

ДИСТАНЦИОННОЕ ЗОНДИРОВАНИЕ АТМОСФЕРЫ,
ГИДРОСФЕРЫ И ПОДСТИЛАЮЩЕЙ ПОВЕРХНОСТИ

УДК 504.064.36

А.И. Гришин¹, Г.М. Креков¹, М.М. Крекова¹, Г.Г. Матвиенко¹,
А.Я. Суханов¹, В.И. Тимофеев², Н.Л. Фатеева¹, А.А. Лисенко¹

Исследование органического аэрозоля растительного происхождения с помощью флуоресцентного лидара

¹Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

²Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, г. Москва

Поступила в редакцию 16.01.2007 г.

Обсуждаются результаты комплексных исследований, связанных с использованием явления лазерно-индуцируемой флуоресценции (ЛИФ) для дистанционного мониторинга состояния растительного покрова. Изложены особенности функциональной схемы флуоресцентного лидара нового поколения, позволяющего регистрировать практически непрерывные спектры ЛИФ с расстояния нескольких десятков метров. Показаны потенциальные возможности лидара как для анализа традиционных спектров хлорофилла *a* в древесной растительности, так и для идентификации биоаэрозолей, являющихся продуктом вторичного метаболизма растительности. Экспериментальные измерения сопровождаются теоретико-численным анализом границ применимости развитых методов идентификации в условиях реальной замутненной атмосферы.

Введение

Лазерно-индуцированная флуоресценция (ЛИФ) как оптическое явление дает основу для создания эффективных средств дистанционного обнаружения и идентификации широкого класса молекулярных соединений, в том числе опасных для окружающей среды [1]. Следует отметить, что в аналитической фотохимии и фотобиологии методы флуоресцентной спектроскопии *in situ* давно и успешно используются. Обстоятельный перечень этих результатов (более 500 наименований) приведен в обзоре [2].

Первые успешные эксперименты по дистанционному лидарному зондированию на основе широкополосной ЛИФ были выполнены в работах по контролю содержания хлорофилла и фитопланктона в приповерхностном слое океана [3–5]. Попытки применения флуоресцентных методов для диагностики биогенного аэрозоля в тропосфере на первых этапах [6] оказались несостоятельными. Однако внедрение в практику дистанционного зондирования нового поколения фемтосекундных лазерных источников [7, 8] и новой техники стимулирования ЛИФ [9, 10] открыло новые возможности флуоресцентных лидаров в атмосферно-оптических исследованиях [11].

Наиболее плодотворной областью приложения флуоресцентных лидаров (FLIDAR – в английской транскрипции) остается мониторинг растительного покрова планеты, который содержит широкий комплекс активных флуорофоров, реагирующих на процессы метаболизма [12, 13]. В последние годы чрезвычайно актуальной стала проблема реализации эффективных дистанционных методов обнаружения и идентификации биоаэрозолей, опасных для здоровья человека (споры, бактерии, вирусы и пр.).

Как показывают лабораторные *in situ* измерения [14, 15], ЛИФ обеспечивает наивысшую чувствительность по отношению к другим методам. Лидарные измерения в реальных атмосферных условиях пока ограничены очень короткими трассами [16, 17]. Эти ограничения связаны не только с малой спектральной интенсивностью ЛИФ, но и с трудностями корректной интерпретации получаемых спектров ЛИФ. Дело в том, что спектры ЛИФ от класса протеинов и даже живых микроорганизмов часто имеют подобный качественный характер. Спектры в плотной приземной атмосфере очень широкие и не имеют характерных особенностей. Более того, на протяженных атмосферных трассах, например в вертолетной системе зондирования [18], спектры ЛИФ имеют тенденцию к искажению и сглаживанию за счет интерференции и многократного рассеяния в окружающем естественном аэрозоле. Технически эти трудности преодолеваются путем использования метода «*pump-and-probe*» [10, 11], мультиспектральной флуоресценции [19], многофотонной ЛИФ [20], эффекта насыщения флуоресценции [21], высокочастотной амплитудной модуляции ЛИФ [22].

В методическом плане хорошие перспективы связываются с применением алгоритмов искусственных нейронных сетей [23, 24].

Однако, как отмечается в [23], точность классификации и распознавания искомым образом (флуорофоров) существенно зависит от погрешности обрабатываемой информации. В этой связи нами далее предпринята попытка количественно оценить пределы возможной трансформации типовых спектров широкополосного ЛИФ в условиях реальных атмосферных трасс зондирования. Экспериментальные измерения выполнены на базе модифицированного

флуоресцентного лидара. Количественные оценки получены на основе новых алгоритмов решения нестационарного уравнения переноса широкополосного излучения ЛИФ методом Монте-Карло.

1. Модификация флуоресцентного лидара

Как отмечено выше, среди спектроскопических эффектов, привлекательных с точки зрения слежения за физиологическими функциями растений и пригодных для реализации в лидарных системах, следует выделить методы анализа флуоресценции растительных тканей. В частности, флуоресценция хлорофилла широко используется для анализа фотосинтетического аппарата растений. Фотосинтетическая функция листа и его пигментный комплекс характеризуются высокой степенью изменчивости. Эти изменения связаны с закономерностями онтогенеза листа, древесного организма и с влиянием экстремальных факторов среды, которые существенно изменяют величину и ритм ростовых процессов, интенсивность фотосинтеза и характеристики пигментной системы.

Пигментная система растений, в частности содержание хлорофилла, являясь критерием оценки состояния растительности, одновременно косвенно характеризует и состояние окружающей среды. Это свидетельствует о перспективности использования данного показателя в качестве маркерного. Современные методики биохимического определения количественного содержания хлорофилла довольно трудоемки и требуют значительных временных затрат. Кроме того, при определении содержания хлорофилла в различных растворителях нарушается нативная структура пигментного комплекса листа, что связано с трудностями интерпретации получаемых результатов. В последнее время актуальной становится проблема количественного дистанционного контроля содержания и динамики изменения вторичных метаболитов в пределах растительного покрова, отражающих условия развития растений. Все это говорит о необходимости привлечения новых методов в плане оперативного мониторинга состояния и организации пигментной системы растений.

Первые дистанционные измерения лазерно-индуцированной флуоресценции хлорофилла древесной растительности выполнены нами с помощью лидара, регистрирующего сигналы ЛИФ на фиксированных длинах волн 532, 685 и 740 нм [16, 26]. Последние две длины волны обусловлены флуоресценцией хлорофилла типа *a* и *b* соответственно.

