表示为 $\sigma_{\perp} \sin^2 \theta - \sigma_{\parallel} \cos^2 \theta$ (符号 \perp 和 \parallel 分别表示分子的短轴和长轴).

Trans 和 *Cis* 分子的排列方向变化坐标系统如图 2 所示,定义轴 3 为泵浦光偏振方向, Ω 和 Ω' 分别为

收稿日期:2019-10-23;修回日期:2020-09-10.

基金项目:甘肃省自然科学基金(17JR5RA099);兰州交通大学青年基金(2017004).

作者简介:吴洋(1987—),男,河南南阳人,中国电子科技集团公司第二十三研究所工程师,博士,研究方向为激光光学和非线性光学,E-mail:ywuopt9389@163.com.

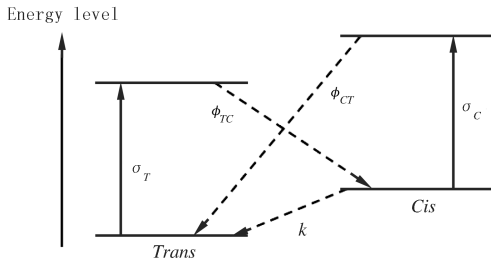
通信作者:张明,E-mail:zhangming@mail.lzjtu.cn.

Trans 和 *Cis* 分子的排列方向.假设每种分子的光致异构化数密度转换率在 Ω 方向上与分子的数密度成比例,则 *Trans* 和 *Cis* 的速率方程为^[22]

$$\frac{dn_T(\Omega)}{dt} = -I\phi_{TC}[\sigma_T^\perp + (\sigma_T^\parallel - \sigma_T^\perp)\cos^2\theta]n_T(\Omega) + I\phi_{CT}\iint n_C(\Omega')[\sigma_C^\perp + (\sigma_C^\parallel - \sigma_C^\perp)\cos^2\theta'] \times P_{CT}(\Omega' - \Omega)d\Omega' + \frac{1}{\tau_C}\iint Q(\Omega' \rightarrow \Omega)n_C(\Omega')d\Omega' + D_{TR} \cdot Rn_T(\Omega, t), \quad (1)$$

$$\frac{dn_C(\Omega)}{dt} = -I\phi_{CT}[\sigma_C^\perp + (\sigma_C^\parallel - \sigma_C^\perp)\cos^2\theta]n_C(\Omega) + I\phi_{TC}\iint n_T(\Omega')[\sigma_T^\perp + (\sigma_T^\parallel - \sigma_T^\perp)\cos^2\theta'] \times P_{TC}(\Omega' - \Omega)d\Omega' - \frac{1}{\tau_C}n_C(\Omega') + D_C R \cdot Rn_C(\Omega, t). \quad (2)$$

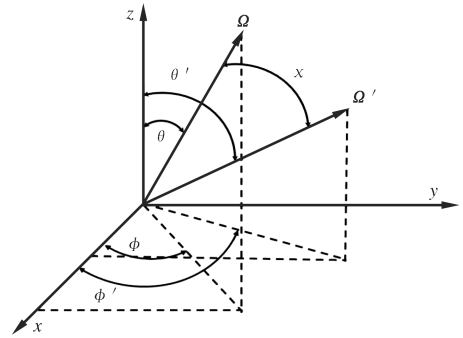
其中, $n_{T,C}$ 为 *Trans* 和 *Cis* 分子的数密度, P_{CT} 为 *Cis* \rightarrow *Trans* 的热异构化概率.(1)式和(2)式中第一项为 *Cis* 和 *Trans* 分子由于烧孔效应(Angular Hole Burning, AHB),在 Ω 方向上的堆积速率,即 *Trans* 分子吸收光子后阶跃至 *Cis* 能级的速率.第二项为两种分子在偏振泵浦光的照射下的角度再分布(Angular Redistribution, AR)速率,将 *Cis* \rightarrow *Trans* 和 *Trans* \rightarrow *Cis* 的再分布概率分别定义为 $P_{CT}(\Omega' \rightarrow \Omega)$ 和 $P_{TC}(\Omega' \rightarrow \Omega)$.由于分子的排列方向总是垂直于泵浦光的偏振方向,因此 *Trans* 分子吸收能量后排列方向也从 Ω 方向移到了 Ω' 方向.在第三项中, $Q(\Omega' \rightarrow \Omega)$ 为热弛豫效应而导致 *Cis* \rightarrow *Trans* 过程中的 AR 概率.最后一项为由于温度和搅拌(偏振泵浦光引起的 AR)而导致的布朗运动. $D_{T,C}$ 为基于爱因斯坦关系得出的 *Trans* 和 *Cis* 分子在单位时间内的角度扩散常数, R 为转动算子^[19].



