

# Быстрый метод компьютерного моделирования характеристик люминесценции многослойных биотканей с внедренными люминесцирующими наночастицами

Д.Д.Яковлев, Е.А.Сагайдачная, Д.А.Яковлев, В.И.Кочубей

*Предложен быстрый и вычислительно устойчивый метод компьютерного моделирования оптических свойств слоистых рассеивающих систем, содержащих флуоресцирующие слои. Метод основан на решении одномерных скалярных уравнений переноса излучения и позволяет рассчитывать спектральные и угловые характеристики люминесцентного излучения, выходящего из системы при различных условиях возбуждения люминесценции. С помощью этого метода проведена оценка параметров, необходимых для определения температуры в подкожных слоях по спектрам люминесценции внедренных в эти слои ап-конверсионных наночастиц при чрескожном оптическом зондировании.*

**Ключевые слова:** фотолюминесценция, ап-конверсионные наночастицы, слоистая рассеивающая среда, биологическая ткань, компьютерное моделирование, термометрия.

## 1. Введение

Во многих исследованиях фотолюминесценция эндогенных составляющих биологических тканей или введенных в ткань люминесцирующих агентов дает возможность получить ценную информацию о свойствах и состоянии исследуемого биообъекта, а также о протекающих в нем процессах. При макроскопических измерениях на биотканях, проводимых *in vivo*, источник люминесценции (люминесцирующая субстанция) обычно находится в глубине образца, и как возбуждающее излучение, так и люминесцентное излучение на пути от источника до детектора проходят через слои рассеивающих и поглощающих тканей. Если свойства рассеяния и поглощения данных тканей существенно изменяются в зависимости от длины волны в пределах спектральной области люминесценции, то спектр люминесцентного излучения, выходящего из ткани, значительно отличается по форме от спектра люминесценции источника. При этом если информативным в рассматриваемом эксперименте является именно спектр люминесценции источника, то необходим учет трансформации спектра люминесцентного излучения при его прохождении через биоткань. В частности, данная проблема актуальна при использовании флуоресцирующих наночастиц для локального измерения температуры в биотканях.

Возможность применения люминесцирующих наночастиц для локального измерения температуры представляет большой интерес в контексте множества практических задач лазерной медицины и биологии [1, 2]. При ис-

пользовании нанотермометров разного типа определение температуры осуществляется на основе данных об изменении интенсивности [3–5], положения и ширины полос люминесценции [6], а также по отношениям интенсивностей нескольких регистрируемых полос. Одним из перспективных типов нанотермометров являются ап-конверсионные наночастицы, при использовании которых температура определяется по отношениям интенсивностей полос люминесценции [7]. Примером таких нанотермометров служат наночастицы  $\text{NaYF}_4:\text{Er}^{3+}, \text{Yb}^{3+}$  [8]. На рис.1 показано, как изменяется спектр люминесценции данных частиц (при возбуждении на длине волны 980 нм) при изменении температуры. Если наночастицы располагаются в глубине биоткани, например под кожей в подкожном жировом слое или еще глубже, в мышечной ткани, то для определения температуры в области локализации наночастиц по регистрируемым спектрам флуоресценции при лазерном чрескожном оптическом зондировании необходимо учитывать трансформацию спектра люминесцентного излучения по мере его распространения внутри биоткани.

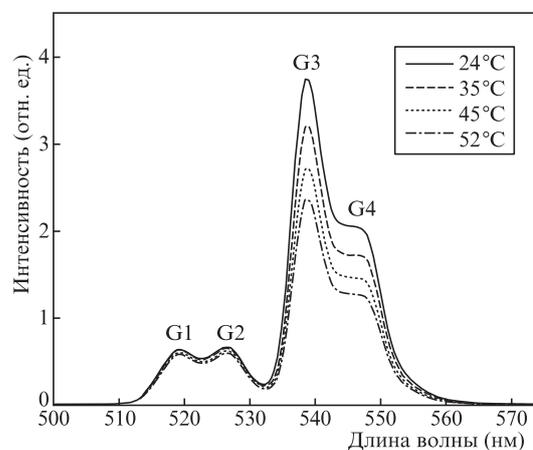


Рис.1. Спектры люминесценции ап-конверсионных наночастиц  $\text{NaYF}_4:\text{Er}^{3+}, \text{Yb}^{3+}$  при разной температуре; возбуждение на длине волны 980 нм.

Д.Д.Яковлев, Е.А.Сагайдачная, Д.А.Яковлев. Саратовский национальный исследовательский государственный университет им. Н.Г.Чернышевского, Россия, 410012 Саратов, ул. Астраханская, 83; e-mail: yakovlevday@gmail.com

В.И.Кочубей. Саратовский национальный исследовательский государственный университет им. Н.Г.Чернышевского, Россия, 410012 Саратов, ул. Астраханская, 83; Национальный исследовательский Томский государственный университет, Россия, 634050 Томск, просп. Ленина, 36; e-mail: saratov\_gu@mail.ru

Поступила в редакцию 17 ноября 2020 г.

Для определения температуры по спектру люминесценции ап-конверсионных наночастиц оценке подлежат отношения вида [8]

$$f_p(\lambda_r, \lambda_i) = I_{fp}(\lambda_i)/I_{fp}(\lambda_r),$$

где  $I_{fp}(\lambda)$  – интенсивность люминесценции наночастиц на длине волны  $\lambda$ ;  $\lambda_r$  – длина волны одного из спектральных максимумов люминесценции наночастиц;  $\lambda_i$  ( $i = 1, 2, \dots$ ) – длины волн, соответствующие другим максимумам спектра люминесценции наночастиц. Параметры  $f_p(\lambda_r, \lambda_i)$  оцениваются из экспериментально полученных спектров интенсивности  $I_{fp}(\lambda)$  люминесцентного излучения, выходящего из образца, по величине отношений

$$f_t(\lambda_r, \lambda_i) = I_{ft}(\lambda_i)/I_{ft}(\lambda_r).$$

В общем случае, когда параметры рассеяния и поглощения тканей, через которые проходит люминесцентное излучение на его пути к детектору, зависят от длины волны, связь спектров  $f_p(\lambda_r, \lambda)$  и  $f_t(\lambda_r, \lambda)$  может быть выражена следующим образом:

$$f_t(\lambda_r, \lambda) = a_{tp}(\lambda_r, \lambda) f_p(\lambda_r, \lambda),$$

и для надежной оценки  $f_p(\lambda_r, \lambda_i)$  необходимо иметь достаточно точную оценку  $a_{tp}(\lambda_r, \lambda_i)$ . Согласно данным, приведенным в [8], в случае определения температуры по отношению пиковых интенсивностей полос G1 ( $\lambda_r = 519$  нм, рис.1) и G4 ( $\lambda_3 = 546$  нм) при относительной погрешности оценки  $a_{tp}(\lambda_r, \lambda_3)$  в 1% обусловленная ею погрешность определения температуры составляет около 1°C.

В настоящей работе предлагается быстрый и устойчивый метод расчета, позволяющий вычислять значения  $a_{tp}(\lambda_r, \lambda_i)$  для многослойных систем при заданных параметрах рассеяния и поглощения слоев с учетом многократного рассеяния (разд.2–6). Расчеты могут выполняться для случаев как нормального, так и наклонного падения возбуждающего излучения на образец. В данном методе рассчитывается угловое распределение люминесцентного излучения, выходящего из многослойной системы, что дает возможность быстро вычислять значения  $a_{tp}(\lambda_r, \lambda_i)$  для разных углов детектирования. В разд.7 представлены полученные с помощью этого метода теоретические оценки коэффициентов  $a_{tp}(\lambda_r, \lambda_i)$  при расположении наночастиц  $\text{NaYF}_4: \text{Er}^{3+}, \text{Yb}^{3+}$  под кожей в жировом слое и в мышечной ткани для разных углов детектирования.

Предлагаемый метод опирается на скалярную теорию переноса излучения. В качестве оптической модели биоткани рассматривается система плоскопараллельных рассеивающих слоев. Такой подход показал свою надежность при решении множества оптических задач для биотканей [9–13]. При численном решении задач теории переноса для слоистых систем наиболее широко применяются алгоритмы стохастической трассировки волновых пакетов, опирающиеся на метод Монте-Карло (МК-алгоритмы) [10, 11, 14–20], метод дискретных ординат [20–24] и метод добавления-удвоения (adding-doubling method, ADM) [10, 11, 25–27]. Перечисленные подходы используются и для расчета характеристик люминесценции многослойных рассеивающих сред [15–20, 22–24, 26, 27]. Стохастическая трассировка – наиболее универсальное средство, но требует очень больших вычислительных затрат, которые возрастают с увеличением толщины рассматриваемой систе-

мы. Из указанных методов наиболее эффективен в вычислительном плане метод добавления-удвоения, однако он не столь универсален, как стохастическая трассировка. Одним из недостатков известных нам вариантов ADM является то, что они применимы исключительно при осесимметричной геометрии, когда угловой спектр излучения инвариантен относительно любого вращения вокруг нормали к поверхности слоистой системы, что, в частности, не позволяет рассматривать практически интересный случай наклонного падения света при освещении образца направленным пучком. Кроме того, использование процедуры удвоения для расчета операторов пропускания и отражения далеко не всегда гарантирует достижение высокой точности расчета [25, 28].

