

Recenzja

rozprawy doktorskiej mgr. inż. Michała Gałkowskiego

p.t. *Temporal and Spatial Variability of Nitrous Oxide in the Atmosphere over Małopolska Region:
Determination of Loads and Emissions*

wykonana pod opieką promotora Prof. Dr. Hab. Kazimierza Różańskiego
oraz promotora pomocniczego Dr. Inż. Jarosława Nęckiego

Recenzję wykonano na zamówienie Prof. Dr. Hab. Inż. Bartłomieja Szafrana, Prodziekana ds. Nauki i Współpracy Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo-Hutniczej im. Stanisława Staszica w Krakowie, z dn. 7.08.2015 r..

1. Zakres rozprawy

Rozprawa jest poświęcona pogłębieniu wiedzy o emisji podtlenku azotu (N_2O) w rejonie Małopolski. Podtlenek azotu jest gazem cieplarnianym o długim czasie życia w atmosferze (120-130 lat) i dużym potencjale tworzenia efektu cieplarnianego (298 razy większym od dwutlenku węgla w horyzoncie 100 lat). I chociaż procentowy udział emisji tego gazu w antropogenicznej emisji całości gazów cieplarnianych nie jest zbyt duży, to stanowi on dosyć istotny składnik emisji przyczyniającej się do efektu cieplarnianego. Ze względu na słabo rozeznane procesy tworzenia podtlenku azotu ocena jego emisji charakteryzuje się bardzo dużą niepewnością, czasem szacowaną nawet na 100% i więcej. Chociażby z tego względu pogłębienie wiedzy o emisji N_2O jest zamierzeniem ważnym dla oceny szybkości i zakresu przyszłych zmian klimatycznych. Do tego, dokładniejsze szacowanie produkcji N_2O jest istotne dla modeli cyklu obiegu azotu w przyrodzie.

Doktorant podszedł do opracowania tego zagadnienia w sposób szeroki, zbierając dostępne informacje: doniesienia literaturowe i istniejące bazy emisji, ale przede wszystkim wykonując pomiary oraz modelując dyspersję podtlenku azotu w atmosferze, aby móc skonfrontować wyniki z pomiarami. Właśnie przeprowadzone pomiary i ich analiza oraz modelowanie stanowią o sile rozprawy.

Jak można wywnioskować z treści rozprawy, doktorant był odpowiedzialny za uruchomienie rutynowych quasi-ciągłych pomiarów stężeń N_2O w powietrzu w stacjach na Kasprowym Wierchu i w Krakowie, prowadzonych od wiosny 2013 r. Pomiary te są prowadzone według wysokich standardów wypracowanych w ramach projektów prowadzonych przez międzynarodowe zespoły w specjalizowanych do tego celu sieciach. Doktorant brał czynny udział w kilku takich projektach, a zaangażowanie w nich zespołu z Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH pozwoliło na uzyskanie danych pomiarowych z innych stacji: na Jungfraujoch w Szwajcarii – będącej najważniejszą stacją wykonującą pomiary tła dla Europy, w Mace Head w Irlandii – wykonującej pomiary między innymi w

powietrzu napływającym do Europy znad Atlantyku, na Ochsenkopf w Niemczech – w niedalekiej stacji znajdującej się na wysokości zbliżonej do Kasprowego Wierchu w pobliżu granicy z Czechami, oraz w Białymstoku-Krynicy – wykonującej między innymi pomiary z okręgu o charakterze rolniczym. Dane mierzone w stacjach posłużyły do porównań z wynikami uzyskanymi z modelowania dla szacowanych pól emisyjnych.

Do tego, Doktorant wykonał lub nadzorował wykonanie serii pomiarów metodą komorową z terenów rolniczych w Małopolsce (w Zakładzie Doświadczalnym Hodowli i Aklimatyzacji Roślin w Grodkowicach, około 30 km na wschód od Krakowa) oraz z terenów miejskich w Krakowie (na Błoniach i na trawniku przed budynkiem Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH). Zebrane dane zostały przeanalizowane i opracowane. Pomiary te są liczącym się wkładem do zbioru danych o pomiarach emisji w Polsce. Szczególnie cenne są pomiary z terenów miejskich, które były przeprowadzone po raz pierwszy w Polsce i jako jedne z nielicznych na świecie.

