



Kraków, 18.06. 2023

Prof. dr hab. Jerzy W. Mietelski
Zakład Fizykochemii Jadrowej IFJ PAN
jerzy.mietelski@ifj.edu.pl
+126628392

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr. Dawida Biernacika zatytułowanej „⁷Be jako wskaźnik warunków meteorologicznych i zanieczyszczeń powietrza w Polsce”

Obecne w środowisku naturalne i sztuczne substancje radioaktywne są od lat wykorzystywane jako geochemiczne lub geofizyczne znaczniki pozwalające badać różne procesy zachodzące na Ziemi. Przykładowo, tryt (H-3), obecny naturalnie w atmosferze ale zwłaszcza ten powstały w znaczących ilościach w czasie testów broni jądrowej przez kilkadziesiąt lat pozwalał w prosty i łatwy sposób określać wiek wód. Węgiel C-14 pozwala datować zmarłe organizmy i osady zawierające szczątki organiczne. U-234 i Th -234 pozwalają datować nacieki skalne. Be-10 pozwala badać paleomagnetizm, Cs-137, Pb-210, Pu-239+240 wykorzystywane są w badaniach tempa przyrostu młodych osadów czy też torfowisk. Wykorzystanie substancji radioaktywnych nie ogranicza się jednak jedynie do procesów zachodzących w biosferze lub w geosferze. Z powodzeniem stosowane są w badaniach procesów atmosferycznych. Właśnie tego rodzaju badaniom poświęcona jest praca doktorska mgr. Dawida Biernacika, przygotowana pod kierunkiem p. dr hab. Tamary Zalewskiej jako promotora i dr Ewy Jakusik jako promotora pomocniczego. Prac powstała w Instytucie Meteorologii i Gospodarki Wodnej – Państwowym Instytucie Badawczym (IMGW-PIB).

W pracy wykorzystano dwa nuklidy promieniotwórcze: Be-7 i Pb-210. Chociaż oba są w sposób naturalny ciągle obecne w atmosferze ziemskiej, jednak ich pochodzenie jest całkowicie różne. Be-7 powstaje głównie w stratosferze w wyniku szeregu reakcji jądrowych generowanych przez cząstki pierwotnego lub wtórnego promieniowania kosmicznego. Dominującym procesem jest reakcja spallacji jąder azotu i tlenu pod wpływem wysokoenergetycznych protonów. Pośród powstałej w tych procesach wielości jąder są też jądra Be-7. Pb-210 dostaje się do atmosfery głównie w wyniku rozpadu Rn-222. Radon to szlachetny gaz. Ma on trzy naturalne izotopy o liczbach masowych 219, 220 i 222. Radon wydostaje się z gleby i skał w drodze procesu zwanego emanacją. Jako substancja gazowa opuszcza porowate z natury struktury geosfery. Izotopy 219 (z szeregu aktynowego) i 220 (z szeregu torowego) mają krótkie czasy połowicznego zaniku (poniżej minuty), przez co mają niewiele czasu na emanację. Natomiast Ra-222 (z szeregu uranowego, bezpośrednia pochodna rozpadu alfa Ra-226) ma czas połowicznego zaniku 3.83 dnia, wydostaje się bez przeszkód z gleby i skał i potem ulega rozcieńczeniu w atmosferze. Tam zachodzą kolejne rozpady prowadzące poprzez krótkożyciowe Po-218, Pb-214, Bi-214, Po-214 do Pb-210. Nie jest to jedyne źródło Pb-210 w atmosferze, ale jest to proces dominujący. Inne procesy to np. erozja eoliczna gleby i skał, generacja aerozolu marygenicznego, immisja do atmosfery pyłów przemysłowych itp. Atomy (a właściwie powstałe jony) zarówno Be-7 jak i Pb-210 wiążą się z cząstkami aerozolu i dalej ich transportem rządzą ogólne zasady transportu cząstek aerozolu w atmosferze. To właśnie umożliwia wykorzystanie ich w badaniach różnych procesów



związanych z transportem pyłu w atmosferze. Oba są względnie długożyciowe (odpowiednio 53,3 dni i 22,3 lata), co jest pomocne w tych pracach.