Разработанный нами метод расчета основан на решении одномерных уравнений переноса в дискретной форме для излучения с произвольным угловым распределением (разд.2). Для расчета матричных операторов, характеризующих действие слоев с постоянными (не зависящими от координат) параметрами рассеяния и люминесценции, используется модовое представление характеристик излучения (разд.3). Модовое представление широко применяется при решении задач переноса излучения в рамках метода разложения в ряды по сингулярным собственным функциям [12, 13, 21, 28–32] для однородного линейризованного уравнения Больцмана. Наиболее распространен подход, основанный на представлении фазовых функций и сингулярных собственных функций в виде разложений по полиномам Лежандра ( $P_N$ -метод) [12–14, 21, 28, 31]. В нашем случае модовое представление используется для решения уравнения переноса излучения в дискретной по угловым переменным форме. Модовое представление позволяет применять очень устойчивую процедуру расчета и быстро вычислять характеристики слоев любой толщины, в том числе бесконечной (объем требуемых вычислительных затрат не зависит от толщины слоя) (разд.3), что является одним из основных достоинств этого представления [28].

Используемый нами способ дискретизации уравнений переноса позволяет, в отличие от  $P_N$ -метода, рассматривать случай наклонного падения направленного пучка света на слоистую систему. При расчете операторов для систем слоев по соответствующим операторам для отдельных слоев применяется алгоритм добавления, аналогичный описанному в [27] (разд.4). Операторы, характеризующие прохождение света через границы раздела с резким скачком показателя преломления, рассчитываются с помощью формул Френеля (разд.5), аналогично тому, как это делается в алгоритме ADM, предложенном Праплом [11]. В качестве последнего слоя системы может рассматриваться полубесконечная рассеивающая среда (возможно, люминесцирующая).

## 2. Дискретная форма уравнения переноса излучения для многослойных люминесцирующих сред

### 2.1. Уравнения переноса излучения

Предлагаемый метод расчета опирается на систему двух связанных стационарных уравнений переноса, описывающих распространение излучения в пределах плоскопараллельного рассеивающего слоя с пространственно

независимыми параметрами поглощения, рассеяния и люминесценции (однородного рассеивающего слоя). Одно из этих уравнений описывает пространственную эволюцию энергетической яркости  $I_{\text{ex}}$  возбуждающего излучения, монохроматического с длиной волны  $\lambda_{\text{ex}}$  или квази-монохроматического с центральной длиной волны  $\lambda_{\text{ex}}$  и эффективным спектральным диапазоном  $\Delta\lambda_{\text{ex}}$  ( $\Delta\lambda_{\text{ex}} \ll \lambda_{\text{ex}}$ ), и имеет вид

$$s\nabla I_{\text{ex}}(\mathbf{r}, s) = -\mu_{\text{ex-t}} I_{\text{ex}}(\mathbf{r}, s) + \mu_{\text{ex-s}} \int_{4\pi} p_{\text{ex}}(s, s') I_{\text{ex}}(\mathbf{r}, s') d\Omega'. \quad (1)$$

Другое уравнение описывает пространственную эволюцию энергетической яркости  $I_{\Pi}$  квазимонохроматической составляющей люминесцентного излучения, спектральные компоненты которой заполняют узкий диапазон длин волн ( $\lambda_{\Pi} - \Delta\lambda_{\Pi}/2$ ,  $\lambda_{\Pi} + \Delta\lambda_{\Pi}/2$ ) с центральной длиной волны  $\lambda_{\Pi}$ :

$$s\nabla I_{\Pi}(\mathbf{r}, s) = -\mu_{\Pi-t} I_{\Pi}(\mathbf{r}, s) + \mu_{\Pi-s} \int_{4\pi} p_{\Pi}(s, s') I_{\Pi}(\mathbf{r}, s') d\Omega' + \mu_{\text{ex-a0}} Q \int_{4\pi} f(s, s') I_{\text{ex}}(\mathbf{r}, s') d\Omega'. \quad (2)$$

В этих уравнениях  $\mu_{\text{ex-s}}$  и  $\mu_{\Pi-s}$  – коэффициенты рассеяния на длинах волн  $\lambda_{\text{ex}}$  и  $\lambda_{\Pi}$  соответственно;  $\mu_{\text{ex-t}} = \mu_{\text{ex-a0}} + \mu_{\text{ex-a1}} + \mu_{\text{ex-s}}$  и  $\mu_{\Pi-t} = \mu_{\Pi-a} + \mu_{\Pi-s}$  – коэффициенты экстинкции на длинах волн  $\lambda_{\text{ex}}$  и  $\lambda_{\Pi}$ ;  $\mu_{\Pi-a}$  – коэффициент поглощения на длине волны  $\lambda_{\Pi}$ ;  $\mu_{\text{ex-a0}}$  и  $\mu_{\text{ex-a1}}$  – коэффициенты поглощения, соответственно связанный и не связанный с возбуждением люминесценции, на длине волны  $\lambda_{\text{ex}}$ ;  $p_{\text{ex}}(s, s')$  и  $p_{\Pi}(s, s')$  – фазовые функции однократного рассеяния на длинах волн  $\lambda_{\text{ex}}$  и  $\lambda_{\Pi}$ ;  $s$  и  $s'$  – единичные векторы, указывающие направления распространения рассеянного и падающего излучения соответственно;  $f(s, s')$  – фазовая функция фотолюминесценции;  $Q$  – энергетический выход люминесценции для спектрального интервала  $\Delta\lambda_{\Pi}$ ;  $d\Omega'$  – элемент телесного угла в направлении вектора  $s'$ . Функции  $p_{\text{ex}}(s, s')$ ,  $p_{\Pi}(s, s')$  и  $f(s, s')$  нормированы так, что

$$\int_{4\pi} p_{\text{ex}}(s, s') d\Omega = 1,$$

$$\int_{4\pi} p_{\Pi}(s, s') d\Omega = 1,$$

$$\int_{4\pi} f(s, s') d\Omega = 1,$$

где  $d\Omega$  – элемент телесного угла в направлении вектора  $s$ .

Будем считать, что плоскости границ слоев рассматриваемой слоистой системы параллельны плоскости  $xу$  декартовой системы координат  $xуz$ . Предполагается, что слоистая система освещается однородно. В данном случае  $I_{\text{ex}}$  и  $I_{\Pi}$  в (1) и (2) зависят только от  $z$  [11, 21], что позволяет переписать эти уравнения в виде

$$\cos\alpha \frac{dI_{\text{ex}}(z, s)}{dz} = -\mu_{\text{ex-t}} I_{\text{ex}}(z, s) + \mu_{\text{ex-s}} \int_{4\pi} p_{\text{ex}}(s, s') I_{\text{ex}}(z, s') d\Omega', \quad (3)$$

$$\cos\alpha \frac{dI_{\Pi}(z, s)}{dz} = -\mu_{\Pi-t} I_{\Pi}(z, s) +$$

$$+ \mu_{\Pi-s} \int_{4\pi} p_{\Pi}(s, s') I_{\Pi}(z, s') d\Omega' + \mu_{\text{ex-a0}} Q \int_{4\pi} f(s, s') I_{\text{ex}}(z, s') d\Omega', \quad (4)$$

где  $\alpha$  – полярный угол вектора  $s$ .