Указанный прототип флуоресцентного лидара [16, 26] работал следующим образом. Импульс излучения на длине волны 532 нм (2-я гармоника лазера на иттрий-алюминиевом гранате) направлялся на зондируемый объем. Под действием падающего света в стоксовой области спектра возбуждается излучение спонтанной флуоресценции элемента растительного покрова или аэрозоля растительного происхождения. Часть излучения улавливается с помощью приемного телескопа и по световоду направляется на вход спектрофотометра, собранного по автоколли-

мационной схеме. В итоге получены достаточно обширные данные о динамике поведения флуоресцентных характеристик для типичных представителей древесной растительности Сибирского региона: кедра, сосны и березы. Образцы размещались на расстоянии 70 м от лазерного локатора и подвергались облучению в среднем 2 раза в неделю в темное время суток. При этом наблюдались изменения флуоресцентных характеристик хлорофилла от момента среза образцов до стадии, соответствующей полному увяданию растений. Всего было осуществлено 35 циклов измерений, при этом смена образцов происходила 6 раз за период с 20 апреля по 23 сентября 1999 г.

В целях получения более содержательной информации и, в первую очередь, расширения спектральных возможностей лидара была предпринята попытка его кардинальной модификации [36]. Далее мы отметим наиболее существенные моменты этой модификации.

В *первоначальном* варианте лидара передающая часть строилась по биаксиальной схеме на основе стеклянной оптики. В основном это было связано с тем, что в качестве источника излучения использовалась первая и вторая гармоники лазера на иттрий-алюминиевом гранате (ИАГ) с соответствующими длинами волн 1064 и 532 нм, а спектр люминесценции измерялся в области 670–850 нм.

Основные характеристики первоначального варианта лидара

Энергия лазерного импульса (первая гармоника), мДж	10–20
Длина волны излучения, нм	1064, 532
Длительность импульсов излучения, нс	10–15
Расходимость пучка излучения, мрад	6
Диаметр приемных телескопов, см	15
Угол поля зрения, мрад	9
Разрядность АЦП, бит	8
Частота дискретизации, МГц	20

Модифицированный вариант флуоресцентного лидара основан на зеркальной оптике и построен по коаксиальной схеме. Переход от стеклянной к зеркальной оптике связан с расширением спектрального диапазона как лазерного излучения, так и флуоресцентного сигнала от видимого до ультрафиолетового (о причинах расширения – ниже). Использование коаксиальной схемы вместо биаксиальной частично снимает трудности, связанные с определением фактора лидара. Для расширения функционального диапазона действия лидара реализованы ультрафиолетовые каналы возбуждения: 266 и 355 нм, что позволяет существенно увеличить класс исследуемых флуорофоров. Активизирован блок спектральной развертки принимаемого сигнала ЛИФ. Функциональная схема модифицированного флуоресцентного лидара приведена на рис. 1.

Передающая часть состоит из лазерного излучателя, коллиматора, расширяющего лазерный пучок, и плоских зеркал, обеспечивающих соосность настройки оптических осей передатчика и приемника. Приемная часть представляет собой телескоп Кассегрена, образованный параболическим зеркалом и контротражающим зеркалом.

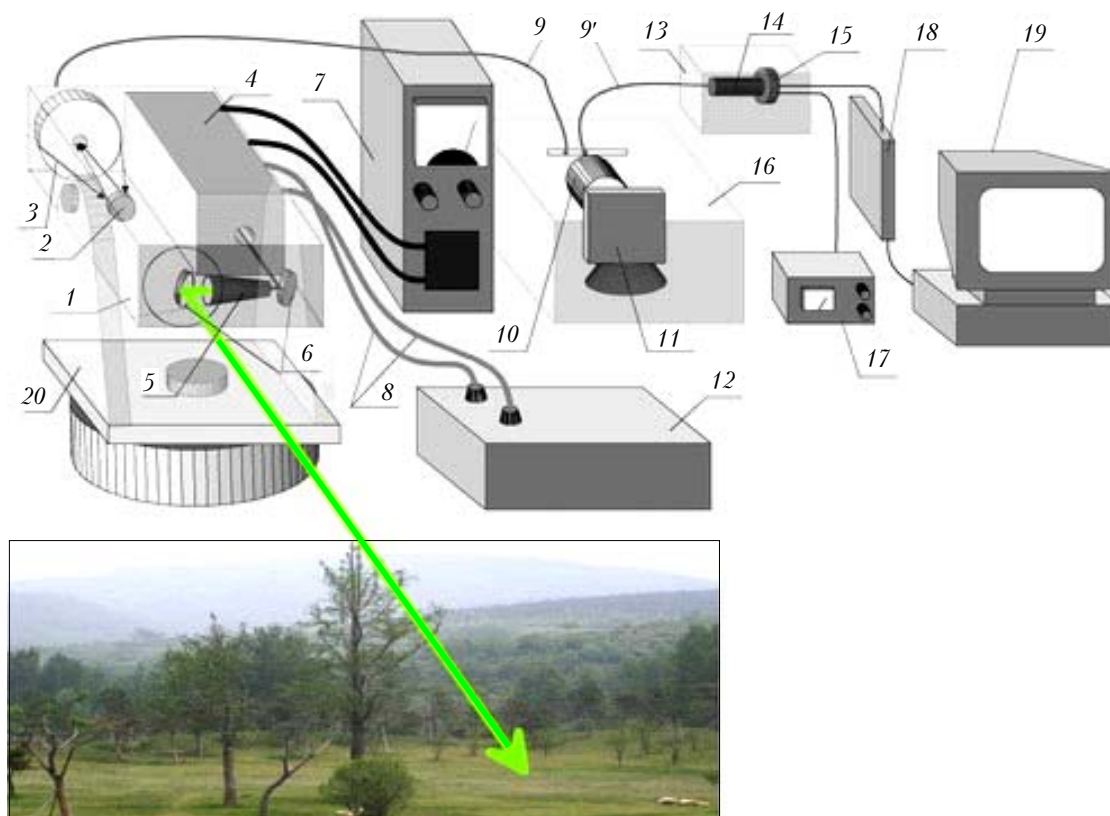


Рис. 1. Функциональная схема модифицированного флуоресцентного лидара: 1 – приемопередатчик; 2 – контротражатель приемного телескопа; 3 – параболическое зеркало; 4 – лазерный излучатель; 5 – коллиматор; 6 – плоское зеркало; 7 – блок питания лазера; 8 – шланги охлаждения лазера; 9, 9' – световоды; 10 – объектив полихроматора; 11 – дифракционная решетка; 12 – блок охлаждения; 13 – блок фотоприемника; 14 – ФЭУ; 15 – делитель напряжения; 16 – полихроматор; 17 – источник питания ФЭУ; 18 – АЦП; 19 – компьютер; 20 – поворотная колонка

Весь приемопередающий узел расположен на поворотной механической колонке, являющейся основным элементом системы наведения (СН). Путем управления вращением колонки и поворотом по углу места приемопередатчика осуществляется наводка в заданном направлении или проводятся наблюдения в выбранной области 3-мерного пространства. Кроме того, СН удерживает во время измерения ось диаграммы направленности приемопередающего тракта в заданной точке пространства с требуемой точностью.