2. Przegląd zawartości rozprawy i uwagi ogólne

Rozdział 1 zawiera wiadomości wstępne i uzasadnienie tematu rozprawy oraz główne cele pracy. Zostały one już omówione w poprzednim punkcie. Warto może jednak podkreślić dużą wagę zarówno praktyczną jak i poznawczą osiągniętych celów.

W rozdziale 2 omówiono cykl obiegu azotu oraz właściwości fizyko-chemiczne azotu i podtlenku azotu, a także przedstawiono, ważne dla dalszego ciągu rozprawy, źródła emisji i odpływy z atmosfery podtlenku azotu, a w szczególności emisję spowodowaną przez mikroorganizmy znajdujące się w glebie oraz główne źródła emisji antropogenicznej. Rozdział ten, będący podsumowaniem pewnej wiedzy ogólnej o generacji i obiegu podtlenku azotu, stanowi bardzo dobre wprowadzenie do dalszych analiz, ukazując złożoność zagadnienia oraz problemy z opracowaniem dostatecznie dokładnych modeli emisji podtlenku azotu.

Rozdział 3 rozpoczyna właściwy opis działań Doktoranta składających się na rozprawę. Znaczącą jego część zajmują jeszcze wiadomości podstawowe o pomiarach quasi-ciągłych, opis metod prowadzenia takich pomiarów i charakterystyka stacji, z których pomiary zostały użyte w rozprawie, bardzo przydatne do zrozumienia i oceny opisanych dalej wyników. Rozważania te wykazują też dobre rozeznanie Doktoranta w problemach pomiarowych. A metodologia prowadzenia pomiarów i ich kalibracja to elementy, które Doktorant wprowadził do polskich stacji pomiarowych, korzystając ze współpracy międzynarodowej w ramach prowadzonych projektów. Na podkreślenie zasługuje aktywny udział Doktoranta w opracowaniu i przetestowaniu zaleceń jakościowych dla pomiarów i uruchomienie ich w Polsce.

Dla dwupunktowej metody kalibracji jest współautorem oprogramowania do wyznaczenia skalibrowanych punktów, z zastosowaniem splajnów wygładzających do estymacji punktów maksymalnych pomocniczych krzywych pomiarowych. Szkoda, że w opisie tej metody zabrakło szczegółów, gdyż zastosowanie splajnów wygładzających pozwala na oszacowanie błędu estymacji punktów (a dokładniej odchylenia standardowego błędów), co mogłoby być może przydatne do analizy dokładności pomiarów. Ciekaw jestem komentarza od Doktoranta na ten temat.

Doktorant zaproponował też metodę wyznaczenia wskaźnika powtarzalności (repeatability) dla metody dwupunktowej. Opis ten jest dosyć skrótowy i nie bardzo rozumiem, dlaczego nie oblicza się wskaźnika powtarzalności wprost dla punktów interpolowanych, zamiast szacować go na podstawie wskaźników powtarzalności dla dwóch punktów mierzonych (SLS_1 i SLS_2). Tu też chciałbym uzyskać wyjaśnienie.

Na podkreślenie zasługuje też opracowanie przez Doktoranta metoda korekcji pomiarów strumienia emisji w zależności od temperatury, dotychczas niestosowanej w tego typu pomiarach.