σ_T 和 σ_C 分别为 *Trans*和 *Cis*分子的吸收横截面. ϕ_{TC} 和 ϕ_{CT} 为非辐射状态下 *Trans* \rightarrow *Cis*和 *Cis* \rightarrow *Trans*的量子效率. k 是 *Cis* \rightarrow *Trans*过程中的热弛豫效应速率.

图1 光致异构化的能级原理图

Fig.1 Energy diagram of photo-isomerization mechanisms



z 轴为泵浦光的偏振方向.对于在 Ω 方向上的分子, AHB 概率与 $\sigma^\parallel \cos^2\theta + \sigma^\perp \sin^2\theta$ 成比例. x 为 Ω 和 Ω' 方向间的夹角.

图2 *Trans*和 *Cis*分子在 Ω 和 Ω' 两个主方向上的坐标系统

Fig.2 Coordinate systems of the molecules in two principle directions, Ω and Ω'

2 利用勒让德多项式求解

初始状态下只与极角 θ 有关的 *Trans* 和 *Cis* 分子的随机分布 $n_{T,C}(\Omega)$ 可用定向分布方程表示,其勒让德多项式级数展开为

$$n_T(\Omega) = \frac{1}{4\pi} \sum_{j=0}^{\infty} (2j+1) T_j P_j(\cos\theta), n_C(\Omega) = \frac{1}{4\pi} \sum_{k=0}^{\infty} (2k+1) C_k P_k(\cos\theta).$$

利用多项式的正交性,可以得到勒让德多项式 $P_j(\cos\theta)$ 的扩展系数

$$T_l = \int_0^\pi n_T(\theta) P_l(\cos\theta) \sin\theta d\theta, C_l = \int_0^\pi n_C(\theta) P_l(\cos\theta) \sin\theta d\theta.$$

再分布概率 $P_C T(\Omega' \rightarrow \Omega)$ 和 $P_{TC}(\Omega' \rightarrow \Omega)$, 以及 $Q(\Omega' \rightarrow \Omega)$ 可以转动角为变量表示为同样的形式

$$P_{CT}(\chi) = \frac{1}{2\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) P_l^{CT} P_l(\cos\chi), P_{TC}(\chi) = \frac{1}{2\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) P_l^{TC} P_l(\cos\chi),$$

$$Q(\chi) = \frac{1}{2\pi} \sum_{m=0}^{\infty} (2m+1) P_m^{\text{TC}} P_m(\cos \chi).$$

使(1)式左边乘以 $P_j(\cos \theta)$, 当 $j=m$ 时, 利用勒让德多项式的正交性, 可以得到

$$\frac{d}{dt} \iint n_T(\boldsymbol{\Omega}) P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} = \frac{d}{dt} \left[\frac{1}{4\pi} \iint \sum_{j=0}^{\infty} (2j+1) t_j P_j(\cos \theta) P_m(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} \right] = \frac{dT_l}{dt}. \quad (3)$$

(1)式右侧第一项中含有零阶和二阶勒让德多项式, 采用与(3)式同样的方法, (1)式的右侧可以重新表示为零阶

$$-I\phi_{\text{TC}} \sigma_T^{\perp} \iint n_T(\boldsymbol{\Omega}) P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} = -I\phi_{\text{TC}} \sigma_T^{\perp} T_l. \quad (4)$$