Излучение лазерного источника через коллиматор и плоские зеркала направляется на исследуемый объект. Излучение от объекта принимается телескопом и по световоду передается в спектральный селектор, образованный собственным коллиматором и дифракционной решеткой. Разложенное по длинам волн излучение через световоды направляется в блок фотоприемника, состоящего из ряда ФЭУ. Выработанные ФЭУ электрические сигналы преобразуются в аналого-цифровом преобразователе и окончательно обрабатываются в компьютере.

Заметим, что в случае использования в качестве фотоприемника камеры на основе прибора зарядовой связи (ПЗС-матрицы) ее соединение с выходом полихроматора осуществляется напрямую, без использования дополнительных светодиодов.

Основные характеристики модифицированного варианта лидара

Энергия лазерного импульса (первая гармоника), мДж	10–20
Длина волны излучения, нм	1064, 532, 355, 266
Длительность импульсов излучения, нс	5–15
Расходимость пучка излучения, мрад	1
Диаметр приемного телескопа, см	20
Относительное отверстие	1–5
Угол поля зрения, мрад	2
Разрядность АЦП, бит	16
Частота дискретизации, МГц	100

2. Биофизические аспекты лазерно-индуцированной флуоресценции

При создании флуоресцентного лидара и его модернизации мы исходили из возможности одновременного измерения оптических характеристик растительности, ее вторичных метаболитов и, на конечном этапе, биоаэрозолей. В данном случае наиболее важным параметром лазерного локалятора оказывается длина волны излучения.

При облучении растений излучением лазера в УФ- или видимом диапазоне длин волн флуоресценция зеленых листьев обусловлена люминесцирующими веществами растительных клеток, основными из которых

являются хлорофиллы, фикобилины, алкалоиды и флавоноиды. Типичный спектр флуоресценции зеленого листа [27] при возбуждении его лазерным излучением с длиной волны 355 нм показан на рис. 2.

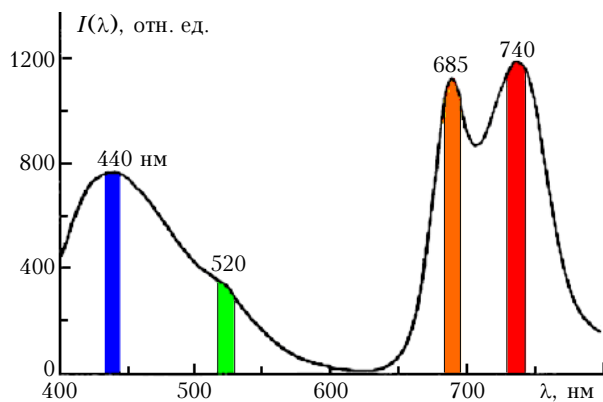


Рис. 2. Типичный спектр флуоресценции зеленого листа

Спектральная интенсивность ЛИФ свечения клеток в сине-зеленой области спектра определяется различными группами люминесцирующих веществ. К этим веществам следует отнести каротиноиды и триптофаносодержащие белки, которые флуоресцируют в области 420–460 нм, окисленные флавопротеины и коэнзимы (400–500 нм), а также продукты перекисного окисления липидов (липофусцины) 500–630 нм. Из записи спектра флуоресценции видно, что он также имеет характерные максимумы на длинах волн 685 и 740 нм. Известно, что полоса 685 нм принадлежит пигмент-белковым комплексам фотосистемы II (ФС II) фотосинтезирующего аппарата (ФСА) растения, полоса в области 740 нм является более сложной и характеризует работу ФС I. Напомним, что ФС I за счет поглощения света вызывает окисление переносчиков электронов и восстановление никотинамидадениндинуклеотидфосфата (НАДФН), а ФС II за счет поглощения света обеспечивает разложение воды с выделением кислорода и восстановлением переносчиков электронов. Люминесценция фотосинтезирующих организмов испускается основным пигментом ФСА – хлорофиллом, обеспечивающим указанные выше полосы 685 и 740 нм.

Из вышесказанного ясно, что для наблюдения люминесценции хлорофилла достаточно длины волны возбуждения немногим меньше 670 нм. В то же время очевидно, что для индуцирования спектров люминесценции белков необходимо более коротковолновое лазерное излучение с длиной волны не более 300 нм. Известно, например, что большинство вторичных метаболитов эффективно поглощают в УФ-области спектра, а флуоресцируют в ближней УФ-и видимой частях спектра.

Таким образом, оптимальная длина волны лазерного источника флуоресцентного фитолидара должна находиться в пределах 260–270 нм. Этому требованию идеально отвечает четвертая гармоника лазера на иттрий-алюминиевом гранате – 266 нм. Поэтому в модифицированном варианте лидара была предусмотрена возможность преобразования основной длины волны ИАГ-лазера как во вторую, третью, так

и в четвертую гармонику. Последнее достигалось путем установки в лазерный канал дополнительного нелинейного элемента на основе кристалла ВВО. Коэффициент преобразования основной гармоники в четвертую составляет 10%.

3. Результаты экспериментальных измерений

При антропогенном загрязнении почв первичным признаком, даже при малых концентрациях загрязняющего вещества, является изменение сигнала флуоресценции от кроны деревьев. Наибольшей чувствительностью, как ранее было замечено [28], обладают лиственные растения.

На рис. 3, а представлены результаты измерений сигнала флуоресценции от листьев березы на длинах волн 685 и 740 нм.

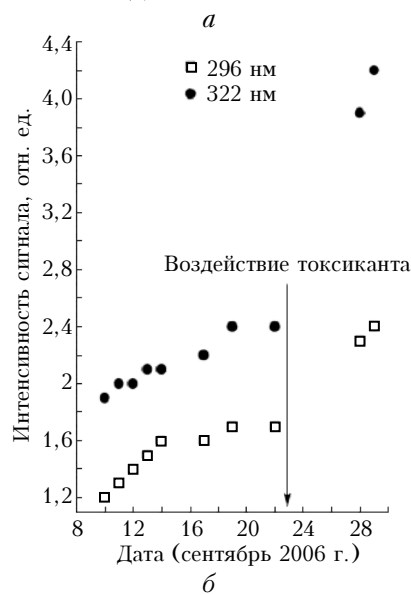
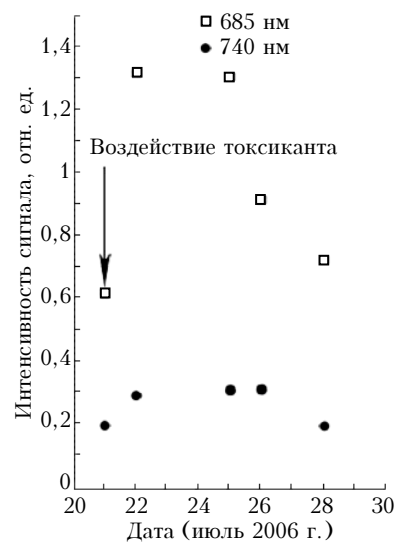