## 2.2. Дискретизация уравнений переноса

Для дискретизации уравнений переноса единичная сфера направлений разбивается на  $2M$  элементарных ячеек. Площадь  $i$ -й элементарной ячейки обозначим  $\Omega_i$ . Средние освещенности, создаваемые излучением этой ячейки, связаны с соответствующими значениями энергетической яркости на длинах волн возбуждения и люминесценции следующими соотношениями:

$$E_{\text{ex}i}(z) = \int_{\Omega_i} I_{\text{ex}}(z, s) |s_z| d\Omega \approx |\langle s_z \rangle_i| \langle I_{\text{ex}}(z, s) \rangle_i \Omega_i, \quad (5)$$

$$E_{\Pi i}(z) = \int_{\Omega_i} I_{\Pi}(z, s) |s_z| d\Omega \approx |\langle s_z \rangle_i| \langle I_{\Pi}(z, s) \rangle_i \Omega_i, \quad (6)$$

где угловые скобки  $\langle \dots \rangle_i$  означают усреднение по  $i$ -й элементарной ячейке;  $s_z$  –  $z$ -компонента вектора  $s$ . Заменяем в (3) и (4) интегрирование по телесному углу на суммирование по ячейкам и, используя (5) и (6), запишем (3) и (4) в матричном виде:

$$\frac{dE_{\Pi}}{dz} = \Delta_{\Pi} E_{\Pi} + \Delta_{\text{ex-}\Pi} E_{\text{ex}}, \quad (7)$$

$$\frac{dE_{\text{ex}}}{dz} = \Delta_{\text{ex}} E_{\text{ex}}, \quad (8)$$

где

$$[E_{\Pi}]_i = E_{\Pi i}; \quad [E_{\text{ex}}]_i = E_{\text{ex}i};$$

$$[\Delta_{\Pi}]_{ij} = -\frac{\mu_{\Pi-t} \delta_{ij}}{\langle s_z \rangle_i} + \mu_{\Pi-s} \frac{\text{sgn}(\langle s_z \rangle_i) \langle p_{\Pi}(s, s') \rangle_{ij} \Omega_i}{|\langle s_z \rangle_j|};$$

$$[\Delta_{\text{ex}}]_{ij} = -\frac{\mu_{\text{ex-t}} \delta_{ij}}{\langle s_z \rangle_i} + \frac{\text{sgn}(\langle s_z \rangle_i) \mu_{\text{ex-s}} \langle p_{\text{ex}}(s, s') \rangle_{ij} \Omega_i}{|\langle s_z \rangle_j|};$$

$$[\Delta_{\text{ex-}\Pi}]_{ij} = \mu_{\text{ex-a0}} Q \frac{\text{sgn}(\langle s_z \rangle_i) \langle f(s, s') \rangle_{ij} \Omega_i}{|\langle s_z \rangle_j|}.$$

## 2.3. Используемый метод разбиения единичной сферы направлений

Единичная сфера направлений разделяется на полусферу прямых направлений и полусферу обратных направлений. Прямыми мы будем называть световые потоки, распространяющиеся в направлении полупространства, расположенного за слоистой системой ( $s_z > 0$ ). Световые потоки, распространяющиеся в направлении полупространства, расположенного перед слоистой си-

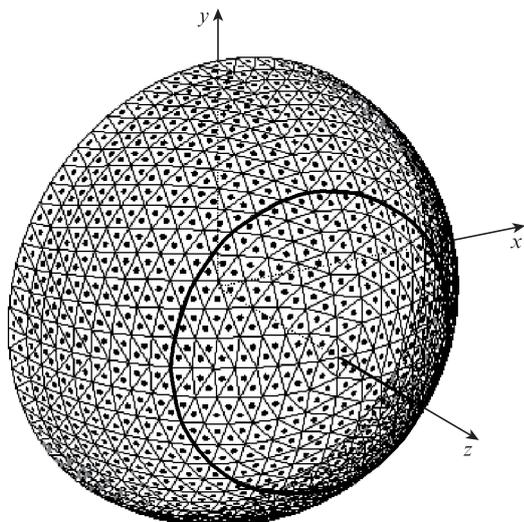


Рис.2. Базовая сетка для прямого излучения.

стемой, будут называться обратными ( $s_z < 0$ ). Для описания распространения света внутри рассеивающих слоев слоистой системы, которые, как предполагается, имеют одинаковые или близкие средние показатели преломления, вводится базовая сетка направлений распространения света, соответствующая среде со средним показателем преломления рассеивающих слоев  $n_{\text{base}}$ . Базовая сетка прямых направлений получается разбиением единичной полусферы на  $M = 4N^2$  ( $N$  – целое число) сферических треугольников с близкими площадями (базовая сетка для прямого излучения при  $N = 17$  показана на рис.2). Каждый элементарный сферический треугольник представляет собой элементарную ячейку. Базовая сетка для обратного излучения – зеркальное отражение базовой сетки для прямого излучения в плоскости  $xu$ , при этом нумерация ячеек такова, что  $i$ -я ячейка сетки для обратного излучения – зеркальный образ  $i$ -й ячейки сетки для прямого излучения. Полная базовая сетка, объединяющая сетки для прямого и обратного излучения, имеет  $2M$  элементарных ячеек, первые  $M$  из которых относятся к ячейкам базовой сетки для прямого излучения, а остальные  $M$  ячеек – к ячейкам базовой сетки для обратного излучения. При такой нумерации ячеек векторы-столбцы  $E_{\text{п}}$  и  $E_{\text{ex}}$ , входящие в уравнения (7), (8), можно представить в виде

$$E_{\text{п}} = \begin{pmatrix} \vec{E}_{\text{п}} \\ \vec{E}_{\text{п}} \end{pmatrix}, \quad E_{\text{ex}} = \begin{pmatrix} \vec{E}_{\text{ex}} \\ \vec{E}_{\text{ex}} \end{pmatrix},$$

где векторы-столбцы со стрелкой вправо характеризуют излучение, распространяющееся в прямом направлении, а векторы-столбцы со стрелкой влево – излучение, распространяющееся в обратном направлении.

### 3. Решение уравнений переноса излучения для однородного слоя

#### 3.1. Общее решение

Здесь для упрощения формул будем считать, что граница некоторого однородного слоя совпадает с плоскостью  $z = 0$  и он расположен в полупространстве  $z \geq 0$ . Представим вектор  $E_{\text{ex}}$  в виде линейной комбинации нормированных собственных векторов  $\psi_{\text{ex}j}$  ( $\psi_{\text{ex}j}^T \psi_{\text{ex}j} = 1$ , где символ  $T$  означает транспонирование) матрицы  $\Delta_{\text{ex}}$ :

$$E_{\text{ex}} = \sum_{j=1}^{2M} A_{\text{ex}j} \psi_{\text{ex}j} = \Psi_{\text{ex}} A_{\text{ex}}, \quad (9)$$

где  $\Psi_{\text{ex}}$  – матрица, столбцами которой являются векторы  $\psi_{\text{ex}j}$ ,

$$\Psi_{\text{ex}} = (\psi_{\text{ex}1} \psi_{\text{ex}2} \dots \psi_{\text{ex}(2M)}),$$

а  $A_{\text{ex}} = [A_{\text{ex}j}]$  –  $2M$ -вектор-столбец амплитуд  $A_{\text{ex}j}$ . Векторы типа  $E_{\text{ex}}$  мы будем называть векторами состояния в  $E$ -представлении, а векторы типа  $A_{\text{ex}}$  – векторами состояния в  $A$ -представлении. Перепишем уравнение (8), используя  $A$ -представление:

$$\frac{dA_{\text{ex}}}{dz} = \gamma_{\text{ex}} A_{\text{ex}}. \quad (10)$$

Здесь  $\gamma_{\text{ex}} = \Psi_{\text{ex}}^{-1} \Delta_{\text{ex}} \Psi_{\text{ex}}$  – диагональная матрица с элементами  $[\gamma_{\text{ex}}]_{ii} = \gamma_{\text{ex}i}$ , где  $\gamma_{\text{ex}i}$  – собственное значение матрицы  $\Delta_{\text{ex}}$ , соответствующее собственному вектору  $\psi_{\text{ex}i}$ . Общее решение уравнения (10) может быть представлено в виде

$$A_{\text{ex}}(z) = e^{\gamma_{\text{ex}} z} A_{\text{ex}}(0), \quad (11)$$

где  $e^{\gamma_{\text{ex}} z}$  – диагональная матрица с элементами  $[e^{\gamma_{\text{ex}} z}]_{ii} = e^{\gamma_{\text{ex}i} z}$ . Согласно (9) и (11), уравнение (8) имеет следующее общее решение:

$$E_{\text{ex}}(z) = \Psi_{\text{ex}} e^{\gamma_{\text{ex}} z} \Psi_{\text{ex}}^{-1} E_{\text{ex}}(0). \quad (12)$$

Теперь, аналогично (9), представим вектор  $E_{\text{п}}$  в виде линейной комбинации нормированных собственных векторов  $\psi_{\text{п}i}$  матрицы  $\Delta_{\text{п}}$ :

$$E_{\text{п}} = \Psi_{\text{п}} A_{\text{п}},$$

и, используя (11), запишем (7) в  $A$ -представлении:

$$\frac{dA_{\text{п}}}{dz} = \gamma_{\text{п}} A_{\text{п}} + F e^{\gamma_{\text{ex}} z} A_{\text{ex}}(0), \quad (13)$$

где  $F = \Psi_{\text{п}}^{-1} \Delta_{\text{ex-п}} \Psi_{\text{ex}}$ ;  $\gamma_{\text{п}}$  – диагональная матрица с элементами  $[\gamma_{\text{п}}]_{ii} = \gamma_{\text{п}i}$ ;  $\gamma_{\text{п}i}$  – собственное значение, соответствующее собственному вектору  $\psi_{\text{п}i}$ . Общее решение (13) может быть взято в виде

$$A_{\text{п}}(z) = e^{\gamma_{\text{п}} z} A_{\text{п}}(0) + \Gamma e^{\gamma_{\text{ex}} z} A_{\text{ex}}(0),$$

где  $\Gamma$  – матрица с компонентами

$$[\Gamma]_{ij} = \begin{cases} \frac{[F]_{ij}}{\gamma_{\text{ex}j} - \gamma_{\text{п}i}} & \text{при } \gamma_{\text{ex}j} \neq \gamma_{\text{п}i}, \\ z[F]_{ij} & \text{при } \gamma_{\text{ex}j} = \gamma_{\text{п}i}. \end{cases}$$

В  $E$ -представлении это решение имеет следующий вид:

$$E_{\text{п}}(z) = \Psi_{\text{п}} e^{\gamma_{\text{п}} z} \Psi_{\text{п}}^{-1} E_{\text{п}}(0) + \Psi_{\text{п}} \Gamma e^{\gamma_{\text{ex}} z} \Psi_{\text{ex}}^{-1} E_{\text{ex}}(0). \quad (14)$$

#### 3.2. Алгоритм расчета матриц пропускания и отражения для однородного слоя

Используя общее решение (12), найдем выражения для матриц пропускания и отражения слоя толщиной  $d$ .