Przedstawiona do recenzji praca doktorska ma postać preferowanej dzisiaj rozprawy w formie cyklu publikacji (tu: trzech), popularnie zwanej „zszywką”. Trzy publikacje poprzedza polskojęzyczny tekst zawierający rozdziały: 1.) Wprowadzenie, 2.) Cel i zakres pracy, 3.) Źródła danych i metodyka analiz promieniotwórczych w próbkach aerozoli i opadu całkowitego, 4.) Streszczenia publikacji i 5/) Wnioski. Następnie załączone są pełne teksty trzech publikacji. Całość wieńczy dwa końcowe rozdziały: 6.) Spis literatur (zawiera on jedynie 37 pozycji literaturowych) i 7.) Załączniki. Przed zasadniczym tekstem rozprawy znajdują się dwa streszczenia całości pracy: polsko i angielskojęzyczne. Całość oprawiona w tradycyjnych twardych okładkach.

W obszernym „Wprowadzeniu” Doktorant omawia zagadnienia związane z pojawianiem się w atmosferze zarówno Be-7 jak i Pb-210. Opis jest w zupełności wyczerpujący i poprawny. Bardzo ciekawy jest krótki rys historyczny. Mam tutaj jednak kilka uwag. Na stronie 5 czas połowicznego zaniku Pb-210 jest błędnie podany jako wynoszący 22,2 dni a nie 22,2 lat. Mam nadzieję, że to tylko lapsus. Mocne sformułowanie przytoczone na str. 3 „...Be-7 jest jednym z parametrów rekomendowanych ...”. nie zawiera żadnej referencji do tej rekomendacji. Nawiasem mówiąc samo przytoczone tu zdanie jest żargonem podszyte. Przecież „Be-7” to izotop promieniotwórczy a nie „parametr”. Parametrem może być natomiast jego stężenie, lub natężenie jego opadu itd.

We „Wprowadzeniu” omówiona jest też organizacja stacji poboru próbek aerozolu tworząca w Polsce wysokoczułą sieć wykrywania skażeń radioaktywnych powietrza koordynowaną przez Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR) składającej się z 12 stacji poboru aerozoli ASS-500 (*Aerosol Sampling Station*, „500” odnosi się do przepływu powietrza 500 m³/) w ramach krajowego systemu monitoringu radiacyjnego PAA (Państwowej Agencji Atomistyki). Zaprezentowano również sieć 9 stacji badających opad radioaktywnych w ramach sieci IMGW-PIB. Nie wzmiankowano niestety o pracach prowadzonych w Polsce w odniesieniu do opadu radioaktywnego prowadzonych poza tą siecią, głównie w Krakowie na Wydziale Fizyki i Informatyki Stosowanej AGH oraz w Instytucie Fizyki Jądrowej im. H.Niewodniczańskiego PAN (IFJ PAN) w Krakowie.

Jako cel pracy określono (str. 8) „scharakteryzowanie procesów transportu i dystrybucji Be-7 w atmosferze powiązanych z warunkami meteorologicznymi pod kątem sprawdzania możliwości wykorzystania radionuklidu Be-7 jako wskaźnika zmian wybranych parametrów meteorologicznych oraz zanieczyszczenia powietrza w Polsce a także do badania procesów zachodzących w atmosferze”. Dodano, że celem wzmocnienia wniosków badano też w tej roli Pb-210. Tezą pracy jest więc stwierdzenie, że istnieją statystyczne powiązania depozycji Be-7 (i jak rozumiem również Pb-210) z warunkami meteorologicznymi takimi jak suma opadów, temperatura powietrza, usłonecznienie, wilgotnością względną, kierunkiem i prędkością wiatru oraz zapyleniem. Znalezienie takich powiązań pozwoli wykorzystywać Be-7 (jak również, jak rozumiem, Pb-210) jako wskaźników zanieczyszczeń powietrza.