Рис. 3. Изменение сигнала флуоресценции: а – кроны березы при антропогенном загрязнении почвы легкогидролизуемым азотом; б – от аэрозольной составляющей над березой при антропогенном загрязнении почв производными бензина

Уже на второй день после загрязнения почвенного покрова вокруг корня березы сигнал флуоресценции, индуцируемой лазерным излучением с длиной волны 532 нм, увеличивается более чем в два раза для длины волны 685 и почти на 50% для 740 нм. Период адаптации растения к внешнему воздействию длится 7–8 дней, далее уровень сигналов флуоресценции для обеих длин волн возвращается к первоначальным значениям. При использовании в качестве длины волны возбуждения 4-й гармоники ИАГ-лазера более активно флуоресцирует аэрозоль растительного происхождения, содержащий в своей основе продукты вторичного метаболизма. Исследуемым объектом являлось пространство над отдельно расположенным на расстоянии 70 м деревом (береза), причем высота зондирования была выше кроны на 1 м. Интенсивность выделения вторичных метаболитов положительно коррелирует со степенью токсического загрязнения почвы. Однако временные масштабы нарастания ЛИФ, как реакции на токсическое воздействие, более затянуты и составляют 5–7 дней. При этом интенсивность ЛИФ возрастает в меньшей степени, чем для растительного покрова (в частности, на длине волны 322 нм). Это возрастание составляло 60%, а на длине волны 296 нм только 40% (рис. 3, б).

Таким образом, при антропогенном загрязнении почв первичным признаком можно назвать изменение флуоресцентной составляющей сигнала от кроны растения, за которым следует появление вторичных метаболитов и, как следствие, увеличение сигнала флуоресценции от аэрозольной составляющей вблизи растения, затем изменяется структура листового или хвойного покрова и, как следствие, — изменяется сигнал отражения. Временные диапазоны появления этих признаков зависят от концентраций загрязняющего вещества и колеблются для флуоресценции кроны — от суток до трех, для аэрозольных образований — от пяти до семи. Как отмечалось ранее [28], изменение коэффициента отражения наступает лишь при сильных повреждениях и может быть зафиксировано не ранее чем через 5 дней после появления загрязняющего вещества в почве.

Используя длину волны 266 нм в качестве возбуждающего излучения, мы впервые провели серию измерений полного спектра флуоресценции вторичных метаболитов в диапазоне 270–335 нм в зависимости от физиологического состояния растения. Измерения проводились ежедневно, начиная с 17.09.06, в ночное время суток, их результаты приведены на рис. 4. С целью создания стрессовых условий 23.09 под дерево было вылитое большое количество токсиканта. До 28.09 средний уровень сигнала флуоресценции не превышал шумового, характерного для периода 17.09–23.09. Однако 28.09 и 29.09 сигнал резко вырос, особенно в области спектра 325 нм.

Качественный анализ полученного семейства спектров флуоресценции дал основание предполагать, что резкое увеличение сигналов ЛИФ в области 325 нм связано с увеличением концентрации одного из характерных в таких случаях вторичных метаболитов растений, 1H-Indole (индола), вследствие реакции березы на стрессовое воздействие. Далее для количе-

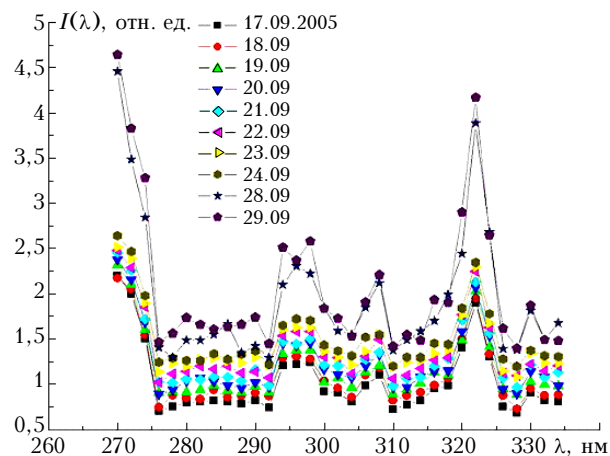


Рис. 4. Серия непрерывных спектров сигнала флуоресценции над березой, полученных в период 17.09–29.09.05

ственной идентификации спектров ЛИФ используются результаты теории метода искусственных нейронных сетей (ИНС).

4. Идентификация спектров ЛИФ

В последнее время одним из наиболее эффективных инструментов распознавания образов признан метод искусственных нейронных сетей [23, 29]. Возможности метода ИНС для решения одного класса задач атмосферной оптики показаны в работах [30, 31].

Нейронные сети представляют собой совокупность взаимосвязанных элементов нейронов, каждый из которых на входные воздействия выдает определенный выходной сигнал. Математически формальный нейрон можно описать следующим образом:

$$y = \phi \left(\sum_{i=1}^N \omega_i x_i + \omega_0 \right), \quad (1)$$

где y — выходной сигнал нейрона; ϕ — активационная функция нейрона; ω — весовые коэффициенты; N — количество входов; x — входы; ω_0 — пороговый коэффициент.

В качестве входов такой нейронной сети служат значения интенсивности спектра. В сети существует один выход, который показывает возможность распознавания, этот выход может принимать вещественное значение от 0 до 1. Принимается, что если значение больше 0,7, то спектр распознан, меньше — не распознается. Для обучения сети применяется алгоритм обратного распространения ошибки с кросс-проверкой на тестовой выборке [32].

Отдельные результаты идентификации показаны на рис. 5.

Максимум спектральных кривых ЛИФ в области 325 нм, полученных 28.09 и 29.09, уверенно идентифицируется как проявление индола (эталонный лабораторный спектр см. на рис. 5). Остальные кривые не прошли тест идентификации. Причиной этого могут быть низкий уровень концентрации биоаэрозолей либо заметный уровень атмосферных помех. К этому вопросу мы вернемся в следующем разделе.

