



Dr hab. Inż. Radosław Juszczak
Katedra Meteorologii
Wydział Melioracji i Inżynierii Środowiska
Uniwersytet Przyrodniczy w Poznaniu

Poznań, 2 października 2015 r

Recenzja

Pracy doktorskiej pt.: „*Temporal and spatial variability of nitrous oxide in the atmosphere over Małopolska Region: determination of loads and emissions*” wykonanej przez mgra Michała Gałkowskiego z Zespołu Fizyki Środowiska, Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo-Hutniczej im. Stanisława Staszica w Krakowie pod kierunkiem promotora prof. dr hab. Kazimierza Różańskiego i promotora pomocniczego dr inż. Jarosława Nęckiego.

Recenzję wykonano na prośbę prof. dr hab. Bartłomieja Szafrana Prodziekana Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo-Hutniczej w Krakowie z dnia 7 sierpnia 2015 roku.

Przedstawiona do recenzji praca doktorska mgra Michała Gałkowskiego dotyczy bardzo ambitnego i trudnego problemu badawczego jakim jest ocena czasowej i przestrzennej zmienności stężeń podtlenku azotu w troposferze w kontekście regionalnego wpływu punktowych i przestrzennych emisji N_2O z rozproszonych źródeł naturalnych i antropogenicznych. Tematyka ta jest szczególnie ważna i aktualna, gdyż N_2O nie dość że jest silnym gazem szklarniowym z wymuszeniem radiacyjnym $0,197 \text{ Wm}^{-2}$ i wskaźnikiem globalnego ocieplenia (GWP) wynoszącym 298 (w 100-letnim horyzoncie czasowym), to jeszcze jest jedną z ważniejszych substancji biorącą udział w zubożeniu warstwy ozonowej w stratosferze. Poznanie procesów związanych z transportem tego gazu w atmosferze, sezonową zmiennością stężeń oraz dokładna ocena ładunków tego gazu wprowadzanych do atmosfery jest szczególnie ważna z globalnego punktu widzenia. Wiedza ta pozwolić może na zmniejszenie zakresu niepewności/błędu z jakim podawane są regionalne i globalne szacunki emisji N_2O do atmosfery (całkowita globalna emisja ze źródeł naturalnych i antropogenicznych wynosi $17,9 \text{ Tg N-N}_2\text{O}$ z zakresem niepewności $8,1-30,7 \text{ Tg N-N}_2\text{O}$ (IPCC 2013)).

O ile metody pomiaru stężeń tego gazu w atmosferze są obecnie dobrze znane i ciągle się rozwijają, o tyle metody oceny jakości danych pomiarowych wymagają ciągłego doskonalenia i standaryzacji celem zapewniania porównywalności serii pomiarowych uzyskiwanych w ramach regionalnych i globalnych sieci stacji pomiarowych, na których pomiary takie prowadzone są dopiero od drugiej połowy XX wieku. Dlatego też głównym celem pracy było określenie źródeł emisji i transportu troposferycznego podtlenku azotu dla regionu Małopolski w południowej Polsce. Poprzez powiązanie unikalnych i bardzo cennych wyników bezpośrednich pomiarów stężeń podtlenku azotu w troposferze, prowadzonych przez Zespół Fizyki Środowiska AGH kierowany przez Prof. Kazimierza Różańskiego na stacjach Kasprowy Wierch (KAS) i w Krakowie (KRK), z wynikami pomiarów emisji N_2O z gleb wykorzystywanych rolniczo oraz wykorzystując model transportu zanieczyszczeń STILT, doktorant podjął próbę określenia przestrzennej i czasowej zmienności emisji N_2O do atmosfery i szlaków transportu tego gazu w dolnej troposferze w regionie Małopolski. Zadania te wymagały od doktoranta zdobycia bardzo szerokiej wiedzy, umiejętności i kompetencji, które zdobywał i rozszerzał podczas swych staży naukowych i w ramach międzynarodowych projektów realizowanych w Europie. Szczęólnego podkreślenia wymaga tu fakt, że wysokojakościowe wyniki pomiarów stężeń atmosferycznych N_2O wykorzystane w pracy doktorskiej uzyskano przy finansowym wsparciu

7 Programu Ramowego Unii Europejskiej INGOS: „*Integrated non-CO₂ Greenhouse Gas Observing System*”, w którym doktorant był wykonawcą w ramach grupy roboczej NA2/NA3, zaś wyniki pomiarów emisji N₂O z gleb rolniczych uzyskano w ramach projektu NCN „*Czasowa i przestrzenna zmienność podtlenu azotu w atmosferze południowej Polski: określenie regionalnych ładunków i strumieni N₂O*”, którego kierownikiem był sam doktorant. Dzięki swym osiągnięciom mgr Michał Gałkowski uzyskał wsparcie w ramach programu Unii Europejskiej *Human Capital Operation Program* oraz *Doctus Program* – programie stypendialnym dla doktorantów województwa Małopolskiego.

Przedstawiona do oceny praca liczy 115 stron maszynopisu. Praca podzielona jest na sześć rozdziałów; 1) *Introduction*; 2) *The global nitrogen cycle*; 3) *Measurements of atmospheric N₂O mixing ratios*; 4) *Emissions of N₂O from agriculture and urban soils*; 5) *Numerical modeling of regional transport of N₂O*; 6) *Conclusions and outlook*. Dodatkowo praca zawiera dwa aneksy przedstawiające szczegółowe procedury kalibracji i obliczania niepewności w atmosferycznych pomiarach N₂O (aneks A) oraz metody obliczania strumieni N₂O emitowanych z gleb i pomierzonych z wykorzystaniem komór statycznych (aneks B). Szczęólnego podkreślenia wymaga fakt, że praca została napisana w bardzo poprawnym i specjalistycznym języku angielskim, co z całą pewnością zwiększyło skalę trudności w przygotowaniu rozprawy i wymagało od doktoranta dodatkowego wysiłku. Zważywszy na zaangażowanie doktoranta w projekty międzynarodowe, taką formę przygotowania rozprawy oceniam bardzo wysoko, gdyż zwiększa to szansę na jej późniejsze wypromowanie na arenie międzynarodowej, co z całą pewnością jest wartościowym osiągnięciem pomocnym również w rozwoju kariery młodego naukowca.