Źródłami danych są archiwalne zapisy z lat 1998-2018 udostępnione z bazy danych z sieci stacji ASS-500 (przechowywane w CLOR) oraz dane odnośnie opadu radioaktywnego z lat 2000-2016 z bazy własnej IMGW-PIB. Wykorzystano również dane synoptyczne IMGW-PIB z lat 1998-2018, pochodzące z archiwum tego samego Instytutu. Na podstawie tych danych stworzono połączoną bazę danych zawierającą jednocześnie dane tygodniowe o stężeniach Be-7 i Pb-210 w 12 lokalizacjach tych stacji, średnie tygodniowe parametry meteorologiczne (temperatury powietrza, sumy opadów atmosferycznych, usłonecznienie,



wilgotności względnej, ciśnienia na poziomie stacji i prędkości wiatru) oraz stężenia pyłu zawieszonego PM_{10} z tych 12 miejsc oraz drugą bazę zawierającą dane w zakresie miesięcznych wyników opadu Be-7 i Pb-210 z 9 stacji badania opadu z lat 2000-2016 wraz z wartościami zapylenia i wartościami wybranych elementów meteorologicznych. Nie wyjaśniono niestety, dlaczego ramy czasowe tych baz danych nie są jednolite. Przy okazji chciałbym dowiedzieć się, czy planowane jest tworzenie na bieżąco jednolitej bazy danych zawierającej wszystkie te informacje jednocześnie.

Jak wspomniano, rozprawa zasadniczo zawiera trzy publikacje. W pierwszej z nich (Zalewska T, Biernacik D., Marosz M., *Correlations between Be-7, Pb-210 and PM_{10} concentrations in relations to meteorological conditions in northern Poland 1998-2018*, opublikowanej w *Journal of Environmental Radioactivity* w 2011 r.) wykorzystano analizę statystyczną oraz uczenie maszynowe względem danych z utworzonej pierwszej bazy danych (tylko próbki z północnej Polski) wzbogaconej o dane odnośnie liczby plam słonecznych.

W drugiej publikacji (Zalewska T, Biernacik D., *Be-7 and Pb-210 in fallout and aerosols in 2000-2016 in central Europe – deposition velocity and dependence on meteorological parameters*, opublikowanej w prestiżowym *The Science of the Total Environment* w 2022 r.) przeprowadzono analizy statystyczne zmian stężeń Be-7 i Pb-210 w powietrzu oraz w opadzie oraz szeregu parametrów meteorologicznych dla całego obszaru Polski z lat 2000-2016 w próbkach uśrednionych do okresu jednego miesiąca. Określono szybkość depozycji Be-7 i Pb-210. Zidentyfikowano główne procesy determinujące mechanizm ich transportu z atmosfery do powierzchni.

W trzeciej publikacji (Biernacik D., Zalewska T., *Be-7, Pb-210, airborne particular matter and PM_{10} concentrations in relations to meteorological conditions in southern Poland in 1998-2016*, opublikowanej w *Journal of Environmental Radioactivity* w 2023 roku) określono zmienność czasowo-przestrzenną w/w radionuklidów oraz stężeń pyłu PM_{10} w ośrodkach na południu Polski (Kraków, Katowice) o wysokim zapyleniu. Zidentyfikowano główne czynniki od których zależą stężenia Be-7 i Pb-210.