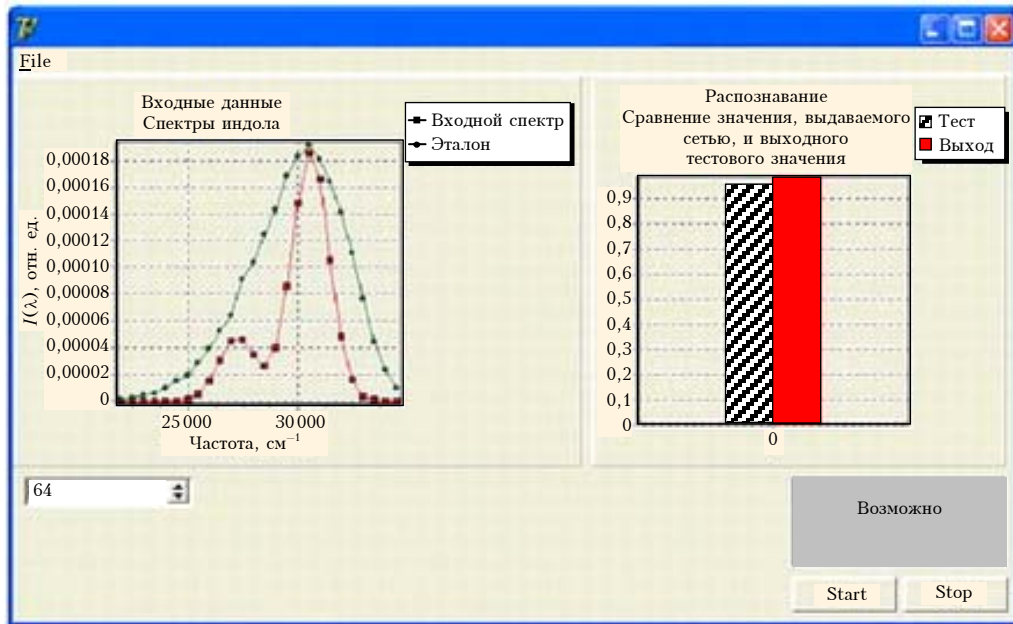


Рис. 5. Интерфейс идентификации экспериментального спектра, полученного 29.09.05 (см. рис. 4) методом ИНС

Отметим, что создание обучающей выборки проводилось путем отклонения параметров (полуширины, амплитуды, центра) гауссовых функций от эталонного спектра на некоторую малую величину в процентах от исходных значений ($A_1 = 0,1 \cdot 10^{-2}$, $h_1 = 0,1 \cdot 10^{-3}$, $\sigma_1 = 0,2 \cdot 10^{-4}$, $A_2 = 0,2 \cdot 10^{-2}$, $h_2 = 0,2 \cdot 10^{-3}$, $\sigma_2 = 0,01 \cdot 10^{-2}$). Принималось, что в случае распознавания сеть должна выдавать значение 0,95:

$$f(x) = A_1 \exp\left(-\frac{(x-h_1)^2}{2\sigma_1^2}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{(x-h_2)^2}{2\sigma_2^2}\right), \quad (2)$$

где A_1 , A_2 – амплитуды гауссовых функций, представляющих спектр; σ_1 , σ_2 – полуширины; h_1 , h_2 – центры.

5. Статистическое моделирование лазерно-индуцированной флуоресценции органического аэрозоля

Процесс распространения короткого лидарного сигнала на длинах волн возбуждения лазерно-индуцированной флуоресценции будем описывать, следуя [25], нестационарным уравнением переноса (УП) в 3D-пространстве:

$$c^{-1} \frac{\partial I(\mathbf{r}, \Omega, t)}{\partial t} + \Omega \nabla I(\mathbf{r}, \Omega, t) = -\sigma(\mathbf{r}, \lambda) I(\mathbf{r}, \Omega, t) + \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} G_M(\mathbf{r}, \Omega', \Omega) I(\mathbf{r}, \Omega', t) d\Omega' + \Phi_0(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

где $I(\mathbf{r}, \Omega, t)$ – интенсивность излучения на длине волны λ , в точке $\mathbf{r}(x, y, z)$ в направлении Ω ; $G_M(\mathbf{r}, \Omega', \Omega)$ – объемный коэффициент направленного упругого све-

торассеяния; $\sigma(\lambda)$ – полный коэффициент ослабления на длине волны λ , т.е.

$$\sigma(\lambda) = \alpha(\lambda) + \sigma_S(\lambda),$$

где $\alpha(\lambda) = \alpha_M(\lambda) + \alpha_F(\lambda)$, α_M – коэффициент поглощения частицами среды за счет тепловой диссипации; $\alpha_F(\lambda)$ – поглощение флуорофорами $\sigma_S(\lambda) = \sigma_M(\lambda) + \sigma_R(\lambda)$; $\sigma_M(\lambda)$, $\sigma_R(\lambda)$ – коэффициенты упругого и неупругого (рамановского) рассеяния.

Внешний источник $\Phi_0(\mathbf{r}, t)$ возбуждает флуорофоры с коэффициентом поглощения $\alpha_F(\lambda)$ на длине волны излучения лазера λ .

Спектральная интенсивность I_F последующей эмиссии флуоресцентного света на длине волны $\lambda' \in \Lambda$ (Λ – область спектра эмиссии) будет удовлетворять уравнению

$$c^{-1} \frac{\partial I_F(\mathbf{r}, \Omega, \tau, \lambda')}{\partial \tau} + \Omega \nabla I_F(\mathbf{r}, \Omega, \tau, \lambda') = -[\sigma_M(\mathbf{r}, \lambda') + \alpha(\mathbf{r}, \lambda)] I(\mathbf{r}, \Omega, t) + \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} G_M(\mathbf{r}, \Omega', \Omega) I(\mathbf{r}, \Omega', t) d\Omega' + \Phi_{L_0}(\mathbf{r}, \tau, \lambda, \lambda'), \quad (4)$$

где

$$\Phi_{L_0}(\mathbf{r}, \tau, \lambda, \lambda') = \frac{1}{4\pi} \eta(\lambda') \alpha_F(\lambda) q(\tau) \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \Omega, \tau, \lambda) d\Omega$$

– функция распределенных по объему среды внутренних источников ЛИФ. Очевидно [25], она будет зависеть от интенсивности возбуждающего излучения, квантовой эффективности (квантового выхода) флуоресценции $\eta(\lambda')$ и времени затухания $q(\tau)$.

В результате решения системы уравнений (3), (4) методом Монте-Карло [25] следует оценка интенсивности обратного рассеяния флуоресцентного лидара в окрестности заданного детектора.

В качестве показательных примеров рассмотрены две модельные задачи. Первая касается оценки трансформации спектра ЛИФ хлорофилла *a*, индуцируемого 2-й гармоникой излучения ИАГ-лазера на саженцах кедр, находящихся в разных условиях развития. Вторая задача связана с оценкой возможных искажений спектра флуоресценции индола за счет сложных атмосферно-оптических условий на протяженной трассе зондирования.

Численное решение системы (3), (4) обеспечивает картину пространственно-временного и спектрального распределения ЛИФ в области заданного детектора. Параметры детектора и другие граничные условия, определяющие область оценки искомого функционалов, соответствуют реальной конструкции рассмотренного выше флуоресцентного лидара, функционирующего в лаборатории лидарных методов ИОА СО РАН, за исключением того обстоятельства, что оценки дополнены результатами для широкоугольного приема.

Все оценки построены в относительных единицах, что дает основание считать, что данные для однократно рассеянного сигнала в точности соответствуют лидарному сигналу, описываемому уравнением лазерной локации. Реально существующее многократное рассеяние искажает сигнал, приводя к смещению оценки концентрации искомого флуорофора или даже к неправильной его идентификации. Как отмечено ранее [31], интегральная квантовая эффективность $\eta(\lambda')$ задавалась постоянной на уровне 0,03 ввиду отсутствия уточненных данных. Среднее время тушения принималось в пределах 5,0–10,0 нс,

что при грубой временной сетке разрешения сигнала не оказывает заметного влияния.