Struktura pracy odbiega od najczęściej stosowanego układu, w którym po wstępie, celach i hipotezach badawczych znajduje się przegląd literatury, następnie metodyka z opisem terenu badań, wyniki, dyskusja wyników i wnioski. Struktura ocenianej pracy przypomina raczej logicznie wyprowadzony układ szczegółowo opisanych problemów badawczych wraz z krótkim wstępem, metodyką, wynikami i elementami dyskusji, którym poświęcono kolejne rozdziały (tj. rozdziały 3, 4 i 5), spośród których każdy rozdział mógłby być po drobnych korektach edytorskich osobną publikacją naukową. W obecnej formie przygotowania pracy, uważam, że choć odbiega ona od przyjętych i najczęściej stosowanych standardów, to jednak ma ona wyjątkowo dużą wartość, gdyż w całości stanowi próbę kompleksowego rozwiązania problemu naukowego i jest monografią naukową, która w całości mogłaby być opublikowana w wydawnictwie naukowym.

W rozdziale pierwszym „*Introduction*” przedstawiono uzasadnienie podjęcia tematu badawczego z podkreśleniem globalnego znaczenia problematyki. Szczęólnie opisano też cel pracy oraz zadania badawcze niezbędne do zrealizowania. Choć opis zadań jest szczegółowy i koresponduje z celem oraz tytułem dysertacji, a co więcej narzuca dalszą strukturę pracy, to niezbyt jasno określono hipotezy badawcze, co oceniam negatywnie.

W kolejnym rozdziale pt: „*The global nitrogen cycle*” szczegółowo scharakteryzowano globalny cykl obiegu azotu w środowisku, fizyko-chemiczne właściwości azotu i podtlenu azotu, główne procesy determinujące przemiany związków azotu w ekosystemach lądowych (jak: nityfikacja, denityfikacja, amonifikacja), procesy zachodzące w stratosferze z udziałem N₂O oraz naturalne i antropogeniczne źródła emisji i pochłaniania tego gazu. Charakterystyka bilansu N₂O przedstawiona została na podstawie danych pozyskanych z raportów IPCC i ma wymiar globalny. Szczęólnie scharakteryzowano rolę sektora rolniczego w emisji N₂O do atmosfery oraz kilku innych najważniejszych antropogenicznych źródeł emisji związanych głównie ze źródłami przemysłowymi, transportem i zagospodarowywaniem odpadów. Trochę szkoda, że charakteryzując źródła emisji doktorant oparł się wyłącznie na ogólnej charakterystyce globalnej i, choć przytaczał możliwość

skorzystania z europejskich (np. EDGAR) i polskich baz danych (związanych z KOBIZE) o wielkości emisji, to jednak nie przytoczył tu podobnych danych dla Europy, Polski, Słowacji i regionu Małopolski. Pewne elementy takiej oceny zawarto w rozdziale 1.1 *Rationale*, gdzie z rysunku 1.2 i w korespondującym tekście czytelnik ma możliwość dowiedzieć się jak zmieniała się emisja N_2O w Polsce w poszczególnych sektorach gospodarczych w okresie 1989-2014. Także w rozdziale 3.3, w którym opisano stacje pomiarowe ciągłego monitoringu stężeń N_2O wykorzystane w pracy, dokonano krótkiej i bardzo ogólnej charakterystyki źródeł emisji N_2O znajdujących się w otoczeniu tych stacji w różnej odległości od nich, z których to emisje mogą mieć wpływ na mierzone na stacjach stężenia gazów. Ta krótka charakterystyka źródeł emisji jest jednak zbyt ogólna i niewystarczająca. W moim odczuciu bardziej szczegółowa charakterystyka źródeł emisji zgodna z raportami dostępnymi w KOBIZE stanowiłaby cenne uzupełnienie pracy i powinna być tłem do dalszych dyskusji w pracy. Charakterystyka punktowych i obszarowych źródeł antropogenicznych szczególnie uciążliwych dla środowiska oraz źródeł związanych ze środkami transportu i rolnictwem, chociażby w formie tabelarycznej, byłaby moim zdaniem bardzo przydatna i potrzebna w pracy. Ładunki N_2O emitowanego do atmosfery w regionie Małopolski mogłyby być określone na podstawie informacji o rodzaju prowadzonej działalności i zużytego paliwa, ilości stosowanych nawozów azotowych oraz znanych z literatury i przyjętych w praktyce inwentaryzacyjnej wskaźników emisji. W tym miejscu, chciałbym zwrócić uwagę, że dane takie mogłyby znaleźć się np. w podrozdziale charakteryzującym po krótku region Małopolski, dla którego przecież wykonywane były analizy oraz modelowanie transportu zanieczyszczeń. Odczuwa się wyraźny niedosyt braku takiego rozdziału oraz charakterystyki regionu i źródeł emisji.