Pomiary zebrane przez ponad rok zostały przetworzone, przeanalizowane i porównane z pomiarami z innych stacji. Dostyc krótki czas pomiarów nie pozwolił na poparcie wyników zaawansowanymi analizami statystycznymi. W tym też kontekście stwierdzenie ze strony 41, 14-13 w. od dołu strony, o występowaniu maksimów i minimów pomiarów w stacji na Kasprowym Wierchu o 1-2 miesiące wcześniej niż w stacji na Ochsenkopf jest dosyc ryzykowne, bo oparte na tylko jednym przypadku. Natomiast bardziej przekonujące są uśrednione wykresy zmienności dobowych, z wykazanymi różnicami między dniem i nocą, a także zmienności tygodniowych oraz wykresy obrazujące kierunkowe intensywności napływu N_2O w obu stacjach: na Kasprowym Wierchu i w Krakowie, chociaż też obarczone przypadkowością rocznych warunków meteorologicznych.

Uruchomienie rutynowych quasi-ciągłych pomiarów N_2O w dwóch stacjach w Polsce, z wysokimi standardami pomiarów, pracujących w międzynarodowych sieciach pomiarów tego gazu, jest niewątpliwie dużym osiągnięciem Doktoranta. Prowadzone pomiary służą polskiem i międzynarodowym środowiskom naukowym do lepszego zrozumienia zagadnień emisji i przepływów podtlenku azotu i stanowią cenny materiał będący podstawą do dalszych badań.

Rozdział 4 jest poświęcony pomiarom N_2O z terenów rolniczych i miejskich wykonanych metoda komorową. Na terenach rolniczych odbyły się dwie kampanie pomiarowe w Zakładzie Doświadczalnym Hodowli i Aklimatyzacji Roślin w Grodkowicach koło Krakowa, obie w 2014 r., na wiosnę (marzec – kwiecień) i na jesieni (październik). W ich trakcie przebadano emisję podtlenku azotu z gleby przeznaczonej pod różne uprawy i z różnym nawożeniem. Pomiary z terenów miejskich przeprowadzono w Krakowie na Błoniach na jesieni 2012 r. oraz na trawniku przed budynkiem Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH we wrześniu 2013 r. W ten sposób zebrano sporą liczbę pomiarów, a wśród nich, jak wspomniałem wcześniej, pomiary z terenów miejskich po raz pierwszy w Polsce.

Przedstawione wyniki wykazały zaskakująco bardzo duże zróżnicowanie zarówno w czasie, jak i w przestrzeni; na odległości kilku metrów wyniki pomiarów różniły się trzykrotnie przy szacowanym błędzie pomiaru wynoszącym około 0,5%. Wyraźnie obrazują one przyczynę tak dużej niepewności przypisywanej ocenom emisji N_2O . Sytuację komplikuje dodatkowo uwidoczniiona w pomiarach duża zależność emisji od opadów. Ciekawe, ale chyba trudne przy obecnych metodach pomiarowych byłoby pytanie, czy pomiary scałkowane ze znacznie większych powierzchni cechują się także tak dużą zmiennością. To pytanie jest związane z inwentaryzacją przestrzenną emisji, potrzebną chociażby do modelowania dyspersji N_2O w atmosferze. Obecnie najmniejsze siatki inwentaryzacji, i to raczej stosowane do modelowania dyspersji zanieczyszczeń w mieście, są rzędu setek metrów lub (bardzo rzadko) dziesiątków metrów, a dla terenów pozamiejskich rzędu kilometrów. Jeżeli przyjmiemy jednorodny charakter terenu, to wydaje się, że zmienność scałkowanej emisji w oczku takiej siatki powinna być dużo mniejsza, niż w pomiarach z obszaru około 1 m^2 . Oszacowanie błędów emisji z obszarów o rzędzie oczka siatki pozwoliłoby na znacznie lepszą ocenę błędów modelowania, gdyż właśnie błędy szacowania emisji są uważane za główny składnik, obok meteorologii, niepewności modelowanych stężeń w atmosferze. Tu jestem zainteresowany poglądem Doktoranta głównie z ciekawości, bo nawet inne opisywane przez Doktoranta metody pomiaru emisji z gruntu nie obejmują tak dużych obszarów.