На рис. 6, *a* приведены оценки пространственно-разрешенных спектров ЛИФ хлорофилла *a* от пограничного слоя однородного хвойного леса в зависимости от глубины проникновения сигнала локации.

В качестве первичного, неотягощенного многократным рассеянием, сигнала ЛИФ принимался ее экспериментальный спектр, снятый от кромки леса. Выбран пример, соответствующий нормальным условиям питания кедровых саженцев (рис. 6, *б*). Эффективный коэффициент ослабления на длине волны возбуждения составлял, следуя [33], $\sigma(\lambda_l) = 0,2 \text{ м}^{-1}$. При такой высокой оптической плотности уровень сигнала пространственно-разрешенной ЛИФ резко падает. Для того чтобы оценить трансформацию формы спектров ЛИФ, все кривые на рис. 6 нормированы к одной константе. Следует отметить, что предложенная ранее [16] процедура моделирования процесса ЛИФ хорошо воспроизводит спектральные кривые сложной формы. Другие детали алгоритмов Монте-Карло для имитации переноса коротковолновой радиации в растительном покрове обсуждались в [33, 34].

В настоящее время, как следует из литературных данных, в практику спектрофлуорометрических исследований активно внедряются широкоугольные средства регистрации: фиберы, скоростные видеокамеры, лидары с монохроматорами. В этой связи на рис. 7 на примере спектра ЛИФ индола показаны возможные последствия такой регистрации пространственно разрешенных спектров ЛИФ.

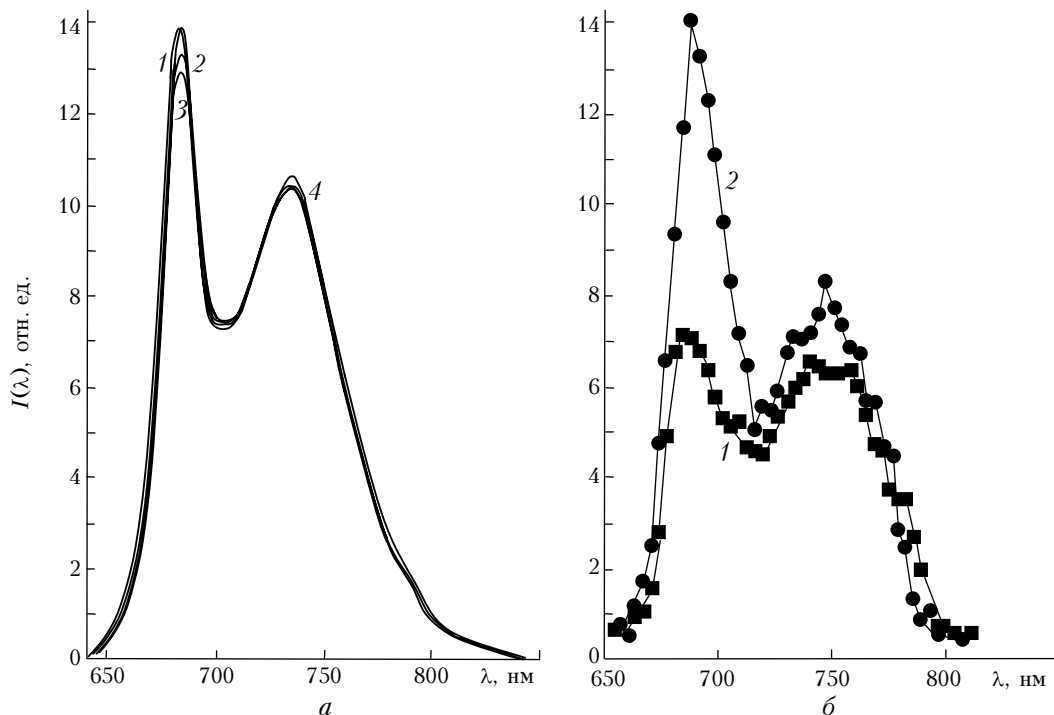


Рис. 6. Рассчитанные спектры ЛИФ хлорофилла *a* от однородной группы хвойных растений в зависимости от глубины прихода сигнала с расстояний: 5 (кривая 2), 10 (3) и 15 м (4). Эффективный коэффициент ослабления $\sigma = 0,2 \text{ м}^{-1}$; угол приема $\varphi_d = 0,9$ мрад. Кривая 1 – модельный спектр ЛИФ, взятый из экспериментальных измерений (а). Экспериментальные спектры ЛИФ от группы кедровых саженцев: 1 – нормальные условия питания, 2 – anomальные условия (б)