为了计算二阶多项式, 这里需要使用勒让德多项式的递归关系

$$x^2 P_l(x) = \frac{(l+1)(l+2)}{(2l+1)(2l+3)} P_{l+2}(x) + \left[\frac{(l+1)^2}{2l+3} + \frac{l^2}{2l-1} \right] \frac{P_l(x)}{2l+1} + \frac{l(l-1)}{(2l-1)(2l+1)} P_{l-2}(x).$$

整合二阶多项式后, 得到

$$\begin{aligned} & -I\phi_{\text{TC}} (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) \iint n_T(\boldsymbol{\Omega}) \cos^2 \theta P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} = -I\phi_{\text{TC}} (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) \times \\ & \left\{ \frac{l(l-1)}{(2l+1)(2l-1)} T_{l-2} + \left[\frac{(l+1)^2}{(2l+3)(2l+1)} + \frac{l^2}{(2l+1)(2l-1)} \right] T_l + \frac{(l+1)(l+2)}{(2l+1)(2l+3)} T_{l+2} \right\} = \\ & -I\phi_{\text{TC}} (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) \left\{ \frac{l(l-1)}{(2l+1)(2l-1)} T_{l-2} + \left[\frac{2l^2+2l-1}{(2l-1)(2l+3)} \right] T_l + \frac{(l+1)(l+2)}{(2l+1)(2l+3)} T_{l+2} \right\} = \\ & -I\phi_{\text{TC}} (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) \{ \kappa_{l-} T_{l-2} + \kappa_l T_l + \kappa_{l+} T_{l+2} \}. \end{aligned} \quad (5)$$

其中

$$\kappa_{l+} = \frac{(l+1)(l+2)}{(2l+1)(2l+3)}, \kappa_l = \frac{2l^2+2l-1}{(2l-1)(2l+3)}, \kappa_{l-} = \frac{l(l-1)}{(2l-1)(2l+1)}.$$

平均吸收横截面和分子各向异性定义为

$$\bar{\sigma}_{\text{T,C}} = \frac{\sigma_{\text{T,C}}^{\parallel} + 2\sigma_{\text{T,C}}^{\perp}}{3}, r_{\text{T,C}} = \frac{\sigma_{\text{T,C}}^{\parallel} - \sigma_{\text{T,C}}^{\perp}}{\sigma_{\text{T,C}}^{\parallel} + 2\sigma_{\text{T,C}}^{\perp}}.$$

$\sigma_{\text{T,C}}^{\parallel}$ 和 $\sigma_{\text{T,C}}^{\perp}$ 可重新用 $\bar{\sigma}_{\text{T,C}}$ 和 $r_{\text{T,C}}$ 表示为

$$\sigma_{\text{T,C}}^{\parallel} = \bar{\sigma}_{\text{T,C}} (1 + r_{\text{T,C}}), \sigma_{\text{T,C}}^{\perp} = \bar{\sigma}_{\text{T,C}} (1 - r_{\text{T,C}}). \quad (6)$$

将(6)式带入到(4)式和(5)式中, 可以得到 AHB 项

$$\begin{aligned} & -I\phi_{\text{TC}} \iint [\sigma_T^{\perp} + (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) \cos^2 \theta] n_T(\boldsymbol{\Omega}) P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} = -I\phi_{\text{TC}} \sigma_T^{\perp} T_l - I\phi_{\text{TC}} (\sigma_T^{\parallel} - \sigma_T^{\perp}) (\kappa_{l-} T_{l-2} + \\ & \kappa_l T_l + \kappa_{l+} T_{l+2}) = -I\phi_{\text{TC}} \sigma_T [1 - r_T + 3\kappa_l r_T] T_l + 3r_T \kappa_{l-} T_{l-2} + 3r_T \kappa_{l+} T_{l+2} = \\ & -I_T \{ [1 + r_T (3\kappa_l - 1)] T_l + 3r_T \kappa_{l-} T_{l-2} + 3r_T \kappa_{l+} T_{l+2} \} = -I_T \{ T \}. \end{aligned}$$