Innym ciekawym wynikiem jest duża emisja z terenów miejskich, porównywalna, a nawet większa niż z niektórych nawożonych terenów rolniczych. Pomimo znacznie mniejszych celowych użyźnień gleby miejskiej (torfem, korą drzew), tereny miejskie są użyźniane w azot na przykład przez dosyc popularne dożywianie ptaków, odchody zwierząt (ptaków, psów,..), wyrzucane resztki żywności, a może także

większą depozycję suchą i moką azotu atmosferycznego w mieście. Wyniki tak dużych emisji są jednak dosyć zaskakujące.

Doktorant porównuje wyniki pomiarów z terenów rolniczych z danymi literaturowymi, otrzymując wyniki mieszczące się w podawanych w literaturze zakresie zmienności, ale w zdecydowanej większości w dolnych jej zakresach. Tłumaczenie o mniejszych dawkach nawożenia w Polsce jest przekonujące, ale może można by je było poprzeć jakimiś rozważaniami statystycznymi?

Pomiary komorowe przyniosły sporo dosyć zaskakujących informacji. Aby sprawdzić stawiane hipotezy i wyjaśnić nasuwające się pytania, potrzebne by były pewnie znacznie szersze badania, na które trzeba by było znaleźć źródła finansowania. Jednak pomiary te wniosły pewną nową informację i mogą być bardzo przydatne przy formułowaniu zakresu ewentualnych dalszych badań w przyszłości.

Rozdział 6 zawiera opis trzeciej części badań przeprowadzonych w ramach rozprawy i dotyczy modelowania dyspersji N_2O w dolnej warstwie troposfery. Po przeglądzie podstawowych typów modeli stosowanych do modelowania dyspersji zanieczyszczeń, Doktorant skoncentrował się na modelu STILT (Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport), który najpierw stosuje do badania 10-dniowych inwersji trajektorii dla stacji pomiarowej na Kasprowym Wierchu dla ustalonego w czasie pomiaru, a następnie do wyznaczenia funkcji przenoszenia (footprints) dla stacji pomiarowych na Kasprowym Wierchu i w Krakowie obliczonych na podstawie danych meteorologicznych z lat 2012-2014. Są to całkowicie nowe wyniki charakteryzujące regionalny zasięg stacji na Kasprowym Wierchu (Europa Centralna) oraz lokalny stacji w Krakowie (Aglomeracja Krakowska).

Korzystając z ocen emisji N_2O podanej w bazie IER (opracowanej przez Institute for Energy Economics and the Rational Use of Energy Uniwersytetu w Stuttgardzie w Niemczech) z rozdzielczością $10\text{ km} \times 10\text{ km}$, Doktorant zasymulował przebieg stężeń na stacjach w Krakowie i na Kasprowym Wierchu. Po uwzględnieniu stężeń tła uzyskał dobrą zgodność z pomiarami w stacji w Krakowie, gdzie stężenia były większe. Na tej podstawie ocenił, że znaczna część emisji antropogenicznej oddziaływującej na pomiary w stacji w Krakowie pochodzi z terenu Województwa Małopolskiego (około 40% w ciągu dnia i 40-80% w nocy). Gorsza zgodność z pomiarami (procentowa, co wiąże się też ze znacznie mniejszymi wartościami mierzonych stężeń) dla stacji na Kasprowym Wierchu nie pozwoliła na wysnucie w tym przypadku bardziej zaawansowanych wniosków. Doktorant zwraca też uwagę na trudny teren wysokogórski o charakterze alpejskim wokół stacji, co powoduje, że stosowane modele meteorologiczne z grubszą siatką nie potrafiły dobrze oddać warunków pomiarów.

Doktorant wykazał się w tej części rozprawy opanowaniem trudnego modelowania i umiejętnością analizy i wyciągania wniosków na podstawie wyników uzyskanych z modelowania i pomiarów. Uzyskał po raz pierwszy wiele wyników ilościowych charakteryzujących pochodzenie stężeń N_2O mierzonych w stacjach na Kasprowym Wierchu i w Krakowie. Uzyskane wyniki znacznie poszerzyły wiedzę o emisjach i dyspersji podtlenku azotu w tej części Polski i Europy oraz o roli pomiarów wykonywanych w stacjach w Krakowie i na Kasprowym Wierchu.