W rozdziale 3 doktorant, po krótkim wstępie uzasadniającym potrzebę wykonywania pomiarów atmosferycznych stężeń N_2O z odpowiednio dużą częstotliwością i rozdzielczością przestrzenną zapewniającą zaspokojenie potrzeb regionalnych i lokalnych modeli transportu zanieczyszczeń, dokonuje bardzo dobrego i krytycznego przeglądu metod pomiarowych opartych na chromatografii gazowej oraz spektroskopowych technikach optycznych. W dalszej części charakteryzuje stacje pomiarowe na Kasprowym Wierchu (KAS), w Krakowie (KRK) oraz wykorzystane w analizach porównawczych stacje w Białymstoku (BIK), Ochsenkopf (OXK) w Niemczech, Mace Head (MHD) w Irlandii oraz Jungfrauoch (JFJ) w Szwajcarii. Wszystkie te stacje zrzeszone są obecnie w ramach sieci pomiarowej projektu INGOS. Niestety opis stacji nie jest kompletny ani ujednolicony. Zabrakło min. informacji o roku założenia stacji (za wyjątkiem KAS), o długości serii pomiarowych stężeń gazów atmosferycznych oraz, co wydaje się szczególnie ważne, roku od którego w ramach każdej ze stacji wdrożono te same procedury kalibracji oraz oceny jakości danych, co wydaje się kluczowe dla późniejszych analiz porównawczych (na str. 35 ostatnie zdanie rodz.3.3.4 jest tylko napisane, że stacje MHD i JFJ są podobnie jak KAS częścią projektu INGOS i te same procedury dotyczące oceny jakości danych zostały wdrożone na tych stacjach, ale od kiedy? Co ze stacjami OXK i BIK?).

Dokonując opisu stacji Autor jasno określa zakres swojej aktywności w projekcie INGOS oraz zaangażowania w funkcjonowanie stacji KAS i KRK, co znalazło odzwierciedlenie w ocenianej pracy. Z rozdz. 3.3.1 dowiadujemy się między innymi, że w ramach pracy doktorskiej zmodyfikowano system pomiarowy oraz metodologię pomiarów i oceny jakości i pewności danych (QC/QA) na stacji KAS, dzięki czemu możliwe było uzyskanie ciągłych serii pomiarowych stężeń N_2O o wysokiej jakości danych, co wcześniej nie było możliwe. Opisując automatyczny system pomiarowy na stacjach KAS i w KRK (w aneksie A), doktorant bardzo szczegółowo dokonuje opisu procedury pomiarowej, metodologii kalibracji GC oraz późniejszej oceny jakości i pewności danych (QC/QA). Z tej części pracy dowiadujemy się min. że mgr Michał Gałkowski¹⁾ uczestniczył w stworzeniu oprogramowania PANDA pozwalającym



na zdalny monitoring stacji i kolejnych etapów pomiarowych; 2) aktywnie uczestniczył w rozwoju i testowaniu procedur QC/QA w ramach projektu INGOS; 3) był odpowiedzialny za bezpośrednie wdrożenie tych procedur na stacjach KAS i KRK. Co więcej, dla stacji takich jak KAS i KRK w wypadku których wykorzystuje się dwa różne wtórne gazowe standardy laboratoryjne (ang. *Secondary Lab Standards*, SLS) wykorzystywane w procedurze kalibracyjnej GC, zaproponował modyfikację metody rozwijanej w ramach projektu INGOS, celem wyznaczenia tzw. *repeatability* (powtarzalności) pomiarów z wykorzystaniem dwóch SLS. W tej części pracy doktorant przeprowadził bardzo ważną moim zdaniem analizę statystyczną, dowodząc jak różne wartości stężeń wtórnych laboratoryjnych standardów gazowych (SLS) wykorzystywanych przez laboratoria wpływają na wartości oznaczonych stężeń gazów. Wykazał, że wykorzystanie dwóch SLS, co nie jest standardem pomiarowym ze względu na większy stopień komplikacji cyklu pomiarowego i późniejszej analizy danych, jest znacznie korzystniejsze ponieważ istotnie zmniejsza niepewność oznaczonej próby. Ważne są też stężenia gazów wykorzystywane w procesie kalibracji, co wykazał doskonale dokonując krytycznej analizy danych pomiarowych dla stacji KAS i KRK w rozdziale 3.5.1. Opisy procedur pomiarowych i kalibracyjnych są bardzo jasno opisane i świadczą o dużym poziomie eksperckim doktoranta, który doskonale orientuje się w stosowanych przez siebie technikach pomiarowych. Niezbyt jasne jest jednak dla mnie jak zmiany wprowadzone w procedurach pomiarowych jeszcze w 2013 roku, mogły doprowadzić do istotnej poprawy jakości danych dopiero w drugiej połowie 2014 roku (rys. 3.8, str. 38), kilka miesięcy po zmianie stężeń tzw. *Target gases*.

Niektóre z procedur kalibracji opisanych w aneksie A zostały wdrożone na stacji KAS jeszcze w 2009 roku (str. 103), a więc na dwa lata przed rozpoczęciem projektu INGOS. Dlaczego zatem napisano, że procedury te zostały wdrożone w ramach tego projektu (przynajmniej tak można zrozumieć z opisu w Aneksie A)? Wracając do rozdziału 3.5. nasuwa się w związku z tym kolejne pytanie. Dlaczego mając do dyspozycji dane pomiarowe ze stacji KAS od 1996 i procedury kalibracji wdrożone w 2009 roku oraz dane ze stacji MHD niezbędne do tzw. detrendingu i desezonalizacji danych (opisane w rozdziale 3.5.2.) prezentowane serie danych pomiarowych z tych stacji są tak krótkie? Rozumiem, że metodologię dwupunktowej kalibracji opartej na 2 standardach SLS wdrożono w kwietniu 2013 roku w ramach pracy doktorskiej, ale celem pracy było dostarczenie przynajmniej dwuletniej ciągłej serii danych pomiarowych ze stacji KAS i KRK, tymczasem prezentowane w pracy dane dotyczą okresu 17-miesięcznego od 01.04.2013 do 30.09.2014. Dlaczego nie wydłużono tej serii pomiarowej do roku 2015, lub nie zaryzykowano i nie cofnięto się wstecz do roku 2011 od kiedy to dostępne były dane ze stacji MHD i KAS? Wykorzystanie wcześniejszych danych byłoby o tyle korzystne, że dane pomierzone na stacjach KAS i KRK porównuje się z danymi z innych stacji europejskich, na których nie wiemy kiedy i jakie procedury kalibracji były wdrożone i czy, podobnie jak w niniejszej pracy, opierają się one na dwóch, czy jednym SLS (co jak wykazuje autor może mieć istotny wpływ na jakość danych). Z kolei, informacje o stężeniach N_2O za okres zimy 2014-2015 z całą pewnością zwiększyłyby wagę przeprowadzanych analiz i postawionych wniosków.