其中 $I_T = I\phi_{\text{TC}} \bar{\sigma}_T$. 同样, (1)式中的第二项和第三项可以写为

$$\begin{aligned} & I\phi_{\text{CT}} \iint \iint n_C(\boldsymbol{\Omega}') [\sigma_C^{\perp} + (\sigma_C^{\parallel} - \sigma_C^{\perp}) \cos^2 \theta'] P_{CT}(\boldsymbol{\Omega}' \rightarrow \boldsymbol{\Omega}) d\boldsymbol{\Omega}' P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} + \\ & \frac{1}{\tau_C} \iint \iint Q(\boldsymbol{\Omega}' \rightarrow \boldsymbol{\Omega}) n_C(\boldsymbol{\Omega}') d\boldsymbol{\Omega}' P_l(\cos \theta) d\boldsymbol{\Omega} = I_C P_l^{\text{CT}} \{ C \} + kC_l, \end{aligned}$$

其中 $I_C = I\phi_{\text{CT}} \bar{\sigma}_C$, $k = 1/\tau_C$.

最后, 速率方程可以写为

$$\begin{aligned} \frac{dT_l}{dt} &= -I_T \{ T \} + I_C P_l^{\text{CT}} \{ C \} + kQ_l C_l - T_l l(l+1) D_T, \\ \frac{dC_l}{dt} &= -I_C \{ C \} + I_T P_l^{\text{TC}} \{ T \} - kC_l - C_l l(l+1) D_C, \end{aligned}$$

其中, T_l 和 C_l 勒让德多项式的扩展系数, 即光学序参量, 用来描述物体内部的分子排列, 可表示为

$$\begin{aligned}\{T\} &= 3er_T \kappa_{l+} T_{l+2} + [1 + er_T(3\kappa_l - 1)]T_l + 3er_T \kappa_{l-} T_{l-2}, \\ \{C\} &= 3er_c \kappa_{l+} C_{l+2} + [1 + er_c(3\kappa_l - 1)]C_l + 3er_c \kappa_{l-} C_{l-2}.\end{aligned}$$

当线性偏振光偏振方向与 3 轴一致时, AHB 的概率 $e=1$; 当泵浦光为圆偏振时或非偏振光照射在 $x-y$ 轴所在的平面时, $e=-0.5$.

在泵浦光打开后的较短时间内, 相对于 P_j^{TC} , 由 $Trans \rightarrow Cis$ 引起的 AR 效应占主导地位. 不仅如此, 在光致异构化过程中, 热弛豫效应的反应速度低于 AHB 和 AR 效应. 因此, 这里可以忽略 P_j^{TC} 和由于热转换引起的 $Cis \rightarrow Trans$ 部分, 上面两式可以重新写为

$$\begin{aligned}\frac{dT_j}{dt} &= -I_T \{T\} - T_j j(j+1)D_T, \\ \frac{dC_j}{dt} &= -I_C \{CT\} + I_T P_j^{TC} \{T\} - C_j j(j+1)D_C.\end{aligned}$$

在信号强度较低的情况下, 高阶多项式在分子中的影响并不重要, 因此本文中的勒让德多项式只取到二阶. 当 $j=0$ 和 $j=2$ 时, 将数密度均一化, 可得 $C_0=1-T_0$. 可以得到下列方程组

$$\begin{cases} \frac{dT_0}{dt} = -I_T(2er_T T_2 + T_0), \\ \frac{dT_2}{dt} = -I_T \left[\left(1 + \frac{4}{7}er_T\right)T_2 + \frac{2}{5}er_T T_0 \right] - 6D_T T_2, \\ \frac{dC_2}{dt} = -I_C \left[\left(1 + \frac{4}{7}er_c\right)C_2 + \frac{2}{5}er_c T_0 \right] + I_T P_2^{TC} \left[\left(1 + \frac{4}{7}er_T\right)T_2 + \frac{2}{5}er_T T_0 \right] - 6D_C C_2. \end{cases}$$