Допустим, что слой ограничен плоскостями  $z = z_1$  и  $z = z_2$  ( $z_2 - z_1 = d$ ). Матрица пропускания  $\vec{T}$  ( $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \vec{T}\vec{E}_{\text{ex}}(z_1)$ ) при  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \mathbf{O}$ , где  $\mathbf{O}$  – нулевой вектор) и матрица отражения  $\vec{R}$  ( $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \vec{R}\vec{E}_{\text{ex}}(z_1)$  при  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \mathbf{O}$ ) для излучения, падающего на слой со стороны  $z = z_1$ , рассчитываются, исходя из граничного условия  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \mathbf{O}$ , а матрица пропускания  $\vec{T}$  ( $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \vec{T}\vec{E}_{\text{ex}}(z_2)$  при  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \mathbf{O}$ ) и матрица отражения  $\vec{R}$  ( $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \vec{R}\vec{E}_{\text{ex}}(z_2)$  при  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \mathbf{O}$ ) для излучения, падающего на слой со стороны  $z = z_2$ , – исходя из условия  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \mathbf{O}$ . Согласно (12)

$$\mathbf{E}_{\text{ex}}(z_2) = \mathbf{T}_{\text{ex}}(d)\mathbf{E}_{\text{ex}}(z_1), \quad \mathbf{T}_{\text{ex}}(d) = \Psi_{\text{ex}} e^{\gamma_{\text{ex}}d} \Psi_{\text{ex}}^{-1},$$

где  $\mathbf{T}_{\text{ex}}(d) - 2M \times 2M$ -матрица передачи для слоя на длине волны возбуждения. Существуют различные способы расчета матриц пропускания и отражения на основе подобного представления [28, 32, 33]. Известно, что методы прямого расчета матриц пропускания и отражения по матрицам передачи для слоя типа  $\mathbf{T}_{\text{ex}}(d)$  (техника матриц передачи) являются численно нестабильными при больших толщинах слоя [33] из-за наличия в матрице передачи очень больших элементов, рассчитываемых через экспоненциально растущие с увеличением  $d$  элементы экспоненциальной матрицы. При толщинах слоя, для которых значения этих элементов становятся очень большими, в расчетах реализуется ситуация, когда малые величины находятся как разность очень больших чисел, что в компьютерных вычислениях приводит к большой потере точности из-за ограниченности разрядной сетки. Как показали численные эксперименты, при использовании в расчетах арифметики двойной точности техника матриц передачи способна обеспечить хорошую точность расчета только при условии, что величина наибольшего из элементов экспоненциальной матрицы не превышает  $e^{15}$ , т. е. применимость этой техники в нашем случае ограничена диапазоном толщин  $d \leq 15/\gamma_{\text{max}}$ , где  $\gamma_{\text{max}}$  – значение максимального из  $\gamma_{\text{ex}i}$  (для примера, в расчетах (разд.7) для кожи на длине волны 519 нм  $\gamma_{\text{max}} = 0.419 \text{ мкм}^{-1}$ ).

Во избежание нестабильностей при численном решении подобных задач используются несколько более сложные методы, в которых операции с растущими экспонентами исключены. Так, в работе [28] был предложен численно стабильный алгоритм расчета матриц пропускания и отражения в рамках метода сингулярных собственных функций с применением  $P_N$ -метода. Используя тот же принцип, мы разработали достаточно быстрый и стабильный алгоритм расчета матриц пропускания и отражения для рассматриваемой задачи. Он заключается в следующем. Поскольку спектр собственных значений уравнения переноса состоит из пар равных по модулю, но противоположных по знаку собственных значений [13, 21, 28, 31, 32], а в нашем случае это, в частности, означает, что число положительных и отрицательных членов в множестве  $\{\gamma_{\text{ex}i}\}$  ( $i = 1, 2, \dots, 2M$ ) одинаково, можно пронумеровать пары  $(\gamma_{\text{ex}i}, \psi_{\text{ex}i})$  так, чтобы для первых  $M$  пар  $\gamma_{\text{ex}i}$  были отрицательными. При таком выборе модового базиса вектор  $\mathbf{A}_{\text{ex}}$  имеет вид

$$\mathbf{A}_{\text{ex}} = \begin{pmatrix} \vec{A}_{\text{ex}} \\ \vec{A}_{\text{ex}} \end{pmatrix}, \quad (15)$$

где вектор  $\vec{A}_{\text{ex}}$  содержит амплитуды  $A_{\text{ex}i}$  модовых составляющих, имеющих отрицательные  $\gamma_{\text{ex}i}$ , и характеризует излучение, распространяющееся в  $+z$ -направлении, а век-

тор  $\vec{A}_{\text{ex}}$  характеризует излучение, распространяющееся в  $-z$ -направлении. Выбрав модовый базис таким, представим матрицы  $\Psi_{\text{ex}}$  и  $e^{\gamma_{\text{ex}}d}$  в блочном виде:

$$\Psi_{\text{ex}} = \begin{pmatrix} \Psi_{\text{ex}11} & \Psi_{\text{ex}21} \\ \Psi_{\text{ex}12} & \Psi_{\text{ex}22} \end{pmatrix}, \quad e^{\gamma_{\text{ex}}d} = \begin{pmatrix} e^{\gamma_{\text{ex}+}d} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & e^{\gamma_{\text{ex}-}d} \end{pmatrix}, \quad (16)$$

где  $\mathbf{0}$  – нулевая матрица. Значения всех ненулевых элементов диагональной матрицы  $\gamma_{\text{ex}+}$  отрицательны, а значения всех ненулевых элементов матрицы  $\gamma_{\text{ex}-}$  положительны. Введем обозначения:

$$\begin{aligned} C_{EAex1} &= \Psi_{\text{ex}11}^{-1}, & C_{EEex1} &= \Psi_{\text{ex}21} \Psi_{\text{ex}11}^{-1}, \\ C_{AEex1} &= \Psi_{\text{ex}22} - \Psi_{\text{ex}21} \Psi_{\text{ex}11}^{-1} \Psi_{\text{ex}12}, \\ C_{AAex1} &= -\Psi_{\text{ex}11}^{-1} \Psi_{\text{ex}12}, \\ C_{AEex2} &= \Psi_{\text{ex}11} - \Psi_{\text{ex}12} \Psi_{\text{ex}22}^{-1} \Psi_{\text{ex}21}, \\ C_{AAex2} &= -\Psi_{\text{ex}22}^{-1} \Psi_{\text{ex}21}, \\ C_{EAex2} &= \Psi_{\text{ex}22}^{-1}, & C_{EEex2} &= \Psi_{\text{ex}12} \Psi_{\text{ex}22}^{-1}. \end{aligned} \quad (17)$$

Тогда, в соответствии с (12) и граничными условиями, матрицы  $\vec{T}$ ,  $\vec{R}$ ,  $\vec{T}$  и  $\vec{R}$  могут быть представлены следующим образом:

$$\vec{T} = C_{AEex2} \vec{Y}_{\text{ex}}, \quad \vec{T} = C_{AEex1} e^{-\gamma_{\text{ex}-}d} \vec{Y}_{\text{ex}}, \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \vec{R} &= C_{EEex1} + C_{AEex1} e^{-\gamma_{\text{ex}-}d} C_{AAex2} \vec{Y}_{\text{ex}}, \\ \vec{R} &= C_{EEex2} + C_{AEex2} e^{\gamma_{\text{ex}+}d} C_{AAex1} e^{-\gamma_{\text{ex}-}d} \vec{Y}_{\text{ex}}, \end{aligned} \quad (19)$$

$$\vec{Y}_{\text{ex}} = (\mathbf{U} - e^{\gamma_{\text{ex}+}d} C_{AAex1} e^{-\gamma_{\text{ex}-}d} C_{AAex2})^{-1} e^{\gamma_{\text{ex}+}d} C_{EAex1},$$

$$\vec{Y}_{\text{ex}} = (\mathbf{U} - C_{AAex2} e^{\gamma_{\text{ex}+}d} C_{AAex1} e^{-\gamma_{\text{ex}-}d})^{-1} C_{EAex2},$$