Z analiz długookresowych trendów zmian stężeń N_2O w atmosferze nad Europą (rozd. 3.6) dowiadujemy się jak trudne jest jednoznaczne zinterpretowanie uzyskiwanych wyników i jak słaba jest nasza wiedza na temat procesów determinujących sezonowość zmian stężeń N_2O . Niezbyt jasne jest jednak dla mnie dlaczego dla stacji górskich wybrano dane z godzin nocnych (od 23:00 do 3:00), podczas gdy dla stacji nadmorskiej wybrano dane z godzin okołopołudniowych (od 11:00 do 16:00), skoro z przedstawionego uzasadnienia wynika, że problemem mogą być dane pomierzone podczas nocy kiedy to występowała inwersja temperatury, a atmosfera miała charakter stabilny. Dla prostoty rozważań i porównywalności wyników przefiltrowałbym dane ze wszystkich stacji biorąc do analiz

wyłącznie dane dzienne. Co więcej, pewne wątpliwości budzi interpretacja uzyskanych wyników, z których może wynikać, że im dalej od Oceanu Atlantyckiego tym wyższe stężenia N_2O w atmosferze, który jest akumulowany w wyższych częściach troposfery w wyniku procesów związanych z konwekcją i turbulencją. Nasuwają się zatem pytania czy na stacjach położonych dalej na wschód ok KAS stężenia N_2O byłyby jeszcze wyższe? Czy nie należałoby tu przeprowadzić analizę zasięgu oddziaływania (tzw. *footprintu*) dla takich stacji celem porównywania ze sobą wartości stężeń N_2O z dni lub godzin kiedy wiatr wiał z tego samego kierunku, lub kiedy wielkoskalowe procesy przenoszenia mas powietrza powodowały ich przemieszczenie się w tym samym kierunku? Być może wyższe stężenia N_2O na stacji KAS i OXK wynikają tylko z faktu, że stacje te położone są bliżej źródeł emisji tego gazu (o czym zresztą Autor pisze w dalszym paragrafie)? Występowanie letnich minimów stężeń N_2O w powietrzu atmosferycznym doktorant tłumaczy możliwością występowania pionowego transportu mas powietrza o obniżonym stężeniu N_2O ze stratosfery do troposfery, na co wskazują min. Nevison i in (2011). Dlaczego jednak taki przepływ mas powietrza miałby występować tylko latem? Być może te sezonowe wahania związane są jednak z sezonową zmianą miąższości planetarnej warstwy granicznej, której grubość zwiększa się w cieplej porze roku (np. McGrath-Spangler i Denning, 2013, JGR, No. 118)? W tych warunkach jak sądzę, N_2O – gaz o długim czasie przebywania w atmosferze, a zatem powoli dyfundujący do stratosfery, może rozcieńczać się w większej objętości powietrza zwiększającej się wraz ze wzrostem miąższości warstwy turbulencyjnej. Zimą, kiedy miąższość planetarnej warstwy granicznej maleje te same ilości gazów rozcieńczają się w mniejszej objętości powietrza. Być może ten sam proces tłumaczy też większą dobową zmienność stężeń N_2O w atmosferze na stacji KRK (rozd. 3.7, rys. 3.12), gdzie wyraźnie widzimy, że w godzinach okołopołudniowych stężenia N_2O są znacznie niższe niż w godzinach nocnych, kiedy to dodatkowo proces ten jest wspomagany występowaniem warunków stabilnych w atmosferze, inwersją temperatury i bardzo znacznym zmniejszeniem miąższości planetarnej warstwy granicznej.

Dokonując oceny czasowej i przestrzennej zmienności stężeń N_2O w atmosferze nad Polską południową (rozd. 3.7) na podstawie danych miesięcznych z podziałem na wartości dzienne i nocne spróbowano wykazać, że obserwowane w Krakowie maksima stężeń występujących w okresach maj–czerwiec oraz październik–listopad związane są ze zwiększoną aktywnością życia biologicznego w glebie i wynikają ze stosowanego w tych okresach nawożenia azotowego. Dlaczego jednak taka sezonowa zmienność stężeń wyraźna w roku 2013 nie jest typowa dla wszystkich analizowanych lat i już w roku 2014 nie jest ona tak oczywista? Czym różniły się oba te lata, że charakteryzują się tak znaczną różnicą sezonowych zmian (np. minimum letnie o którym pisze Autor w roku 2013 wystąpiło w miesiącach sierpień–wrzesień, podczas gdy w 2014 roku w maju i czerwcu, co zaprzeczać mogłoby hipotezie o wpływie rolnictwa na sezonową zmienność stężeń N_2O)? Czy przedstawiona analiza średniej dobowej zmienności stężeń N_2O w poszczególnych sezonach roku opiera się na danych które przeszły procedurę detrendingu i desezonalizacji – czy procedury te, bazujące na wykorzystaniu stacji nadmorskiej MHD uwzględniają około 1-2 miesięczne przesunięcie minimów i maksimów na każdej z tych stacji? Jeśli nie, to być może analizy oparte na tych danych są obarczone znaczną niepewnością i wpływać mogą negatywnie na wnioskowanie? Na rysunkach 3.12-3.14 oraz 3.16-3.24 nie przedstawiono zakresu czasowego dla którego dokonano analiz. Czy dane te dotyczą całego okresu od 04.2013 do 10.2014, i w związku z tym dane np. z sierpnia z obu lat połączono w jeden zbiór? Jeśli tak, to trzeba pamiętać, że o ile w sierpniu 2013 zaobserwowano minimum stężeń o tyle w 2014r. już nie. Zastanawiam się, czy obserwowany brak wyraźnej dobowej zmienności stężeń N_2O w Krakowie w okresie zimy nie wynika z tego, że w okresach zimowych emisja antropogeniczna N_2O do atmosfery jest jednak znacznie mniej zależna od pory dnia. Oczywiście emisja ze środków transportu będzie