利用慢变振幅近似法求解上述非线性耦合偏微分方程组, 可得

$$\begin{cases} T_0(t) = \exp(-\lambda_0 t), \\ C(t) = 1 - \exp(-\lambda_0 t), \\ T_2(t) = \frac{a_T}{\lambda_T - \lambda_0} [\exp(-\lambda_T t) - \exp(-\lambda_0 t)], \\ C_2(t) = \frac{a_C(\lambda_T - \lambda_0) - a_T P_2^{TC}(\lambda_T - \lambda_0)}{(\lambda_T - \lambda_0)(\lambda_C - \lambda_0)} [\exp(-\lambda_T t) - \exp(-\lambda_0 t)] - \\ \frac{a_T P_2^{TC}(\lambda_T - 6D_T)}{(\lambda_T - \lambda_0)(\lambda_C - \lambda_0)} [\exp(-\lambda_T t) - \exp(-\lambda_C t)], \end{cases}$$

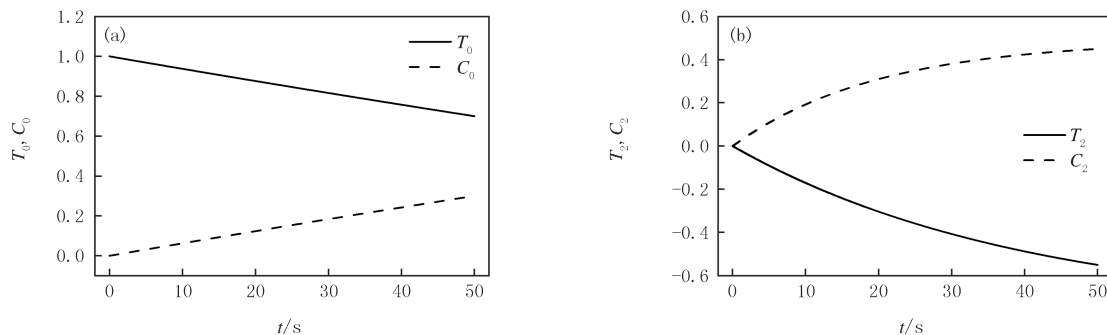
$$\text{其中 } a_{T,C} = \frac{2}{5} I_{T,C} er_{T,C}, \lambda_0 = \frac{I_T \left[1 + \frac{4}{5}(er_T)^2 + \frac{4}{7}er_T + 6\frac{D_T}{I_T} \right]}{2 \left(1 + \frac{2}{7}er_T + 3\frac{D_T}{I_T} \right)}, \lambda_{T,C} = I_{T,C} \left(1 + \frac{4}{7}er_{T,C} + 6\frac{D_{T,C}}{I_{T,C}} \right).$$

3 仿真结果及讨论

图 3 为在线性偏振激光照射下, 分子浓度 T_0 和 C_0 以及光学序参量 T_2 和 C_2 的时间变化曲线. 仿真条件为在低温时, 角度扩散常数 $D_l=0.0001$, 相对应于 $Trans$ 和 Cis 分子的混合系数 I_T 和 I_C 分别为 0.011 和 0.0095. 图 3(a) 为经过均一化后 $Trans$ 和 Cis 分子浓度的变化曲线. 在初始条件 $t=0$ 时, $T_0=1, C_0=0$, 意味着聚合物中的分子在初始条件下均为低能级的 $Trans$ 形态. 当泵浦光开始辐射聚合物时, 稳态的 $Trans$ 分子吸收泵浦光能量跃迁至高能级的 Cis 形态, 因此 $Trans$ 的分子浓度 T_0 随着时间的增长稳步降低, 而 Cis 的分子浓度 C_0 随着时间的增长而上升, 其转化率由量子效率 ϕ_{TC}, ϕ_{CT} 决定. 由图 3(a) 可以看出 T_0 和 C_0 的变化幅度相同, 说明分子的总体数密度不变, 且在光致异构化过程中, 并没有产生其他能级的分子.