где  $\mathbf{U}$  – единичная матрица. В этих формулах отсутствуют экспоненциальные множители, показатели которых возрастают с увеличением  $d$ , что делает их очень удобными и надежными в вычислительном плане при рассмотрении слоев любой толщины (см. Приложение). Матрицы, требующие обращения, в выражениях (18), (19) при увеличении  $d$  асимптотически приближаются к единичной матрице, поэтому обратные им матрицы при увеличении  $d$  также асимптотически приближаются к единичной и сохраняют свою устойчивость. Ни одна из матриц, с помощью которых рассчитываются в данном случае матрицы пропускания и отражения, не имеет очень больших по сравнению с единицей элементов, поэтому существенной потери точности за счет округлений, обусловленных ограниченностью разрядной сетки, при использовании этих формул не происходит. Согласно (19) матрица отражения для слоя бесконечной толщины (полубесконечного слоя) может быть рассчитана по формуле

$$\vec{R} = C_{EEex1}.$$

Таким же образом могут быть рассчитаны аналогичные операторы пропускания и отражения для люминесцентного излучения:  $\vec{t}$  ( $\vec{E}_{\text{in}}(z_2) = \vec{t}\vec{E}_{\text{in}}(z_1)$  при  $\vec{E}_{\text{in}}(z_2) = \mathbf{O}$ ),  $\vec{r}$  ( $\vec{E}_{\text{in}}(z_1) = \vec{r}\vec{E}_{\text{in}}(z_1)$  при  $\vec{E}_{\text{in}}(z_2) = \mathbf{O}$ ),  $\vec{t}$  ( $\vec{E}_{\text{in}}(z_1) = \vec{t}\vec{E}_{\text{in}}(z_2)$  при  $\vec{E}_{\text{in}}(z_1) = \mathbf{O}$ ) и  $\vec{r}$  ( $\vec{E}_{\text{in}}(z_2) = \vec{r}\vec{E}_{\text{in}}(z_2)$  при  $\vec{E}_{\text{in}}(z_1) = \mathbf{O}$ ).

### 3.3. Алгоритм расчета матриц возбуждения люминесценции

Будем описывать связь потоков люминесцентного излучения, выходящего из слоя, с потоком возбуждающего излучения при падении последнего на слой со стороны  $z < z_1$  с помощью матриц возбуждения  $\vec{F}$  ( $\vec{E}_{\text{пл}} = \vec{F}\vec{E}_{\text{ex}}$ ) и  $\vec{B}$  ( $\vec{E}_{\text{пл}} = \vec{B}\vec{E}_{\text{ex}}$ ), а при падении со стороны  $z > z_2$  – с помощью матриц возбуждения  $\vec{F}$  ( $\vec{E}_{\text{пл}} = \vec{F}\vec{E}_{\text{ex}}$ ) и  $\vec{B}$  ( $\vec{E}_{\text{пл}} = \vec{B}\vec{E}_{\text{ex}}$ ). Матрицы  $\vec{F}$  и  $\vec{B}$  соответствуют граничным условиям  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_2) = \vec{O}$ ,  $\vec{E}_{\text{пл}}(z_2) = \vec{O}$  и  $\vec{E}_{\text{пл}}(z_1) = \vec{O}$ , а матрицы  $\vec{F}$  и  $\vec{B}$  – граничным условиям  $\vec{E}_{\text{ex}}(z_1) = \vec{O}$ ,  $\vec{E}_{\text{пл}}(z_2) = \vec{O}$  и  $\vec{E}_{\text{пл}}(z_1) = \vec{O}$ . Используя общее решение (14), а также формулы (15)–(17), можно получить следующие выражения для этих матриц возбуждения:

$$\vec{F} = C_{AE\Pi 2} \vec{p}, \quad \vec{F} = C_{AE\Pi 1} e^{-\gamma_n d} \vec{p} + \vec{J} \vec{Y}_{\text{ex}}, \quad (20)$$

$$\vec{B} = \vec{L} + C_{AE\Pi 1} e^{-\gamma_n d} C_{AA\Pi 2} \vec{p} + \vec{J} C_{AA\text{ex} 2} \vec{Y}_{\text{ex}}, \quad (21)$$

$$\vec{B} = C_{AE\Pi 2} (\vec{L} \vec{Y}_{\text{ex}} + e^{\gamma_n d} C_{AA\Pi 1} e^{-\gamma_n d} \vec{p}),$$

где

$$\vec{p} = (U - e^{\gamma_n d} C_{AA\Pi 1} e^{-\gamma_n d} C_{AA\Pi 2})^{-1} (\vec{J} + \vec{L} C_{AA\text{ex} 2} \vec{Y}_{\text{ex}});$$

$$\vec{p} = (U - C_{AA\Pi 2} e^{\gamma_n d} C_{AA\Pi 1} e^{-\gamma_n d})^{-1} C_{AA\Pi 2} \vec{L} \vec{Y}_{\text{ex}};$$

$$\vec{J} = e^{\gamma_n d} \vec{q} + \vec{F}_A C_{EA\text{ex} 1}; \quad \vec{J} = C_{AE\Pi 1} \vec{q};$$

$$\vec{L} = C_{AE\Pi 1} \vec{B}_A C_{EA\text{ex} 1};$$

$$\vec{L} = \vec{B}_A + e^{\gamma_n d} C_{AA\Pi 1} \vec{q} + \vec{F}_A C_{AA\text{ex} 1} e^{-\gamma_n d};$$

$$\vec{q} = C_{AA\Pi 1} \vec{B}_A C_{EA\text{ex} 1}; \quad \vec{q} = \vec{F}_A + \vec{B}_A C_{AA\text{ex} 1} e^{-\gamma_n d}; \quad (22)$$

$$\vec{F}_A = \Gamma_{11} e^{\gamma_n d} - e^{\gamma_n d} \Gamma_{11}; \quad \vec{B}_A = \Gamma_{21} - e^{-\gamma_n d} \Gamma_{21} e^{\gamma_n d};$$

$$\vec{F}_A = \Gamma_{22} e^{-\gamma_n d} - e^{-\gamma_n d} \Gamma_{22}; \quad \vec{B}_A = \Gamma_{12} - e^{\gamma_n d} \Gamma_{12} e^{-\gamma_n d};$$

$$C_{AE\Pi 1} = \Psi_{\Pi 22} - \Psi_{\Pi 21} \Psi_{\Pi 11}^{-1} \Psi_{\Pi 12}; \quad C_{AA\Pi 1} = -\Psi_{\Pi 11}^{-1} \Psi_{\Pi 12};$$

$$C_{AE\Pi 2} = \Psi_{\Pi 11} - \Psi_{\Pi 12} \Psi_{\Pi 22}^{-1} \Psi_{\Pi 21};$$

$$C_{AA\Pi 2} = -\Psi_{\Pi 22}^{-1} \Psi_{\Pi 21};$$

$\Gamma_{ij}$  – блоки матрицы

$$\Gamma = \begin{pmatrix} \Gamma_{11} & \Gamma_{12} \\ \Gamma_{21} & \Gamma_{22} \end{pmatrix}.$$

Расчет матриц возбуждения по формулам (20)–(22) является численно стабильным, поскольку в вычислениях отсутствуют экспоненты, возрастающие с увеличением  $d$ , и эти формулы могут быть использованы для слоев любой толщины (в отличие от выражений для аналогичных операторов, полученных в [26]). Для полубесконечного слоя оператор возбуждения люминесценции можно рассчитать по формуле

$$\vec{B} = C_{AE\Pi 1} \Gamma_{21} C_{EA\text{ex} 1}.$$

### 4. Метод добавления для многослойной системы

Алгоритм добавления позволяет рекурсивно вычислять матрицы  $\vec{T}$ ,  $\vec{R}$ ,  $\vec{t}$ ,  $\vec{r}$ ,  $\vec{F}$ ,  $\vec{B}$ ,  $\vec{T}$ ,  $\vec{R}$ ,  $\vec{t}$ ,  $\vec{r}$ ,  $\vec{F}$  и  $\vec{B}$  для всей слоистой системы по соответствующим операторам для отдельных слоев. Допустим, что для системы из первых  $n$  слоев рассчитаны полный набор операторов пропускания, отражения и возбуждения люминесценции,  $\vec{T}_{(n)}$ ,  $\vec{R}_{(n)}$ ,  $\vec{t}_{(n)}$ ,  $\vec{r}_{(n)}$ ,  $\vec{F}_{(n)}$ ,  $\vec{B}_{(n)}$ ,  $\vec{T}_{(n)}$ ,  $\vec{R}_{(n)}$ ,  $\vec{t}_{(n)}$ ,  $\vec{r}_{(n)}$ ,  $\vec{F}_{(n)}$  и  $\vec{B}_{(n)}$ , а также полный набор таких операторов для  $n+1$ -го слоя,  $\vec{T}_{n+1}$ ,  $\vec{R}_{n+1}$ ,  $\vec{t}_{n+1}$ ,  $\vec{r}_{n+1}$ ,  $\vec{F}_{n+1}$ ,  $\vec{B}_{n+1}$ ,  $\vec{T}_{n+1}$ ,  $\vec{R}_{n+1}$ ,  $\vec{t}_{n+1}$ ,  $\vec{r}_{n+1}$ ,  $\vec{F}_{n+1}$  и  $\vec{B}_{n+1}$ . Согласовав прямые и обратные потоки излучения на границе между  $n$ -м и  $n+1$ -м слоем (см. п.7.2.2 в работе [33]), можно получить следующие выражения для операторов системы из  $n+1$  слоя:

$$\vec{T}_{(n+1)} = \vec{T}_{n+1} \vec{M}_{n+1}, \quad \vec{T}_{(n+1)} = \vec{T}_{(n)} \vec{M}_{n+1}, \quad (23)$$

$$\vec{R}_{(n+1)} = \vec{R}_{(n)} + \vec{T}_{(n)} \vec{R}_{n+1} \vec{M}_{n+1}, \quad (24)$$

$$\vec{R}_{(n+1)} = \vec{R}_{n+1} + \vec{T}_{n+1} \vec{R}_{(n)} \vec{M}_{n+1},$$

$$\vec{t}_{(n+1)} = \vec{t}_{n+1} \vec{I}_{n+1}, \quad \vec{t}_{(n+1)} = \vec{t}_{(n)} \vec{I}_{n+1}, \quad (25)$$

$$\vec{r}_{(n+1)} = \vec{r}_{(n)} + \vec{t}_{(n)} \vec{r}_{n+1} \vec{I}_{n+1}, \quad (26)$$

$$\vec{r}_{(n+1)} = \vec{r}_{n+1} + \vec{t}_{n+1} \vec{r}_{(n)} \vec{I}_{n+1},$$

$$\vec{F}_{(n+1)} = \vec{t}_{n+1} \vec{m}_{n+1} + \vec{F}_{n+1} \vec{M}_{n+1}, \quad (27)$$

$$\vec{B}_{(n+1)} = \vec{B}_{(n)} + \vec{t}_{(n)} (\vec{B}_{n+1} \vec{M}_{n+1} + \vec{r}_{n+1} \vec{m}_{n+1}) + \vec{F}_{(n)} \vec{R}_{n+1} \vec{M}_{n+1}, \quad (28)$$

$$\vec{F}_{(n+1)} = \vec{t}_{(n)} \vec{m}_{n+1} + \vec{F}_{(n)} \vec{M}_{n+1}, \quad (29)$$

$$\vec{B}_{(n+1)} = \vec{B}_{n+1} + \vec{t}_{n+1} (\vec{B}_{(n)} \vec{M}_{n+1} + \vec{r}_{(n)} \vec{m}_{n+1}) + \vec{F}_{n+1} \vec{R}_{(n)} \vec{M}_{n+1}, \quad (30)$$

$$\vec{m}_{n+1} = (U - \vec{r}_{(n)} \vec{r}_{n+1})^{-1} (\vec{F}_{(n)} + \vec{B}_{(n)} \vec{R}_{n+1} \vec{M}_{n+1} + \vec{r}_{(n)} \vec{B}_{n+1} \vec{M}_{n+1}),$$

$$\vec{m}_{n+1} = (U - \vec{r}_{n+1} \vec{r}_{(n)})^{-1} (\vec{F}_{n+1} + \vec{B}_{n+1} \vec{R}_{(n)} \vec{M}_{n+1} + \vec{r}_{n+1} \vec{B}_{(n)} \vec{M}_{n+1}),$$

$$\vec{M}_{n+1} = (U - \vec{R}_{(n)} \vec{R}_{n+1})^{-1} \vec{T}_{(n)},$$

$$\vec{M}_{n+1} = (U - \vec{R}_{n+1} \vec{R}_{(n)})^{-1} \vec{T}_{n+1},$$

$$\vec{I}_{n+1} = (U - \vec{r}_{(n)}\vec{r}_{n+1})^{-1}\vec{I}_{(n)},$$

$$\vec{I}_{n+1} = (U - \vec{r}_{n+1}\vec{r}_{(n)})^{-1}\vec{I}_{n+1}.$$

Выражения, аналогичные (23)–(26), были получены для нелюминесцирующих сред в работах [11, 33]. Выражения, аналогичные (27) и (28), можно найти в работе [26]. Вычисления начинаются с  $\vec{T}_{(0)} = U$ ,  $\vec{R}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{I}_{(0)} = U$ ,  $\vec{r}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{F}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{B}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{T}_{(0)} = U$ ,  $\vec{R}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{I}_{(0)} = U$ ,  $\vec{r}_{(0)} = \mathbf{0}$ ,  $\vec{F}_{(0)} = \mathbf{0}$  и  $\vec{B}_{(0)} = \mathbf{0}$  и продолжаются по формулам (23)–(30).

## 5. Операторы, характеризующие прохождение света через границы раздела с резким скачком показателя преломления

Формулы для отдельных слоев, приведенные в пп.3.2 и 3.3, справедливы в случае падения света из среды с показателем преломления, равным  $n_{\text{base}}$ . В реалистичных модельных системах, как правило, присутствует хотя бы одна граница раздела с резким скачком показателя преломления. В модели, используемой в настоящей работе (см. разд.7), это граница раздела воздух–рассеивающая среда (кожа). Для учета отражения на таких границах раздела применяются соответствующие операторы пропускания и отражения, которые обычно рассчитываются с помощью формул Френеля для коэффициентов пропускания и отражения для границ раздела (см., напр., [11]). В рамках предлагаемого метода для излучения в воздухе и нерассеивающих слоях с показателями преломления, отличающимися от  $n_{\text{base}}$ , удобно использовать сетки, сопряженные с базовой, узловые направления которых связаны с соответствующими узловыми направлениями базовой сетки законом преломления света. Допустим, что единичные векторы  $\mathbf{n}_{b0j}$  и  $\mathbf{n}_{bij}$  ( $i = 1, 2, 3$ ) указывают соответственно среднее направление и вершины для  $j$ -й элементарной ячейки базовой сетки направлений (для слоев с показателем преломления  $n_{\text{base}}$ ) и в системе координат хуз вектор  $\mathbf{n}_{bij} = (x_{bij}, y_{bij}, z_{bij})$  ( $i = 0, 1, 2, 3$ ). Тогда аналогичные векторы для  $j$ -й элементарной ячейки сопряженной сетки для среды с показателем преломления  $n_s$  при условии, что  $n_s > n_{\text{base}}$ , могут быть представлены следующим образом:

$$\mathbf{n}_{sij} = (x_{sij}, y_{sij}, z_{sij}) = \left( \frac{n_{\text{base}}}{n_s} x_{bij}, \frac{n_{\text{base}}}{n_s} y_{bij}, \sqrt{1 - \frac{b_{ij}^2}{n_s^2}} \right), \quad (31)$$

где  $b_{ij}^2 = n_{\text{base}}^2 (x_{bij}^2 + y_{bij}^2)$ . При  $n_s < n_{\text{base}}$ , как в случае воздуха ( $n_s = 1$ ), для некоторых направлений  $\mathbf{n}_{bij}$  выполняется условие

$$b_{ij}^2 > n_s^2. \quad (32)$$

Таким направлениям соответствуют поверхностные моды в среде с показателем преломления  $n_s$ . Элементарные ячейки сопряженной сетки, для всех вершин которой выполняется условие (32) или условие  $b_{ij}^2 = n_s^2$ , считаются ячейками поверхностных мод (понятие вершина в данном случае условно). Ячейки сопряженной сетки, для всех вершин которой соотношение (32) не выполняется, соответствуют обычным распространяющимся модам. Векторы  $\mathbf{n}_{sij}$  для них рассчитываются по формуле (31). Базовую сетку всегда можно выбрать такой, чтобы в сопря-

женной сетке в среде с заданным  $n_s$  не было элементарных ячеек, на которые приходилось бы одновременно и поверхностные, и обычные моды. Преимущество использования сопряженных сеток заключается в том, что расчет матриц пропускания и отражения для границ раздела в этом случае является простым, а сами матрицы – диагональными. В вычислениях в разд.7 диагональные элементы матриц пропускания,  $\vec{T}(\vec{r})$  и  $\vec{T}(\vec{r})$ , и отражения,  $\vec{R}(\vec{r})$  и  $\vec{R}(\vec{r})$ , для границы воздух–рассеивающая среда рассчитывались соответственно как пропускательные и отражательные способности плоской границы раздела сред с показателями преломления  $n_s = 1$  и  $n_{\text{base}} = 1.4$  для неполяризованного падающего света и направлений его падения, соответствующих центрам элементарных ячеек. Эта граница раздела включалась в рекурсивную схему, представленную в разд.4 в качестве самого первого элемента.