W omówieniu pozyskiwania danych z sieci stacji ASS-500 brakuje mi zwrócenia pewnej uwagi na problem wewnętrznej spójności danych z całego systemu. Część stacji wykonuje pomiary gamma spektrometryczne na miejscu, część, z racji braku aparatury (lub tylko chwilowego jej braku z powodu awarii) przesyła zebrane filtry do CLOR. Problem potencjalnego niespełnienia założenia odnośnie spójności całego zbioru danych był rozpoznany od samego początku rozwoju sieci stacji ASS-500. Obecnie spójność danych próbuje się zapewniać poprzez kalibrację aparatury spektrometrycznej z wykorzystaniem tego samego, rozsyłanego wewnątrz uczestników sieci, źródła wieloizotopowego. Jednakowo, nie ma dobrej metody weryfikacji poprawności działania wszystkich przepływomierzy w 12 stacjach ASS-500. Analizowanie danych z długiego okresu z całej sieci mogłoby posłużyć do określenia, czy istnieją systematyczne obciążenia wyników pochodzących z poszczególnych elementów sieci. Nie wiem jak jest podobne zagadnienie jest rozwiązane w przypadku sieci IMGW-PIB badającej opad radioaktywny. Spójność danych jest bardzo ważnym elementem rzutującym na przeprowadzone badania. Jak rozumiem, jest ona tu założona, lecz nie zweryfikowana np. przez testy poszukujące systematycznych trendów pomiędzy wynikami. Problem dotyczy w większym stopniu oznaczania Pb-210 niż Be-7, ze względu na jego niższe (o rząd wielkości) średnie stężenie lecz również z racji niskiej energii kwantów gamma (równej 46,5 keV) emitowanych przez Pb-210, co stwarza trudności pomiarowe w niektórych spektrometrach. Jakkolwiek to, że analizowane dane posłużyły z powodzeniem do zidentyfikowania określonych prawidłowości, przemawia pośrednio na rzecz potwierdzenia istnienia spójności wykorzystanych danych.



W pierwszej publikacji potwierdzono negatywną korelację stężenia Be-7 (jako jednego z wielu izotopów kosmogenicznych) z liczbą plam słonecznych będącą jednym z parametrów charakteryzującą aktywność słoneczną. Zjawisko to jest jednym z przejawów tzw. Efektu Forbusha, o czym Doktorant jednak nie wspomina. Takie zjawisko nie występuje oczywiście w przypadku Pb-210, z racji całkowicie innego mechanizmu rządzącego jego pojawianiem się w atmosferze. Stężenia Be-7 są wyższe latem niż zimą, podczas gdy Pb-210 ma znaczne wahania stężeń, przykładowo i maksimum i minimum znaleziono w próbkach z sezonu zimowego. Podobny schemat zmienności jak dla stężenia Pb-210 zaobserwowano do stężenia pyłu PM₁₀. Stwierdzono, że pochodzenie antropogeniczne obu czynników stoi za ich podobnym charakterem obserwowanej zmienności w czasie. Należy z uznaniem zauważyć, że w analizie korelacji zastosowano poprawnie metodę korelacji rang Spearmana, z racji tego, że częściej wykorzystywana (niestety też błędnie!) korelacja Pearsona wymaga rozkładów gaussowskich badanych zmiennych, a to nie byłoby to zapewne spełnione. Korelacje analizowano oddzielnie dla danych z kolejnych pór roku. Stwierdzono, że w okresie wiosenno-letnim transport radionuklidów jest współzmienny z wielkością zapylenia i z warunkami meteorologicznymi. Doktorant konkluduje (str. 15) że „najważniejszymi czynnikami wpływającymi na transport Be-7 do powierzchni ziemi, obok plam słonecznych i stężenia pyłu ($r=0,69$) były temperatura powietrza i usłonecznienie (odpowiednio $r=0,32$ i $0,38$)”. To sformułowanie jest w mojej ocenie mylące, bo korelacja (negatywna) z liczbą plam słonecznych odnosi się do tempa produkcji Be-7 a nie do jego transportu atmosferycznego. Wspomniany Efekt Forbusha polega na tym właśnie, że w okresach z dużą liczbą plam słonecznych natężenie wiatru słonecznego jest większe, co powoduje, że w magnetosferze Ziemi spuląpkowanych jest więcej cząstek naładowanych pochodzących z wiatru słonecznego, co ostatecznie tworzy lepszą ochronę atmosfery przed galaktycznym promieniowaniem kosmicznym odpowiedzialnym za produkcję kosmogenicznych radionuklidów, w tym Be 7..

Stwierdzono silne uzależnienie poszczególnych współczynników korelacji od pór roku. W omówieniu tych zależności brakuje mi w odniesieniu do Pb-210 zauważenia, że przy napływach powietrza z nad morza te stężenia powinny być znacznie niższe z racji znikomej emanacji radonu z powierzchni wody względem typowej emanacji z gruntu. Podobnie, w czasie ostrzejszych zim, przy zalegającej pokrywie śnieżnej i zamarzniętym gruncie emanacja radonu jest bardzo ograniczona.