光学序参量的仿真结果如图 3(b) 所示. 在打开泵浦光前, $Trans$ 分子为各向同性的随机分布, 因此 $T_2=$

$C_2 = 0$. 当打开泵浦光后,由于烧孔效应,与泵浦光偏振方向平行的分子吸收能量较多,因此相对于垂直方向的分子,平行方向上的 *Cis* 分子含量较大.在激光照射过程中,由于自发辐射和热弛豫效应,仍然有少量分子由 *Cis* 能级下降至 *Trans* 能级,而后再吸收光子能量跃迁至 *Cis* 能级.在多层 *Trans-Cis-Trans* 的转变循环过程中,*Trans* 和 *Cis* 分子的排列方向不停转动,其长轴渐渐垂直于泵浦光的偏振方向,这个过程称为角度再分布.由于烧孔效应和角度再分布共同引起了光致各向异性,光学序参量 T_2 和 C_2 开始变化.由于 $\lambda_T > \lambda_C > \lambda_0$,因此 T_2 从 0 开始下降, C_2 从 0 开始上升. T_2 和 C_2 从 0 开始变化说明各向异性的产生,*Trans* 和 *Cis* 分子已经在线性偏振激光的照射下开始重新排列,其最终排列方向将垂直于泵浦光的偏振方向.由于吸收光子能量跃迁至高能级的 *Trans* 分子数量大于因自发辐射和热弛豫效应而能级降低的分子数量,所以 T_2 和 C_2 的初始变化速率较大,随着时间 t 的推移变化速率越来越小,整体趋势呈指数函数变化.



D_T 与样品和周围环境的温差成比例.其中 $I_T=0.011$, $I_C=0.0095$. (a) T_0 和 C_0 . (b) T_2 和 C_2 .

图3 光学序参量在 $D_T=0.0001$ (低温)条件下的时域变化曲线

Fig.3 Temporal change of the order parameters at $D_T=0.0001$ (low temperature)

4 结 论

本文分析了 *Trans* 和 *Cis* 分子光致异构化的耦合速率方程.建立了光致异构化的一阶非线性偏微分耦合方程组,基于正交函数定理,通过勒让德多项式演示了光学序参量的推导过程,研究了系统的光学序参量在光致异构化过程中的动力学原理.对 *Trans* 和 *Cis* 异构体的分子浓度和光学序参量在时域上的变化进行了仿真.解释了在线性偏振光照射下,分子浓度和光学序参量的变化规律和特性.

从数学角度分析,勒让德变换只是对变量进行变换,便于学者更加简便地对其分析,并不会改变系统的性质.而光学序参量作为非线性光学中非常重要的一组参数,决定着光致异构化速率和光致各向异性程度,二者进一步影响光学材料的吸光度,折射率及衍射率等重要光学属性.因此,从理论上对其解析,能更加有效直观的研究光致异构化和光致各向异性,了解光学材料各种属性的变化规律.

参 考 文 献

- [1] IVANOV M, NIKOLOVA L, TODOROV T, et al. Photoinduced dichroism and birefringence in films of Mordant Pure Yellow/poly(vinyl alcohol): simultaneous real-time investigations at two wavelengths[J]. Opt Quan Elec, 1994(26): 1013-1018.
- [2] TODOROV T, NIKOLOVA L, TOMOVA N. Polarization holography. 1: A new high-efficiency organic material with reversible photoinduced birefringence[J]. Appl Opt, 1984(23): 4309-4312.
- [3] ABBAS B, KHALIS M A. Dichroism of poly(methyl methacrylate) thin films doped with disperse orange 11 molecules[J]. Acta Phys Pol A, 2010(115): 857-863.
- [4] BLANCHE P A, LEMAIRE P C, DUMONT M, et al. Photoinduced orientation of azo dye in various polymer matrices[J]. Opt Lett, 1999(24): 1349-1351.
- [5] DUMONT M, EL OSMAN A. On spontaneous and photoinduced orientational mobility of dye molecules in polymers[J]. Chem Phys, 1999(245): 437-462.
- [6] CHEBEN P, DEL MONTE F, WORSFOLD D, et al. A photorefractive organically modified silica glass with high optical gain[J]. Nature, 2000(408): 64-67.