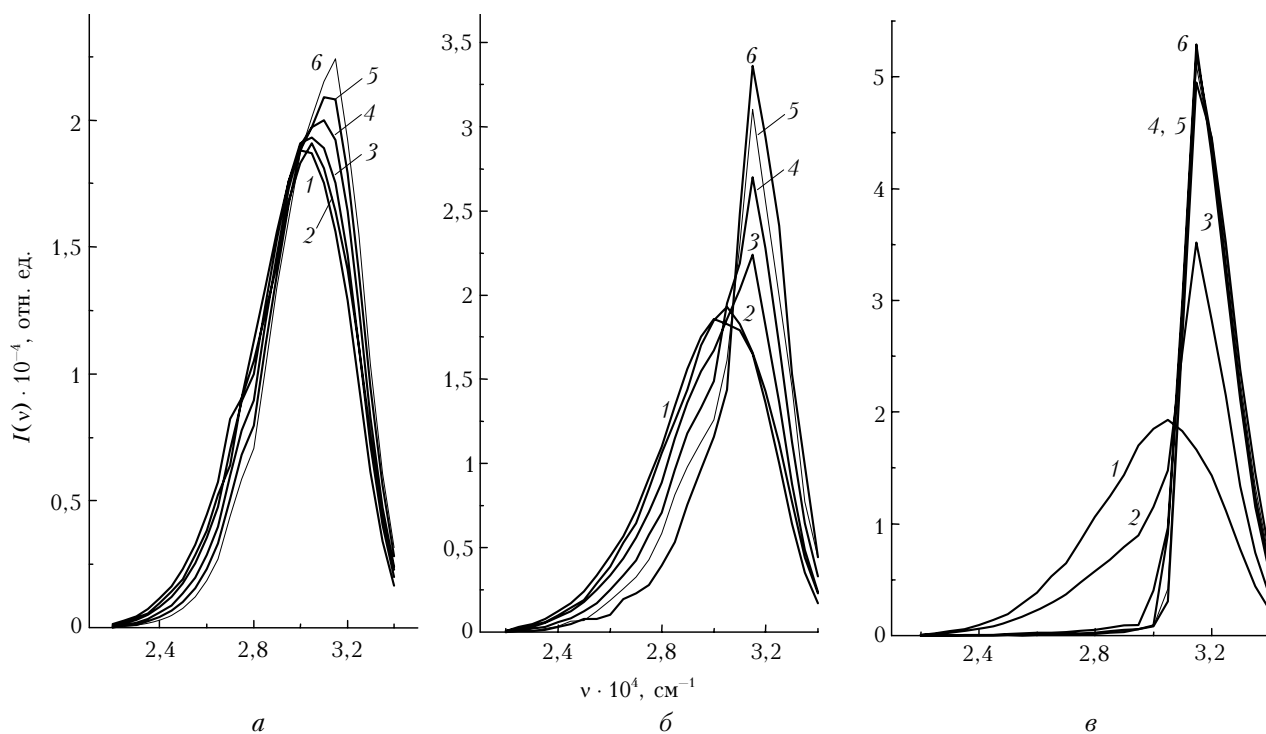


Рис. 7. Пространственно разрешенные спектры ЛИФ индола в зависимости от угла поля зрения детектора и глубины прихода сигнала с расстояний: 50 (кривая 1), 100 (2), 150 (3), 200 (4), 250 (5) и 300 м (6). Коэффициент ослабления $\sigma = 0,005 \text{ м}^{-1}$, $\varphi_d = 0,001$ (а); $0,01745$ (б); $0,0874$ рад (в)

На рис. 7 приведены примеры расчета спектров ЛИФ индола, возбуждаемого на длине волны $\lambda_l = 0,266 \text{ мкм}$ в зависимости от угла поля зрения детектора и оптической плотности окружающей среды. Пространственно разрешенные спектры ЛИФ рассчитаны для модели туманной дымки, $\sigma = 0,005 \text{ м}^{-1}$, содержащей изотропно распределенные центры флуоресценции. Оптические параметры среды для модели полидисперсного жидкокапельного аэрозоля взяты из работы [35]. Переменные по спектру значения $\sigma(\lambda)$ и индикатрисы рассеяния среды рассчитывались в процессе моделирования в спектральной области эмиссии $\Lambda = 350 \div 525 \text{ нм}$ с шагом $\Delta\lambda = 5 \text{ нм}$.

Трансформация спектров на рис. 7 отражает относительный рост интенсивности коротковолновой компоненты флуоресцентного сигнала («посинение спектра»). Трансформация является следствием упругого многократного рассеяния флуоресцентного излучения по мере увеличения угла поля зрения детектора: $\varphi_d = 0,001$; $0,01745$; $0,087$ рад. Следует заметить, что возникший в коротковолновой части спектра максимум кривых на рис. 7, в практически целиком обусловлен сигналом многократного рассеяния и не несет полезной информации о спектральном характере ЛИФ. Это заставляет с осторожностью подходить к перспективам использования широкоугольных систем оптического детектирования в лидарных системах.

Заключение

Нами выполнен краткий аналитический обзор исследований, связанных с использованием явления

лазерно-индуцируемой флуоресценции. Приведено конструктивное описание модифицированного варианта флуоресцентного лидара, предназначенного для оперативного дистанционного контроля растительного покрова в естественных условиях. Широкие функциональные возможности лидара обеспечиваются использованием 2-, 3- и 4-й гармоник твердотельного ИАГ-лазера. Показана эффективность флуоресцентного лидара для дистанционной идентификации некоторых типичных форм органического аэрозоля, являющегося продуктом процессов вторичного метаболизма древесной растительности. Обнаружена устойчивая корреляция спектрального поведения ЛИФ с аномальными отклонениями условий окружающей среды, например в случае возникновения агрессивного химического воздействия.

В рамках численного моделирования методом Монте-Карло исследованы возможные искажения спектров ЛИФ в условиях реальной замутненной атмосферы. Оценки подтверждают необходимость учета фона многократного рассеяния при использовании широкоугольных апертур приема. Границы количественной идентификации спектров устанавливаются на основе метода искусственных нейронных сетей.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, грант № 07-05-00509.

1. *Topics in Fluorescence Spectroscopy. Nonlinear and Two-Photons-Induced Fluorescence* / Ed. by R. Lacovicz. N.Y.: Kluwer Acad. Pub., 2002. V. 5. 551 p.
2. *Harriman A. Photophysical processes in condensed phases* // *Photochem.* 2001. V. 32. P. 15–46.