## 6. Учет нелинейности возбуждения люминесценции

Если в рассматриваемой слоистой системе люминесцирующим является только один слой, решение для люминесцентного излучения, получаемое описанным выше способом, может рассматриваться как решение задачи о распространении света от планарного источника, заключенного между неизлучающими слоями. Свойства этого источника, светимость и угловая зависимость энергетической яркости, при заданных условиях освещения системы могут быть легко рассчитаны, как и энергетическая яркость падающего на люминесцирующий слой возбуждающего излучения и освещенности границ слоя этим излучением. Уравнение (2) предопределяет линейную зависимость светимости люминесцирующего слоя от его освещенности возбуждающим излучением. В случае ап-конверсионной люминесценции эта зависимость сложнее из-за нелинейной зависимости мощности люминесценции от мощности возбуждающего излучения [34]. Если оптическая плотность люминесцирующего слоя мала, что характерно для задач, связанных с применением ап-конверсионных наночастиц для термометрии, нелинейность возбуждения люминесценции в первом приближении может быть учтена изменением светимости люминесцирующего слоя в соответствии с заданной функциональной зависимостью светимости от освещенности слоя возбуждающим излучением при сохранении угловой зависимости энергетической яркости люминесцентного излучения, выходящего из слоя. Математически в рамках рассматриваемого метода такая коррекция сводится к простой перенормировке векторов состояния выходящего из системы люминесцентного излучения. Форма спектра выходящего люминесцентного излучения при такой коррекции не изменяется, поэтому, если конечной целью расчетов является оценка коэффициентов  $a_{\text{tp}}(\lambda_r, \lambda_i)$ , проводить коррекцию нет необходимости.

## 7. Оценка поправочных коэффициентов при расположении флуоресцирующих наночастиц в подкожных слоях

С помощью описанного выше метода нами была выполнена оценка степени трансформации формы спектра люминесцентного излучения на его пути от источника

люминесценции (наночастиц  $\text{NaYF}_4:\text{Er}^{3+}, \text{Yb}^{3+}$ , внедренных в подкожные слои) до фотоприемника. Расчеты проводились для следующей трехслойной модели. Первый слой толщиной 2 мм являлся моделью кожи, второй слой толщиной 0.5 мм – моделью слоя подкожной жировой ткани. Третий слой, рассматриваемый в расчетах как полубесконечный, служил моделью мышечной ткани. Рассматривались четыре варианта размещения наночастиц в подкожных слоях. Во всех четырех случаях предполагалось, что частицы равномерно распределены на участке толщиной 100 мкм: в первом случае (вариант 1) – в жировом слое у границы с кожей, во втором случае (вариант 2) – в жировом слое у границы с мышечной тканью, в третьем (вариант 3) и четвертом (вариант 4) случаях – в мышечной ткани на глубинах соответственно от 0.5 мм и от 1 мм, отсчитываемых от границы с жировым слоем. Фазовые функции однократного рассеяния  $p_{\text{ex}}(s, s')$  и  $p_{\text{fl}}(s, s')$  для всех слоев были взяты в форме функций Хензи–Гринштейна, флуоресценция наночастиц считалась изотропной ( $f(s, s') = 1/4\pi$ ). Предполагалось, что возбуждающее излучение с длиной волны  $\lambda_{\text{ex}} = 980$  нм падает на образец по нормали из среды с показателем преломления, равным 1 (воздух). Расчет коэффициентов  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$  проводился при  $\lambda_r = 519$  нм (G1, рис. 1),  $\lambda_1 = 526$  нм (G2),  $\lambda_2 = 538$  нм (G3) и  $\lambda_3 = 546$  нм (G4) для углов детектирования (угол между нормалью к внешней границе системы и средним направлением распространения люминесцентного излучения, попадающего в фотоприемник)  $5^\circ, 35.6^\circ$  и  $48.2^\circ$ . И использованные в расчетах значения коэффициентов поглощения ( $\mu_a$ ) и рассеяния ( $\mu_s$ ), а также фактора анизотропии рассеяния  $g$  на длинах волн 519, 526, 538, 546 и 980 нм для всех трех слоев представлены в табл.1. Значения  $\mu_a$  для кожи и жирового слоя соответствуют данным, приведенным в [35]. Значения  $g$  для этих двух слоев взяты из работ [36, 37], а коэффициенты  $\mu_s$  рассчитаны по значениям транспортного коэффициента рассеяния  $\mu'_s$  [35] и выбранным значениям  $g$ . Данные для мышечного слоя взяты из работы [38]. Средний показатель преломления всех слоев принят равным 1.4. Коэффициент  $\mu_{\text{ex-a}0}$  при  $\lambda = 980$  нм в области локализации наночастиц взят равным  $9.2 \text{ см}^{-1}$ . На длинах волн люминесценции поглощение света наночастицами не учитывалось. На участке локализации наночастиц значение  $\mu_a$  на длине

Табл.1. Параметры поглощения и рассеяния слоев, использованные в расчетах.

Слой	Длина волны (нм)	$\mu_a$ ( $\text{см}^{-1}$ )	$\mu_s$ ( $\text{см}^{-1}$ )	$g$
Кожа	519	3.33	179.67	0.77
	526	3.27	172.35	0.77
	538	3.18	166.92	0.775
	546	3.13	156.45	0.78
	980	2.48	130.5	0.92
Подкожная жировая ткань	519	1.41	457.67	0.97
	526	1.42	450.67	0.97
	538	1.44	441.33	0.97
	546	1.4	443	0.97
	980	1.06	378.8	0.975
Мышечная ткань	519	1.38	92.33	0.91
	526	1.47	92.09	0.91
	538	1.61	91.69	0.91
	546	1.71	91.42	0.91
	980	0.73	55.14	0.94

волны  $\lambda = 980$  нм увеличивалось на величину  $\mu_{\text{ex-a}0}$  относительно значения  $\mu_a$  в области слоя, свободной от наночастиц. Значения энергетического выхода люминесценции  $Q(\lambda)$  были следующими:  $Q(519 \text{ нм}) = 0.0047$ ,  $Q(526 \text{ нм}) = 0.0049$ ,  $Q(538 \text{ нм}) = 0.0274$  и  $Q(546 \text{ нм}) = 0.0151$  (при таких  $Q$  рассчитанные отношения  $f_p(\lambda_r, \lambda_i)$  близки к экспериментальным при температуре  $24^\circ\text{C}$  (см.рис.1), а квантовый выход на длине волны 538 нм составляет  $\sim 0.05$ ). Отметим, что теоретически значения  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$  не должны зависеть от выбора  $Q(\lambda)$ .

Программа для расчетов была написана на языке C#. Для алгебраических операций с матрицами и расчета собственных значений и собственных векторов матриц в ней используются соответствующие инструменты библиотеки Math.Net Numerics [39]. При вычислениях применялась арифметика двойной точности. Все расчеты проводились с помощью базовой сетки с  $N = 12$  (увеличение  $N$  при  $N \geq 12$  не приводило к существенному изменению конечных результатов). На персональном компьютере с четырехъядерным процессором AMD Ryzen 5 3500U (2.1 ГГц) время расчета для одной длины волны люминесценции не превышало 1 мин для любого из рассматриваемых вариантов.

Результаты расчета приведены в табл.2 и на рис.3. Из представленных данных видно, что во всех рассматриваемых случаях коэффициенты  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$  существенно отличаются от 1, несмотря на близость значений  $\lambda_i$  и  $\lambda_r$ . При этом значения  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$ , соответствующие разным вариантам локализации наночастиц, значительно различаются. В то же время видно, что ход функции  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda)$  определяется в основном оптическими свойствами кожи. Обращает на себя внимание тот факт, что значения  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$ , полученные для разных углов детектирования, мало отличаются

Табл.2. Рассчитанные значения коэффициентов  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$ .

Угол детектирования $i$ (град)	$\lambda_i$ (нм)	$a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$			
		вариант 1	вариант 2	вариант 3	вариант 4
5	526	1.118	1.114	1.098	1.087
	538	1.292	1.28	1.236	1.204
	546	1.563	1.541	1.463	1.409
35.6	526	1.117	1.113	1.098	1.086
	538	1.291	1.279	1.235	1.203
	546	1.559	1.538	1.46	1.406
48.2	526	1.117	1.113	1.098	1.086
	538	1.291	1.279	1.235	1.202
	546	1.557	1.536	1.458	1.405

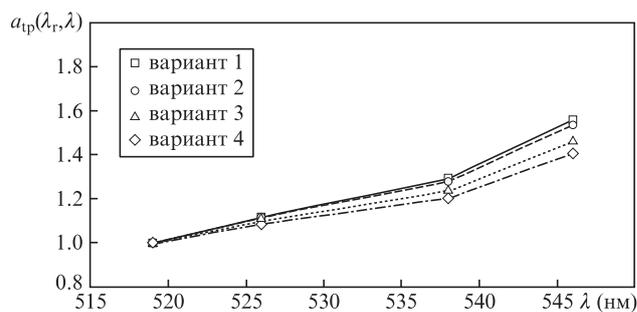


Рис.3. Рассчитанные значения коэффициентов  $a_{\text{tr}}(\lambda_r, \lambda_i)$  для угла детектирования  $5^\circ$ .