większa w ciągu dnia, ale emisja z niskich i średnich źródeł emisji związanych z procesami spalania w sektorze komunalnym jest na tyle duża w okresie doby, że stężenie tego gazu w powietrzu jest względnie stałe i nie powinno zależeć od pory dnia. Oczywiście zgadzam się, że intensywność procesów biologicznych jest w tej porze roku znacznie mniejsza, ale wydaje się że nie jest to jedyny proces rzutujący na wyniki pomiarów na tej stacji. Co więcej, z analiz przedstawionych na rysunku 3.12 i dalej 3.16, doktorant próbuje wykazać, że większa dobowa zmienność stężeń N_2O w Krakowie jest konsekwencją zwiększonej aktywności biologicznej związanej z sektorem rolnictwa w tych porach roku. Tymczasem z analiz porównawczych ze stacją w Białymstoku (BIK) wynika, że na stacji mającej reprezentować tło rolnicze w zasadzie nie ma tak dużej dobowej zmienności stężeń, bądź nie ma jej wcale w poszczególnych okresach roku. Moim zdaniem dane z BIK zaprzeczają hipotezie, że na zmienność stężeń N_2O w Krakowie wpływają źródła przestrzenne związane z rolnictwem. Być może obserwowane różnice na stacjach KRK i BIK wynikają z błędnie wyselekcjonowanych danych: 1) analizy dotyczą innych okresów (KRK-2013-2014; a BIK 2007-2008); 2) porównano dane zebrane z podobnych wysokości (BIK-30 m; KRK -20 m) prawdopodobnie zaniedbując różnice w szorstkości powierzchni terenu na obu stacjach i przesunięciu poziomu z_0 oraz odmiennych warunkach turbulencji; 3) dane nie zostały przefiltrowane ze względu na kierunek wiatru – być może przy tej wysokości 30 m n.p.t. w zasięgu oddziaływania wieży nie znajdował się teren rolniczy, a las (widoczny na rys. 3.4?). Gdyby powyżej przytoczona hipoteza miała być potwierdzona przez dane ze stacji BIK, spodziewałbym się wówczas podobnej sezonowej i dobowej zmienności stężeń N_2O .

Bardzo ciekawą i wartościową analizę przeprowadzono w podrozdziałach 3.9 i 3.10, gdzie za pomocą narzędzia *openair* dostępnego w programie R dokonano oceny zależności pomiędzy kierunkiem i prędkością wiatru a stężeniem N_2O (po procesie zdetrendowania i zdesezonalizowania) mierzonych na stacjach KAS i KRK. Z przeprowadzonych analiz może wynikać z jakiego kierunku stron świata napływa powietrze, którego skład ma wpływ na mierzone na stacjach stężenia N_2O . Analiza ta wskazuje tym samym pośrednio regiony/miejsca mogące być głównymi źródłami emisji N_2O do atmosfery w otoczeniu analizowanych stacji. Na podstawie analizy dokonanej z podziałem na 3-miesięczne okresy roku doktorant wykazuje, że wyższe stężenia N_2O mierzono w cieplej porze roku (miesiące wiosenne i letnie), co mogłoby wskazywać że głównym źródłem emisji N_2O , które wpływa na tło kontynentalne tego gazu obserwowane na stacji KAS, są procesy biologiczne, a nie procesy spalania i transport.

W kolejnym czwartym rozdziale doktorant omawia wyniki bezpośrednich pomiarów emisji N_2O z upraw rolniczych w Małopolsce uzyskane w ramach projektu NCN, którego był kierownikiem. Przeprowadzone analizy miały na celu ocenę rocznych bilansów emisji N_2O z gleb uprawnych w regionie oraz określenie głównych czynników kontrolujących procesy emisji N_2O . Doktorant wychodząc od bardzo dobrze napisanego przeglądu metod pomiarowych strumieni N_2O bardzo poprawnie uzasadnia konieczność wykorzystania metody komorowej w pomiarach wykonywanych w ramach ocenianej pracy. W załączniku B bardzo obiektywnie dokonuje oceny stosowanych metod wykorzystywanych do liczenia strumieni oraz uzasadnia dlaczego wybrał metody liniowe. Co ważniejsze jednak wyprowadza autorską metodę oceny niepewności oszacowania strumieni N_2O na podstawie niepewności oszacowania wartości nachylenia prostej przechodzącej przez punkty odnoszące się do zmieniających się w czasie pomiaru stężeń gazu, gęstości powietrza, objętości i powierzchni komory dla poszczególnych pomiarów. Z dokonanego opisu wnioskuje, że doktorant bardzo dobrze potrafi wykorzystywać tę technikę pomiarową i właściwie interpretuje wyniki pomiarów. Wykorzystano komorę zamkniętą statyczną, uszczelnianą na metalowym kołnierzu z rynienką wypełnioną wodą. Komora wykonana ze stali nierdzewnej jest wyposażona w układ