W dalszej części pracy zastosowano elementy sztucznej inteligencji (uczenia maszynowego) do zbadania struktury zbioru danych. Zastosowano algorytm uczenia maszynowego tzw. model lasów losowych. Stwierdzono podobieństwa analiz klasycznych (metodami statystycznymi) i nowej metody uczenia maszynowego. Trochę szkoda, że Autor nie poświęcił tej nowej metodzie więcej miejsca w omówieniu metodyki, wtedy znaczący i tak walor dydaktyczny pracy byłby jeszcze bardziej zwiększony.

W publikacji drugiej gros analiz poświęcono określeniu szybkości transportu Be-7 i Pb-210 w atmosferze w oparciu o dane odnośnie aerozolu z całej sieci ASS_500 oraz dane odnośnie opadu z całej sieci IMGW-PIB -z lat 2000-2016. Dane o radioaktywności (uśredniane w okresie miesiąca) uzupełniono danymi o stanie atmosfery takimi jak średnie zapylenie i parametry czysto meteorologiczne. Wykazano, że w badanym okresie nastąpił wzrost średnich stężeń obydwu radionuklidów w opadzie atmosferycznym. Co ciekawe, w tym okresie nastąpił spadek zapylenia co właśnie skutkuje wzrostem stężenia w opadzie. Stwierdzono m.in. zależność szybkości depozycji badanych radionuklidów od wielkości zapylenia. Szybkości te są podobne dla obu radionuklidów i podlegają podobnemu cyklowi pór roku z maksimum przypadającym na okres letni. To jest zrozumiałe z racji intensywnych



ruchów wertykalnych powietrza latem (konwekcja). Autor to poprawnie interpretuje. Mniej oczywisty jest zaobserwowany wzrost tempa depozycji wraz ze spadkiem zapylenia. Sugeruje to, że być może spadek całkowitego zapylenia zwiększa względny udział dużych cząstek szybciej wypadających z atmosfery? Obserwowano wzrost szybkości transportu radionuklidów wraz ze wzrostem temperatury i usłonecznienia, natomiast wzrost wilgotności korelował ze spadkami stężenia Be-7 zarówno w próbkach aerozolu jak i w opadzie. Jednocześnie dla obu nuklidów wartości te malały wraz ze wzrostem prędkości wiatru oraz ze wzrostem ciśnienia. Stwierdzono (co dosyć oczywiste) oczyszczanie atmosfery z tych radionuklidów w wyniku opadów wielkoskalowych. Stwierdzono silną korelację stężenia Be-7 w opadzie atmosferycznym z wielkością opadu całkowitego. Moja zasadnicza uwaga krytyczna wobec publikacji nr. 2 ma charakter jedynie techniczny. Przy prezentacji danych odnośnie stężeń radionuklidów w powietrzu z sieci ASS-500, czy też natężenia ich opadu z sieci IMGW-PIB. razi mnie podawanie tych liczb z pięcioma cyframi znaczącymi, podczas gdy dane pomiarowe obarczone są błędem kilkuprocentowym, czyli już trzecia cyfra jest wątpliwa. Powiedzmy, że te trzy cyfry znaczące miałyby uzasadnienie, pięć ich na pewno nie ma.

Trzecia z prac cyklu zawiera analizę szeregów czasowych wyników z lat 1998-2016 ze stacji ASS-50 z Krakowa i Katowic w odniesieniu do wartości zapylenia i stężenia pyłów PM₁₀. Rejon badań wybrano jako tereny o najwyższym w Polsce stopniu udziału pyłów antropogenicznych w atmosferze. W pracy stwierdzono podobne zmienności sezonowe jak w pracach poprzednich, Zwrócono uwagę na sporadyczne, występujące w sezonie zimowym gwałtowne wzrosty stężeń Be-7 i Pb-210 w Krakowie. Stwierdzono, że jest to związane ze wzrostem antropogenicznego zanieczyszczenia powietrza w tym rejonie. W ocenie recenzenta jest tu obecny co najmniej jeden dodatkowy a pominięty przez autora czynnik – tzw. iniekcje stratosferyczne występujące wczesną wiosną i wprowadzające znaczące ilości Be-7 do troposfery. Tym tłumaczyłbym maksima występujące pomiędzy 15 a 20 tygodniem roku, jak i być może sporadyczne maksima zimowe. Drugim czynnikiem w mojej ocenie jest też występowanie na południu Polski (często zwłaszcza zimą) inwersji temperatur. Myślę, że w dalszych badaniach warto by te czynniki również brać pod uwagę. Z obserwacji recenzenta zimowe i wiosenne maksima Be-7 w Krakowie wiążą się z napływem ciepłych mas powietrza pochodzenia atlantyckiego, związanych z niżem barycznym i silnymi wiatrami.