3. Кондратьев К.Я., Поздняков Д.В. Оптические свойства природных вод и дистанционное зондирование фитопланктона. Л.: Наука, 1988. 183 с.
4. Hoge F.E., Swift R.N. Absolute tracer dye concentration using airborne laser – induced water Raman backscatter // *Appl. Opt.* 1981. V. 20. P. 1191–1201.
5. Bristow M., Nielson D., Bundy D., Furtek R. Use of water Raman emission to correct airborne laser fluorosensor data for effects of water optical attenuation // *Appl. Opt.* 1981. V. 20. P. 2889–2906.
6. Gelbwach J., Birnbaum M. Fluorescence of atmospheric aerosols and lidar implication // *Appl. Opt.* 1973. V. 12. P. 2442–2447.
7. Lidar: Range – Resolved Optical Remote Sensing of the Atmospheric / Ed. by C. Weitkamp. Singapore: Springer Science + Business Media Inc., 2005. 451 p.
8. Rairoux P., Schillinger H., Niedermeier S., Rodrigues M., Ronneberger F. Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses // *Appl. Phys.* 2000. V. 71. P. 573–580.
9. Buehler Ch., Dong C.Y., So P.T.C., French T., Gratton E. Time-resolved polarization imaging by pump-probe (stimulated emission) fluorescence microscopy // *Biophys. Journ.* 2000. V. 79. P. 536–549.
10. Clericetti A., Calpini B., Durieux E., Van Bergh H. Pump-and-probe lidar for in-situ probing of atmospheric chemistry // *Proc. SPIE.* 1992. V. 1714. P. 291–302.
11. Chehalyuk A.M., Hoge F.E., Wright C.W., Swift R.N., Yungel J.K. Airborne test of laser pump-and-probe technique for assessment of phytoplankton photochemical characteristics // *Photosynth. Res.* 2000. V. 66. P. 35–56.
12. Gunter K.P., Dahn H.-G., Ludeker W. Remote sensing vegetation status by laser-induced fluorescence // *Remote Sens. Environ.* 1994. V. 47. P.10–17.
13. Ounis A., Cerovic Z.G., Briantais J.M., Moya I. Dual-excitation FLIDAR for the estimation of epidermal UV absorption in leaves and canopies // *Remote Sens. Environ.* 2001. V. 76. P. 3–48.
14. Kaye P.H., Barton J.E., Hivst E., Clarc J.M. Simultaneous light scattering and intrinsic fluorescence measurement for the classification of airborne particles // *Appl. Opt.* 2000. V. 39. P. 3738–3745.
15. Hill S.C., Pinnick R.G., Niles S., Fell N.F., Pan Y., Bottiger J., Bronk B.V., Holler S. Fluorescence from airborne microparticles: dependence of size, concentration of fluorophorus, and illumination intensity // *Appl. Opt.* 2002. V. 41. P. 4432.
16. Гришин А.И., Матвиенко Г.Г., Харченко О.В., Тимофеев В.И., Клишкин В.М., Соколов В.Г., Зотикова А.П. Дистанционная оценка состояния фотосинтетического аппарата в растениях методом индуцируемой лазером флуоресценции // *Оптика атмосф. и океана.* 1999. Т. 12. № 4. С. 334–337.
17. Saito Y., Kanoh M., Hatake K., Kawahara T., Nomura A. Investigation laser-induced fluorescence of several natural leaves for application to lidar vegetation monitoring // *Appl. Opt.* 1998. V. 37. P. 431–437.
18. Balichenko S., Dudelzak A., Poryokina L. Laser remote sensing of coastal and terrestrial pollution by FLS-LIDAR // *Proc. EARSel.* 2004. V. 3. P. 1–7.
19. Gray P.C., Shokair I.R., Rosental S.E., Tisone G.C., Wagner Y.S., Rigdon L.D. Distinguishability of biological material by use of ultraviolet multispectral fluorescence // *Appl. Opt.* 1998. V. 37. P. 6037–6041.
20. Cristesen S., Merrow C., DeSha M., Wong A. UV fluorescence lidar detection of bioaerosols // *Proc. SPIE.* 2004. V. 2222. P. 228–237.
21. Fadeev V.V., Dolenko T.A., Filippova E.V., Chubarov V.V. Saturation spectroscopy as a method for determining the photophysical parameters of complicated organic compounds // *Opt. Commun.* 1999. V. 166. P. 25–33.
22. Shreiberg U. Detection of rapid induction kinetics with a new type of high frequency modulated chlorophyll fluorometer // *Photosynth. Res.* 1986. V. 9. P. 261–272.
23. Доленко С.А., Гердова И.В., Доленко Т.А., Фадеев В.В. Лазерная флуоресценция смесей сложных органических соединений с использованием искусственных нейронных сетей // *Квант. электрон.* 2001. Т. 31. С. 834–838.
24. Moshon D., Vrindts E., Ketelaere B., Baerdemaek J., Ramon H. A neural network based plant classifier // *Comput. and Electronic in Agriculture.* 2001. V. 31. P. 5–16.
25. Креков Г.М., Крекова М.М. Статистическое моделирование трансспектральных процессов при лазерном зондировании окружающей среды. 2. Лазерно-индуцированная флуоресценция // *Оптика атмосф. и океана.* 2007. Т. 20. № 2. С. 148–155.
26. Гришин А.И., Матвиенко Г.Г., Харченко О.В., Тимофеев В.И. Исследование флуоресценции растений при возбуждении излучением второй гармоники YAG: Nd-лазера // *Оптика атмосф. и океана.* 1997. Т. 10. № 7. С. 475–478.
27. Lichtenthaler H.K., Mische J.A. Fluorescence imaging as a diagnostic tool for plant stress // *Trends in Plant Sci.* 1997. V. 2. P. 316–320.
28. Фатеева Н.Л., Клишкин А.В., Бендер О.В., Зотикова А.П., Ямбуров М.С. Исследование лазерно-индуцированной флуоресценции хвойных и лиственных растений при азотном загрязнении почвы // *Оптика атмосф. и океана.* 2006. Т. 19. № 2–3. С. 212–215.
29. Bishop C.M. *Neural Networks for Pattern Recognition.* Oxford University Press, 1995. 272 p.
30. Катаев М.Ю., Суханов А.Я. Возможности метода нейронных сетей для восстановления профиля концентрации озона из лидарных данных // *Оптика атмосф. и океана.* 2003. Т. 16. № 12. С. 1115–1119.
31. Креков Г.М., Крекова М.М., Матвиенко Г.Г., Ковшов А.В., Суханов А.Я. Статистическое моделирование трансспектральных процессов при лазерном зондировании окружающей среды. 2. Лазерно-индуцированная флуоресценция; результаты модельных оценок // *Оптика атмосф. и океана.* 2007. Т. 20. № 3. С. 262–272.
32. Rumelhart D.E., McClelland J.L. and the PDP Research Group. *Parallel Distributed Processing: Explorations in the Microstructure of Cognition.* V. 1–2. Cambridge, MA: MIT Press, 1986. 550 с.
33. Krekov G.M., Krekova M.M., Matvienko G.G. Monte Carlo modeling of the light scattering by homogeneous vegetation in optical remote sensing // *Proc. XIII Int. Sympos. «Atmospheric Oceanic Optics».* Tomsk, 2006. P. 127–128.
34. Antyufeev V.S. Monte Carlo Methods for Solving Inverse Problems of Radiation Transfer, ISSN 90-6764-320-3. 2000. 190 p.
35. Зуев В.Е., Креков Г.М. Оптические модели атмосферы. Л.: Гидрометеондат, 1986. 256 с.
36. Гришин А.И., Клишкин В.М., Креков Г.М., Крекова М.М., Матвиенко Г.Г., Пальянов П.А., Фатеева Н.Л. Стенд лазерной дистанционной диагностики биосистем для исследования корреляционных связей между оптическими свойствами и состоянием жизнедеятельности фитосистем // Научно-технический отчет по государственному контракту № 02.452.11.7087 от 12.04.2006 г. Томск: ИОА СО РАН, 2006. 231 с.

A.I. Grishin, G.M. Krekov, M.M. Krekova, G.G. Matvienko, A.Ya. Sukhanov, V.I. Timofeev, N.L. Fateyeva, A.A. Lisenko. **Investigation of organic aerosol of vegetative origin with the fluorescent lidar.**

The paper describes the fluorescent lidar created for monitoring the atmosphere and estimating the content of fluorescent components of organic aerosol. The lidar operation is based on the use of ultraviolet radiation of solid state Nd:YAG laser for exciting the atmospheric fluorescence; the spectral analysis of the atmospheric fluorescence is used in the near ultraviolet and blue spectral ranges at a resolution of 2 nm. The lidar was found to be efficient for remote analysis of organic aerosol occurring as a result of vegetation emission of secondary metabolites to the atmosphere. Fluorescence spectra processing allows us to select some organic compounds, which molecules contain 7 and more carbon atoms. Taking into account the availability of interconnection between the organic aerosol and vegetation, the second harmonic of Nd:YAG laser is also used for exciting the vegetation fluorescence covers. In this case the receiving system detects the fluorescence of vegetation in the red spectral range conditioned by the chlorophyll of vegetation. Simultaneous detection of the fluorescence from the atmosphere and from vegetation makes it possible to obtain data on interaction of the atmosphere and underlying surface covered by vegetation. In order to better investigate the link between laser-induced fluorescence spectra and plant physiology, numerical experiments under controlled conditions were carried out for different kinds of samples and vegetation stresses. In numerical experiments some new algorithms of Monte Carlo method were used. The results of comparison with real lidar measurements are discussed.