wyrównywania ciśnienia i port do poboru próbek powietrza. Kwestią dla mnie nie wyjaśnioną jest jednak 1) dlaczego górna część komory wykonana jest z materiału przezroczystego (i jakiego), 2) dlaczego w komorze nie było wentylatora mieszającego powietrze wewnątrz (z szeregu publikacji np: Christiansen i in. 2011 dowiadujemy się, że brak wentylatora może prowadzić do zaniżania strumieni gazów); 3) jaki jest kształt komory; 4) dlaczego w komorze nie mierzono temperatury powietrza, a pomiar taki był możliwy dopiero po pobraniu ostatniej próbki powietrza; 5) czy fakt że komora wykonana była z metalu i materiału przezroczystego nie skutkowało nadmiernym wzrostem temperatury wewnątrz komory, który mógłby mieć wpływ na wielkość mierzonych strumieni? 6) w jaki sposób dokonywano pomiaru tak niską komorą (ok. 20 cm wysokości) na glebie porośniętej roślinami (min. rzepakiem, pszenicą, łąką)? 7) czy ilość pobranego powietrza nie była zbyt duża biorąc pod uwagę objętości komory (w czasie od 15 do 60 minut pobierano z komory 5-6 próbek powietrza o objętości 60 ml każda=300-360 ml, co oznacza, że przy objętości komory około 25 litrów pobierano ponad 1,2% objętości komory. Taka zmiana objętości prowadziłaby do zmian ciśnienia wewnątrz komory na poziomie przekraczającym 100 Pa. Ponieważ komora ma układ wyrównywania ciśnienia dlatego zakładam, że do wnętrza komory mogło napływać powietrze z zewnątrz o obniżonym stężeniu N_2O , co mogło skutkować zaniżaniem strumieni N_2O . Co wymaga podkreślenia, próbki powietrza pobierane były do strzykawk PVC, ale właściwie i bardzo poprawnie opracowana przez doktoranta metodologia analizowania zebranego materiału (w czasie max. 36 godzin po pomiarze) oraz ocena tempa spadku stężenia w strzykawce i wprowadzone procedury korekcji danych (ze względu na możliwe wycieki gazu ze strzykawk w miarę upływu czasu), świadczą o bardzo dobrym warsztacie naukowym doktoranta.

Pomiary emisji N_2O z gleb uprawnych wykonywano na terenie Zakładu Doświadczalnego Hodowli i Aklimatyzacji Roślin w Gradkowicach w okresie wiosennym od 1 marca do 23 maja oraz jesiennym od 3 do 25 października. Pomiary wykonywano na kilku różnych gatunkach roślin i polach uprawianych konwencjonalnie i w uproszczonym systemie uprawowym. Szkoda, że doktorant dokonując opisu stanowiska pomiarowego nie wspominał jednak o tym z jaką glebą mamy do czynienia, jaka jest w niej zawartość azotu, stosunek C:N, oraz wilgotność. Informacje te byłyby bardzo pomocne we właściwej interpretacji wyników emisji N_2O . Moją wątpliwość wzbudza również fakt, że pomiary wykonywano na kilku różnych poletkach (opisanych w tabeli 4.1), ale tylko w jednym miejscu (na jednej ramie glebowej). Jest to dla mnie tym bardziej zaskakujące, że doktorant dokonał oceny przestrzennego zróżnicowania emisji mierząc jednorazowo strumienie N_2O na polu F w pięciu powtórzeniach. Z pomiarów tych wynikało z jak dużą zmiennością przestrzenną emisji należy się liczyć (na co też wskazuje wiele źródeł literaturowych). Tym samym nasuwa się pytanie, na ile pomiary z okresu jesiennego można odnieść do tych wykonywanych na tych samych poletkach w sezonie wiosennym, jeśli nie mamy pewności co do tego, że pomiary te wykonywane były dokładnie w tych samych miejscach? Pewne wątpliwości budzi również wykorzystanie w analizie danych i wnioskowaniu informacji o opadzie atmosferycznym ze stacji znajdującej się 30 km od zakładu doświadczalnego. Zważywszy na to, że opady mają często zasięg lokalny, wykorzystanie danych z tak odległej stacji może prowadzić do błędnego wnioskowania.

Pomimo tak wielu pytań szczegółowych i wątpliwości, które moim zdaniem łatwo było zawrzeć w pracy, nie mam wątpliwości co do tego, że wykonane pomiary i prezentowane w pracy dane mają bardzo dużą wartość naukową. Są to pierwsze tego typu pomiary w Polsce, kiedy to z tak dużą częstotliwością (raz na 3-4 dni) prowadzono pomiary emisji N_2O w okresie kiedy strumienie są najwyższe (po zimie, po nawożeniu, po opadach). Potwierdzono tym samym, że strumienie te zależą od zastosowanego nawożenia azotowego oraz że forma zastosowanego N i warunki meteorologiczne (występowanie opadu) mają znaczenie na wielkość emisji N_2O (formy azotu szybciej rozpuszczającego



się w roztworze glebowym skutkują szybszą emisją N_2O , podczas gdy w wypadku nawozów wolno rozpuszczających się, pik emisji jest opóźniony i najczęściej związany z opadem który przyspiesza rozpuszczanie się nawozu). Moim zdaniem na podstawie danych zebranych podczas tych dwóch kampanii pomiarowych niezmiernie trudno jest pokusić się o ocenę bilans rocznego, choć próbę taką można było podjąć, zakładając, że średnia dobowa wartość emisji z okresu jesiennego nie odbiega od średniej dobowej emisji dla pozostałej części roku (za wyjątkiem wiosny oraz po opadach i nawożeniu).