3. Uwagi szczegółowe

Praca jest napisana starannie. W uwagach nie zwracam uwagi na, nieliczne zresztą, drobne błędy redakcyjne, jak literówki czy opuszczone wyrazy. Przy powoływaniu się na lokalizację stosuję skrótove zapisy: s^w – strona s , wiersz w od góry strony, s_w – strona s , wiersz w od dołu strony.

39₃ – W rozprawie kilkakrotnie wspomina się o zastosowaniu splajnowy wygładzających, jednak bez podania szczegółów, np. którego stopnia splajny stosowano, jak dobierano współczynnik wygładzania.

41¹⁰ – Chociaż w języku R jest procedura `smooth.spline`, to pełna nazwa angielska to „smoothing splines”.

41₁₄₋₁₃ – Jak już wspomniałem wcześniej, stwierdzenie o wyprzedzaniu minimalnych i maksymalnych wartości w pomiarach w stacji na Kasprowym Wierchu w stosunku do stacji na Ochsenkopf jest nieco przedwczesne, gdyż oparte na tylko jednorazowej obserwacji.

47¹⁻² i 47⁴⁻⁵ – Z tych zapisów można wywnioskować, że pomiary zebrane przez IMGW można uzyskać za darmo od instytucji amerykańskiej, gdy tymczasem pewnie trzeba za nie zapłacić, i to całkiem sporo, gdy chce się uzyskać wprost od IMGW. Czy to nie jest paradoks?

61⁶ – Wyrażenie „linear integration method” nie jest prawidłowe, bo oznacza „metodę całkowania liniowego”. A ponieważ operator całkowania jest liniowy, więc co wnosi słowo „linear”? Przypuszczam, że chodzi o całkowanie numeryczne metodą trapezów, po angielsku „trapezoidal rule” lub „trapezoidal integration rule”. Ewentualnie można by było użyć bardziej opisowego sposobu, pisząc o całkowaniu funkcji uzyskanej przez „linear-wise interpolation”, bo chyba to chciał wyrazić Doktorant w użytym w rozprawie skrótowym wyrażeniu.

63₈ – Nawożenie w lokalizacji E przed kampanią jesienną polegało tylko na dodaniu wapna, bez azotu. W jaki sposób mogło się to przyczynić do zwiększonej emisji N₂O?

65 – Podpis pod rys. 4.41 wygląda na skopiowany z podpisu pod rys. 4.6 i tylko częściowo poprawiony, z pozostałościami, które tu nie pasują.

67¹¹⁻¹² – Nie tylko substancje gazowe w powietrzu są szkodliwe, ale także zawiesiny, jak na przykład pyły.

71, wzór (5.6) – Wyrażenie po prawej stronie jest skalar, a po lewej wektorem. Do tego wyrażenie po prawej stronie jest deterministyczne, a po lewej losowe. Ten wzór ewidentnie nie jest prawidłowy.

76₆ – Trudno mi sobie wyobrazić, jak wyznaczać emisje na wysokości 700 m nad powierzchnią gruntu bez użycia lokalnych modeli dyspersji. Chyba że zakładamy, że składowe poziome ruchu powietrza są pomijalne w stosunku do składowych pionowych. Ale czy to nie jest zbyt zgrubne założenie?

81₃ – Tu wyjątkowo zwracam uwagę na literówkę, bo pojawia się ona wielokrotnie. Powinno być „deseasonalized” zamiast „deaseasonalized”.

82, rys. 5.12 – Zgodnie z opisami umieszczonymi przy wykresach, na rysunku są podane wyniki dla KAS w lecie 2014 i dla KRK w zimie 2013/2014, ale w podpisie jest tylko wymienione KRK. Która informacja jest prawidłowa?