друг от друга. Это приводит к мысли, что при практических измерениях зависимостью  $a_{\text{тр}}(\lambda_r, \lambda_i)$  от угла детектирования в широком диапазоне его значений в аналогичных условиях можно пренебречь.

## 8. Заключение

Таким образом, в настоящей работе нами предложен экономичный и устойчивый метод расчета характеристик световых полей, возникающих при падении света на слоистую систему, содержащую рассеивающие и люминесцирующие слои. Этот метод применим в случае наклонного падения света на слоистую среду и одинаково эффективен при рассмотрении тонких, толстых или полубесконечных слоев. Последнее выгодно отличает его от методов стохастической трассировки волновых пакетов, опирающихся на метод Монте-Карло, вычислительная эффективность которых резко уменьшается с увеличением толщины слоев. Предложенный метод использован для оценки обусловленной рассеянием и поглощением в среде трансформации формы спектра люминесцентного излучения, возникающего в результате чрескожного лазерного возбуждения люминесценции ап-конверсионных наночастиц, внедренных в подкожные слои. Оценены поправочные коэффициенты, необходимые для определения температуры по регистрируемым спектрам люминесценции, при различной локализации наночастиц в подкожных слоях. Представленные результаты моделирования позволяют оценить погрешность определения температуры при различной точности определения локализации люминесцирующих наночастиц.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 19-12-00118).

## Приложение. Результаты тестирования программы

При тестировании программных модулей для расчета операторов пропускания и отражения однородных слоев по формулам (18) и (19) (п.3.2) было проведено сравнение результатов вычисления интегральных пропускательной ( $T_{\text{tot}}$ ) и отражательной ( $R_{\text{tot}}$ ) способностей рассеивающих слоев при нормальном падении света с использованием предложенного нами метода с результатами расчета с помощью хорошо известного и широко применяемого варианта метода добавления-удвоения, разработанного Праплом [11, 40], которые представлены в табл.5.3 и 5.4 работы [40]. Сравнивались результаты, полученные для слоев сред с  $g = 0.895$  при  $\mu_s/(\mu_s + \mu_a) = 0.6, 0.9$  и  $0.99$  и значениях оптической толщины слоя  $(\mu_s + \mu_a)d$  от 1 до 512. Расчет предложенным методом осуществлялся при  $N = 12$ . Во всех случаях относительная разность значений, полученных этими двумя методами, по абсолютной величине не превысила 0.015. Также приведем для сравнения оценки  $T_{\text{tot}}$  и  $R_{\text{tot}}$  для слоя среды с  $\mu_s = 90 \text{ см}^{-1}$ ,  $\mu_a = 10 \text{ см}^{-1}$  и  $g = 0.75$  толщиной 0.02 см, представленные в работах [11] и [41] (в обоих случаях использовались МК-алгоритмы), и оценки данных величин, полученные предлагаемым методом при  $N = 12$  и 14:  $T_{\text{tot}} = 0.09711, 0.09734, 0.09807, 0.09789$  и  $R_{\text{tot}} = 0.66159, 0.66096, 0.65956, 0.65994$  (в порядке упоминания).

- Gota C., Okabe K., Funatsu T., Harada Y., Uchiyama S. *J. Am. Chem. Soc.*, **131**, 2766 (2009).
- Yang J.-M., Yang H., Lin L. *ACS Nano*, **5** (6), 5067 (2011).
- Vetrone F., Naccache R., Zamarrón A., de la Fuente A.J., Sanz-Rodríguez F., Maestro L.M., Rodríguez E.M., Jaque D., Solé J.G., Capobianco J.A. *ACS Nano*, **4** (6), 3254 (2010).
- Zhao Y., Riemersma C., Pietra F., Koole R., de Mello Donegá C., Meijerink A. *ACS Nano*, **6** (10), 9058 (2012).
- Labeau O., Tamarat P., Lounis B. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 257404 (2003).
- Peng H., Stich M.I.J., Yu J., Sun Lining, Fischer L.H., Wolfbeis O.S. *Adv. Mater.*, **22**, 716 (2010).
- Zengliang Shi et al. *Nanotechnology*, **29**, 094001 (2018).
- Янина И.Ю., Волкова Е.К., Сагайдачная Е.А., Кочубей В.И., Тучин В.В. *Квантовая электроника*, **49**, 59 (2019) [*Quantum Electron.*, **49**, 59 (2019)].
- Исимару А. *Распространение и рассеяние волн в случайно-неоднородных средах. Т. 1* (М.: Мир, 1981).
- Тучин В.В. *Оптика биологических тканей. Методы рассеяния света в медицинской диагностике* (М.: Физматлит, 2013).
- Prahl S. *PhD Thesis* (University of Texas at Austin, 1988).
- Phillips K.G., Jacques S.L. *Proc. SPIE*, **7562**, 756207 (2010).
- Phillips K.G., Jacques S.L. *J. Opt. Soc. Am. A*, **26** (10), 2147 (2009).
- Meretska M.L., Uppu R., Vissenberg G. *Opt. Express*, **25** (20), A906 (2017).
- Hughes M.D., Borca-Tasciuc D.-A., Kaminski D.A. *Appl. Opt.*, **55** (12), 3251 (2016).
- Churmakov D.Y., Meglinsky I.V., Greenhalgh D.A. *J. Biomed. Opt.*, **9** (2), 339 (2004).
- Churmakov D.Y., Meglinsky I.V., Piletsky S.A., Greenhalgh D.A. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36** (14), 1722 (2003).
- Dremin V.V., Dunaev A.V. *J. Opt. Technol.*, **83** (1), 43 (2016).
- Crilly R.J., Cheong W.-F., Wilson B., Spears J.R. *Appl. Opt.*, **36** (25), 6513 (1997).
- Şahin D., Ilan B. *J. Opt. Soc. Am. A*, **30** (5), 813 (2013).
- Кейз К., Цвайфель П. *Линейная теория переноса* (М.: Мир, 1972).
- Ma Y., Wang M., Sun J., Hu R., Luo X. *Opt. Express*, **26** (13), 16442 (2018).
- Joshi A., Rasmussen J.C., Sevic-Muraca E.M., Wareing T.A., McGhee J. *Phys. Med. Biol.*, **53** (8), 2069 (2008).
- Klose A.D., Hielscher A.H. *Opt. Lett.*, **28** (12), 1019 (2003).
- Wiscombe W.J. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **18** (2), 245 (1977).
- Leyre S. et al. *Opt. Express*, **20** (16), 17856 (2012).
- Leyre S., Cappelle J., Durinck G. *Opt. Express*, **22** (103), A765 (2014).
- Caroll G., Aronson R. *Nucl. Sci. Eng.*, **51** (2), 166 (1973).
- Aronson R., Yarmush D.L. *J. Math. Phys.*, **7** (2), 221 (1966).
- Aronson R. *Astrophys. J.*, **177**, 411 (1972).
- Sanchez R., McCormick N.J. *Nucl. Sci. Eng.*, **80** (4), 481 (1982).
- Aronson R. *Nucl. Sci. Eng.*, **27** (2), 271 (1967).
- Yakovlev D.A., Chigrinov V.G., Kwok H.-S. *Modeling and Optimization of LCD Optical Performance* (Chichester: Wiley, 2015).
- Suyver J.F., Aebischer A., García-Revilla S., Gerner P., Güdel H.U. *Phys. Rev. B*, **71**, 125123 (2005).
- Bashkatov A.N., Genina E.A., Kochubey V.I., Tuchin V.V. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **38**, 2543 (2005).
- Van Germert M.J.C., Jaques S.L., Sterenborg H.J.C.M., Star W.M. *IEEE Trans. Biomed. Eng.*, **36**, 1146 (1989).
- Jacques S.L. *Phys. Med. Biol.*, **58**, R37 (2013).
- Nilsson A.M.K., Berg R., Andersson-Engels S. *Appl. Opt.*, **34**, 4609 (1995).
- Ruegg C., Cuda M., van Gael J. *Math.Net Numerics* (2016); <http://numerics.mathdotnet.com>.
- Prahl A.S., in *Optical-Thermal Response of Laser-Irradiated Tissue* (New York: Springer, 1995, p.101).
- Wang L., Jacques S.L. *Monte Carlo Modeling of Light Transport in Multi-layered Tissues in Standard C* (Texas: University of Texas, M.D.Anderson Cancer Center, 1992).