Przedostatni rozdział (5-ty) dysertacji poświęcony jest numerycznemu modelowaniu transportu N_2O w Małopolsce. Doktorant po dokonaniu kompleksowego przeglądu metod wykorzystywanych w modelowaniu transportu zanieczyszczeń powietrza opisuje strukturę, możliwości i ograniczenia modelu STILT (*Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport*) wykorzystanego w pracy. Szczególnego podkreślenia wymaga fakt, że prezentowane symulacje przeprowadzone zostały przez Autora we współpracy z Instytutem Biogeochemii Maxa Plancka z Jeny, podczas 5-tygodniowego stażu naukowego w tej instytucji. Przedstawione w pracy wyniki symulacji i analiz świadczą o dużym doświadczeniu doktoranta, który bardzo dobrze opanował umiejętność posługiwania się tym jakże zaawansowanym i wymagającym narzędziem symulacyjnym jakim jest model STILT, a jednocześnie potrafi krytycznie odnieść się do uzyskiwanych wyników modelowania. Znacznym ograniczeniem modelu STILT jest konieczność wykorzystania danych o emisji o bardzo dużej (1-godzinnej) rozdzielczości czasowej. W Polsce nie ma żadnej bazy danych o emisji, która zapewniałaby dostęp do danych o tak dużej rozdzielczości, dlatego skorzystano w pracy z ogólnodostępnych globalnych i regionalnych baz danych EDGAR v4.2 oraz IER. Problem w tym, że dane o wymaganej rozdzielczości czasowej dostępne w tych bazach, opracowano (wysymulowano) odpowiednio dla 2008 i 2000 roku i dane te wykorzystano w modelowaniu jako referencyjne, na które, jak rozumiem, nakładano informacje o stężeniach N_2O pomierzonych na stacjach KRK i KAS. Tym samym nasuwa się pytanie, na ile dane z lat 2000 i 2008 mogą tłumaczyć wartości i zmienności stężeń N_2O na stacjach KRK i KAS z lat 2012-2014 (nawet jeśli wyniki modelowania są zależne od danych meteorologicznych z okresu poddanego analizie)? Ocenę zasięgu oddziaływania (footprintu) dla stacji KRK i KAS przeprowadzono symulując emisję cząstek zanieczyszczeń powietrza z punktu, w którym zlokalizowana jest stacja. Choć jest oczywiste, że w modelu STILT jednymi z ważniejszych danych wejściowych są dane meteorologiczne, to jednak nie określono jakie dane i z jakich stacji wykorzystano w modelowaniu. Czy dane ze stacji KRK i KAS wystarczająco dobrze reprezentują zmienność warunków meteorologicznych mających wpływ na transport zanieczyszczeń powietrza w regionie, czy może jednak niezbędne byłoby wykorzystanie danych meteorologicznych przestrzennych z kilku stacji, bądź nawet interpolowanych o odpowiednio dużej rozdzielczości przestrzennej (jakie są wymogi modelu?). Niejasne jest dla mnie również, w jaki sposób na podstawie tak przeprowadzonej analizy footprintu (gdzie ocenia się kierunki i czas transportu wyemitowanych cząstek materii w masie otaczającego powietrza) wnioskować można o lokalizacji i wpływie źródeł emisji znajdujących się w otoczeniu stacji i w regionie na wartości mierzone na tych stacjach stężeń N_2O . Pomimo pytań nie mam wątpliwości, że przeprowadzone analizy były bardzo czasochłonne i mają charakter wysoce innowacyjny. Są to pierwsze tego typu, tak kompleksowo wykonane analizy, które z całą pewnością wymagały od Autora poszukiwania kompromisu wynikającego z braku dostępu do wysoko rozdzielczych danych.

W ostatnim rozdziale zatytułowanym *Conclusions and outlook* Autor zawarł bardzo dobrze napisane podsumowanie pracy. W nawiązaniu do celów pracy, Autor przedstawił w sposób opisowy zarówno najważniejsze osiągnięcia wynikające z przeprowadzonych analiz, jak i problemy których z różnych względów nie udało się rozwiązać. Taka krytyczna ocena wyników pracy świadczy o bardzo



dużej dojrzałości naukowej Autora. Z przedstawionego podsumowania pracy wypływają wnioski, szkoda tylko, że nie są one wypunktowane w bardziej przejrzysty sposób.

Do najważniejszych osiągnięć Autora opisanych w pracy zaliczyłbym:

- 1) opracowanie ciągłej serii danych pomiarowych stężeń atmosferycznych N_2O mierzonych na stacjach KAS i KRK dla lat 2013-2014;
- 2) modyfikacja metody pozwalającej na ocenę jakości mierzonych stężeń dla stacji na których stosowane są dwa różne gazowe wtórne standardy pomiarowe i zastosowanie tej metody w analizie danych z KAS i KRK;
- 3) zorganizowanie bardzo intensywnych kampanii pomiarowych emisji N_2O z gleb rolniczych w Małopolsce w okresie wiosennym i jesiennym z wykorzystaniem metody komorowej oraz wykazanie wpływu terminu i rodzaju nawożenia azotowego oraz występującego opadu na wartości mierzonych strumieni;
- 4) wykazanie że przy dawkach nawożenia azotowego stosowanych w Małopolsce, mierzone strumienie N_2O są niższe niż przeciętnie na innych stacjach europejskich na których stosowane są wyższe dawki nawożenia N;
- 5) wykazanie przestrzennej zmienności emisji N_2O w skali jednego pola, co wskazuje jak bardzo niepewne są szacunki emisji N_2O oparte na pomiarach wykonanych w jednym miejscu pola;
- 6) potwierdzenie, że zarówno tereny rolnicze, jak i użytki zielone na terenach miejskich są istotnymi przestrzennymi źródłami emisji N_2O do atmosfery w Małopolsce, a ze względu na dużą depozycję różnych form N w terenach miejskich emisja ta może być większa niż z nawożonych upraw rolniczych;
- 7) określenie zasięgu oddziaływania (footprintu) dla stacji KRK i KAS z wykorzystaniem modelu STILT;
- 8) identyfikacja najważniejszych źródeł emisji N_2O do atmosfery i próba określenia ich wpływu na wielkości mierzonych na stacjach KAS i KRK stężeń N_2O ;
- 9) wykazanie większego wpływu źródeł lokalnych na wartości stężeń N_2O mierzonych na stacji KRK i odległych źródeł położonych poza Małopolską na wartości stężeń mierzonych na stacji KAS, a tym samym potwierdzenie słuszności wyboru tej stacji jako stacji regionalnej monitorującej stężenia N_2O w tej części Europy Środkowej.

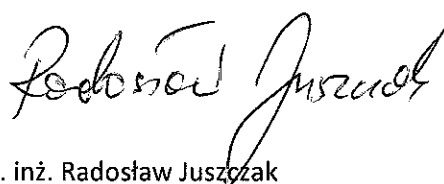
Negatywnie i krytycznie oceniam brak jednoznacznie sformułowanych hipotez badawczych. Czytając pracę ma się wrażenie, że jedną z głównych hipotez badawczych było potwierdzenie faktu, że to emisja ze źródeł rolniczych, a nie antropogenicznych, w największym stopniu odpowiada za wartości stężeń N_2O mierzonych na stacji KRK. Przedstawiona analiza danych i argumentacja w moim przekonaniu jest niewystarczająca i opiera się na przypuszczeniach, z drugiej jednak strony nie potrafię wskazać metody, która pozwoliłaby jednoznacznie scharakteryzować wpływ tego źródła na stężenia atmosferyczne N_2O . Słabą stroną pracy jest ocena wielkości emisji N_2O z gleb przeprowadzona tylko w okresach wiosennym i letnim, a nie w całym sezonie wegetacyjnym lub roku, co pozwoliłoby oszacować roczne bilanse N_2O emitowanego do atmosfery. Przeprowadzona analiza powinna uwzględniać rodzaj gleby i zawartość azotu, a analizując dane ze stacji miejskiej warto byłoby mieć dodatkowo dane o depozycji mineralnych form N. Szkoda, że w pracy nie opisano w jakim zakresie i czy w ogóle wykorzystano w modelowaniu dane o emisji N_2O z terenów rolniczych. Uważam, że ocena i charakterystyka źródeł emisji N_2O na terenie Małopolski powinna opierać się na bardziej kompleksowo

przeprowadzonej analizie opartej na ogólnodostępnych danych o emisji zanieczyszczeń powietrza. Ocena taka mogłaby wnieść dużo wartościowych elementów do dyskusji.

Pomimo kilku krytycznych uwag, podkreślenia wymaga fakt, że większość z podjętych przez Autora problemów badawczych ma charakter bardzo innowacyjny. Autor podjął się bardzo trudnego zadania stawiając sobie bardzo ambitne cele naukowe i użyteczne, które z przyczyn opisanych w podsumowaniu nie zawsze udało się zrealizować. Nie umniejsza to jednak znaczenia jego dzieła ani uzyskanych wyników. Nauka ma to do siebie, że im więcej od niej oczekujemy, tym więcej pojawia się często trudnych do wyjaśnienia pytań i hipotez badawczych. Tym większa jest często potrzeba bezwzględnie poszukiwania kompromisów wynikających często z braku dostępu do niezbędnych danych. Z takimi problemami z całą pewnością borykał się mgr Michał Gałkowski przygotowując niniejszą rozprawę. Zwarzywszy, że jest to pierwsza tego typu praca w Polsce i jedna z nielicznych w Europie, która integruje wyniki pomiarów atmosferycznych stężeń N_2O , pomiarów emisji z gleb i modelowania regionalnego z wykorzystaniem programu STILT, przedłożoną pracę oceniam bardzo wysoko, pomimo szeregu wątpliwości, niedociągnięć i pytań, które znalazły się w niniejszej recenzji. Odpowiedź na każde z nich z osobna bardzo ułatwiłaby zrozumienie niektórych zagadnień, z drugiej strony szczegółowe ich opisywanie w pracy mogłoby doprowadzić do utraty płynności tekstu i zaburzenia w opisie swojej historii pomiarów i analiz, której to podjął się Autor ocenianego dzieła.

Uwagi edytorskie i propozycje korekty drobnych błędów, które pojawiły się w tekście pracy, przedstawiono w osobnym dokumencie załączonym do niniejszej recenzji.

Z uwagi na powyższe stwierdzam, że mgr Michał Gałkowski spełnia wymogi Ustawy z dnia 14 marca 2003 r. „O stopniach i tytułach naukowych oraz o stopniach i tytułach w zakresie sztuki” (Dz. U. nr 65 z 2003 r, poz. 595) z późniejszymi zmianami (Dz. U. Nr 164, poz. 1365 z 27 lipca 2005 oraz Dz. U. Nr 253, poz. 2125 z 27 lipca 2005 r, Dz. U. 2011 nr 84 poz. 455 z 21 kwietnia 2011) i przedkładam wniosek Wysokiej Radzie Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo-Hutniczej w Krakowie o dopuszczenie Go do publicznej obrony pracy.



Dr hab. inż. Radosław Juszcak