82₁₂ – Z kontekstu wynika, że chodzi o „cubic spline interpolation”. Czy stosowano tu zwykłe splajny, czy splajny wygładzające?

99⁴ – Wartości pików mogą być estymowane, szacowane lub aproksymowane, ale raczej nie użyłbym słowa interpolowane. Brakuje mi tu bardziej szczegółowego omówienia, jak to dokładnie zrobiono, o czym wspomniałem już wcześniej.

100₁₃ – Losowa niepewność pojedynczego pomiaru jest pojęciem, które można scharakteryzować przez jego rozkład prawdopodobieństwa. Chyba więc albo chodzi tu o wartość na przykład wielokrotności odchylenia standardowego tego rozkładu (σ , 2σ , 3σ), albo o ocenę błędu konkretnego pomiaru, czyli odchylenia realizacji wartości zmiennej losowej dla konkretnego pomiaru od wartości prawdziwej. Co oznacza dokładnie sformułowanie użyte w rozprawie?

102₁₅₋₇ – Pytanie o inny sposób wyznaczania powtarzalności w metodzie dwupunktowej postawiłem wcześniej, w p. 2 recenzji. Tu je jedynie przypominam.

105¹² – Tego wyводу o konieczności wystąpienia nieliniowości wzrostu stężenia N₂O we wnętrzu komory nie do końca rozumiem. Czy chodzi o nieliniowość w czasie, czy względem wymiarów przestrzennych?

108¹⁶ – Chyba w tym wzorze powinno być max zamiast min?

Doktorant używa wielu skrótów i przydałby się ich wykaz, co ułatwiłoby czytanie rozprawy.

4. Ocena końcowa

Doktorant rozwiązał wiele zagadnień w zakresie badania emisji i dyspersji podtlenku azotu w skali Małopolski, ale także z istotnymi rozszerzeniami na Europę Centralną. Za najważniejsze osiągnięcia Doktoranta uważam:

- uruchomienie quasi-ciągłych pomiarów stężenia podtlenku azotu w stacjach na Kasprowym Wierchu i w Krakowie z rygorystycznymi procedurami jakościowymi, przy których zaproponował nowe rozwiązania w zakresie dokładniejszego przetwarzania sygnałów – to osiągnięcie jest niesłychanie ważne w perspektywie możliwości wieloletniego wykorzystywania powstającej bazy pomiarów przez społeczność naukową, a także służby ochrony środowiska;
- przeprowadzenie serii pomiarów komorowych emisji z gleb rolniczych i miejskich, istotnie wzbogacających wcześniejsze zbiory pomiarów w Polsce, w tym o pomiary z terenów miejskich, oraz wiedzę o takich emisjach – i tu też Doktorant zaproponował metodę poprawy dokładności pomiarów;
- przeprowadzenie badań modelowych dyspersji tlenu azotu w powietrzu w skali Małopolski oraz Europy Centralnej, z porównaniem wyników modelowania z pomiarami w stacjach w Krakowie (szczególnie udane) oraz na Kasprowym Wierchu – modelowanie takie było przeprowadzone w Polsce po raz pierwszy.

Doktorant uzyskał wiele wyników ilościowych potwierdzających i rozszerzających wiedzę o rozpatrywanych zjawiskach. Swoje rozważania oparł na bardzo dobrym przeglądzie wiedzy w omawianych tematach, w dużej mierze także dzięki intensywnej współpracy międzynarodowej prowadzonej w ramach wspólnych projektów.

Stwierdzam, że przedstawiona rozprawa spełnia wymagania stosownych przepisów o rozprawach doktorskich (Ustawa o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki z dn. 14 marca 2003 – Dz.U. 2003, Nr 65, poz.595 – z późniejszymi zmianami), jak również wymagania zwyczajowe stawiane takim rozprawom. Wnioskuje o dopuszczenie doktoranta do publicznej obrony rozprawy.