Niestety ponownie Autorzy nie ustrzegli się prezentowania wyników stężeń radionuklidów z nieuzasadnioną pseudo-dokładnością pięciu (dla Be-7) lub czterech (dla Pb-210) cyfr znaczących. Dziwię się, że recenzje wydawnicze nie zwróciły uwagi na to uchybienie. Pewnym też dyskomfortem recenzenta jest pominięcie przez Autora kilku prac dotyczących badanych nuklidów powstałych w ośrodku krakowskim, zacytowana jest jedynie jedna z nich, chociaż być może ta najistotniejsza.

W rozdziale dysertacji zatytułowanej „Wnioski” Autor enumeratywnie wymienia 8 wniosków. Dotyczą one charakterystyki czasowej stężeń Pb-210 i Be-7 w opadzie i próbkach aerozolu, identyfikacji temperatury powietrza jako kluczowego parametru opisującego transport badanych radionuklidów (kolejne to usłonecznienie i wilgotność), stwierdzenia trendu wzrostowego szybkości depozycji radionuklidów i zależności od zapylenia, wpływu cyklu słonecznego na stężenie Be-7 (tu poprawnie opisanego jako wpływ na tempo produkcji radionuklidów kosmogenicznych a nie na tempo ich transportu) czy też w końcu zależności geograficznych (wyższe stężenia obserwowano na południu kraju). W ostatecznej konkluzji Autor stwierdza potwierdzenie potencjału aplikacyjnego przeprowadzonych badań, gdzie przydatność Be-7 do oceny stanu skażeń atmosfery została potwierdzona.



INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ
im. Henryka Niewodniczańskiego
POLSKIEJ AKADEMII NAUK

Praca jest napisana potoczystym językiem, dobrze ją się czyta. Pewne niepokoje recenzenta wynikają z czasem za dużej tej potoczystości przejawiającej się np. wymiennym traktowaniem terminów „szybkość” i „prędkość”. Dla przypomnienia: we fizyce prędkość jest wielkością wektorową, a więc oprócz jej wartości bezwzględnej nazywanej „szybkością” charakteryzują ją też kierunek i zwrot. Nie mam wątpliwości, że w odniesieniu do opisu transportu wertykalnego cząstek aerozolu powinno się tu stosować pojęcie „szybkości”. Podobnie nadto liberalnie Autor podchodzi do słowa „aerazol”. Używa go w znaczeniu potocznym jako „cząsteczka pyłu” podczas gdy ściśle encyklopedycznie słowo „aerazol” to drobiny pyłu lub cieczy zawieszzone w gazowym ośrodku. W konsekwencji powinno być „próbki aerozolu” a nie „aerazole”.

Reasumując, wymienione w treści recenzji drobne uwagi krytyczne nie umniejszają mojej wysokiej oceny przedstawionej przez mgr. Dawida Biernacika rozprawy. Uważam, że spełnia ona wszystkie wymogi stawiane przez obecną Ustawę o Szkolnictwie Wyższym warunki dla dysertacji doktorskiej i wnioskuje o dopuszczenie mgra. Dawida Biernacika do dalszych etapów postępowania o nadanie mu stopnia naukowego doktora.

KIEROWNIK
Zakładu Fizykochemii Jądrowej

prof. dr hab. Jerzy W. Mietelski

Kraków, 18.06.2023