- [7] KANG J W, KIM E K, KIM J J. All-optical switch and modulator using photochromic dye doped polymer waveguides[J]. *Opt Mater*, 2003(21):543-548.
- [8] YANG X Q, ZHANG C P, QI S W, et al. All-optical Boolean logic gate using azo-dye doped polymer film[J]. *Optik-International Journal for Light and Electron Optics*, 2005(116):251-254.
- [9] XU T, CHEN G Y, ZHANG C P, et al. All-optical switching characteristics of ethyl red doped polymer film[J]. *Opt Mater*, 2008(30):1349-1354.
- [10] TOMOV A V, VOITENKOV A I. All-optical modulation in azo-dye-doped polymer waveguides[J]. *Opt Comm*, 2000(174):133-137.
- [11] LEE H W, KIM Y M, JEON D J, et al. Rewritable organic films for near-field recording[J]. *Opt Mater*, 2003(21):289-293.
- [12] MATCZYSZYN K, BARTKIEWICZ S, SAHRAOUI B. A new holographic system; liquid crystal doped with photochromic molecules[J]. *Opt Mater*, 2002(20):57-61.
- [13] ZHANG Q, LI J M, NIU L H, et al. A rapid response photochromic diarylethene material for rewritable holographic data storage[J]. *Chin Sci Bull*, 2013(58):1-5.
- [14] TODOROV T, NIKOLOVA L, STOYANOVA K, et al. Polarization holography.3: Some applications of polarization holographic recording[J]. *Appl Opt*, 1985(24):785-788.
- [15] KISELEV A D, CHIGRINOV V, HUANG D D. Photoinduced ordering and anchoring properties of azo-dye films[J]. *Phys Rev E*, 2005(72):061703.
- [16] HARTLEY G S. The *Cis*-form of azobenzene and the velocity of the thermal *Cis*→*Trans* conversion of azobenzene and some derivatives[J]. *J Chem Soc*, 1938:633-643.
- [17] DE LANGE J J, ROBERTSON J M, WOODWARD I. X-ray crystal analysis of azobenzene[J]. *Proc Soc London Sect A*, 1939(171):398-410.
- [18] RAU H. Spektroskopische eigenschaften organischer azoverbindungen[J]. *Angetv Chem Intl Ed Engl*, 1973(12):224-235.
- [19] DOI M, EDWARDS S F. The theory of polymer dynamics[M]. New York: Oxford University Press, 1986.
- [20] NIKOLOVA L, TODOROV T. Diffraction efficiency and selectivity of polarization holography recording[J]. *Optica Acta*, 1984(31):579-588.
- [21] NIKOLOVA L, RAMANUJAM P S. Polarization holography[M]. New York: Cambridge University Press, 2009.
- [22] SEKKAT Z, KNOLL W. Photoreactive Organic Thin Films[M]. California: Elsevier Science, 2002.

Theoretical analysis and simulation of optical order parameter for photoinduced anisotropy based on Legendre polynomials

Wu Yang¹, Xing Meishu¹, Lin Zhaopei¹, Zhang Ming²

(1. No.23 Research Institute, China Electronics Technology Group Corporation, Shanghai 201900, China;

2. School of Electronic and Information Engineering, Lanzhou Jiaotong University, Lanzhou 730070, China)

Abstract: To understand the dynamics of optical order parameters in the photoinduced anisotropy process systematically and clearly, the theory of the photoinduced anisotropy is studied. The time-dependent expression of the photoinduced anisotropy is analyzed by considering the elementary (pump intensity and incident angle) contribution per unit time to the orientation by the fraction of the molecules. Based on the orthogonal functions theorem of the Legendre polynomials, the analytic solutions of the optical order parameters to the *Trans* and *Cis* isomers were obtained. The temporal changes of the optical order parameters of the *Trans* and *Cis* isomers were simulated. The varying curves of the concentration and optical order parameters for the *Trans* and *Cis* isomers were discussed.

Keywords: photoinduced anisotropy; coupled rate equations; Legendre polynomials; optical order parameter

[责任编辑 杨浦 王凤产]