

Warszawa, 10. 09. 2026

Prof. dr hab. Tadeusz Stacewicz
Instytut Fizyki Doświadczalnej
Wydział Fizyki
Uniwersytetu Warszawskiego
02-093 Warszawa, ul. Pasteura 5

Recenzja pracy doktorskiej kpt. mgr. inż. Filipa Musiałka pt.

Wyznaczanie stężenia gazu w układach laserowej spektroskopii absorpcyjnej z modulacją długości fali za pomocą metody z wykorzystaniem sztucznych sieci neuronowych

Jedną z najstarszych części optyki - spektroskopia absorpcyjna, mimo, że jej początki sięgają 18 wieku, należy wciąż do najszerzej stosowanych dziedzin nauki. Jest powszechnie wykorzystywana do oznaczania materii. Podstawowe prawo, któremu ona podlega - prawo Bourgera – Lamberta – Beera, jest wciąż nieodzowne do określenia gęstości cząstek absorbujących. To bardzo ważna dziedzina dla wielu gałęzi nauki, przemysłu, medycyny czy ochrony środowiska. Wciąż obserwuje się w niej postęp związany z implementacją odkryć, instrumentów i podejść, które kolejno pojawiały się w optyce, jak rejestracja fotoelektryczna, lasery (szczególnie lasery przestrajalne), komórki wieloprzejściowe, rezonatory optyczne, fotoakustyka, grzebień optyczny, a z metod – techniki modulacyjne, detekcja fazowa i inne. Dzięki nim czułość pomiarów w spektroskopii absorpcyjnej zwiększyła się o 6 - 8 rzędów wielkości w stosunku do eksperymentów pierwotnych. Jedną z dróg dalszego postępu w tej dziedzinie jest wykorzystanie współczesnych metod komputerowych: sztucznych sieci neuronowych. Tym zagadnieniom poświęcona jest praca doktorska kpt. mgr. inż. Filipa Musiałka.

Obiektem badań w tej pracy jest sensor metanu, w którym wykorzystuje się spektroskopię absorpcyjną z modulacją długości fali (WMS od ang. *Wavelength Modulation Spectroscopy*). Do tej pory opracowano wiele różnych mierników tego gazu, jednak ze względu na duże znaczenie oznaczania stężenia CH_4 dla wielu dziedzin ludzkiej działalności (nauka, przemysł, transport, medycyna, monitoring środowiskowy, rolnictwo) wciąż poszukuje się rozwiązań coraz dokładniejszych, szybszych i pewniejszych. Liczba publikacji naukowych dotyczących tego tematu sięga kilkuset rocznie. Stosowana wśród metod technika WMS jest podejściem dobrze rozpracowanym w laboratoriach naukowych i coraz szerzej stosowanym w praktyce. Doktorant stwierdził jednak, że różne sposoby pomiaru stosowane w tej metodzie charakteryzują się określonymi ograniczeniami. Wyzniósł więc cel działania, który ujął w tezie swojej pracy doktorskiej: *Możliwe jest skrócenie czasu pomiaru stężenia gazu w analizatorach typu WMS przy jednoczesnej minimalizacji wpływu ciśnienia i temperatury gazu poprzez zastosowanie dedykowanych sztucznych sieci neuronowych.*

Sieci neuronowe to systemy informatyczne inspirowane budową ludzkiego mózgu. Stosowane są między innymi do analizy danych doświadczalnych, gdyż mają zdolność aproksymacji poszukiwanych wielkości rzeczywistych wykorzystując bazy rezultatów pomiarów. Zdolności te

nabywają w procesie treningu. Współczesne systemy komputerowe pozwalają (po wytrenowaniu sieci) realizować takie procesy aproksymacji w czasach rzędu pojedynczych sekund lub krótszych. Umożliwia wykorzystanie ich *on line* w układach pomiarowych. Temat jest aktualny, co znajduje odzwierciedlenie w coraz większej liczbie publikacji naukowych na ten temat. Jednak dotychczas nie opracowano modeli trenowania odpornych na niestabilności ciśnienia i temperatury badanego gazu, a te mogą prowadzić do kilkudziesięcioprocentowych błędów pomiarowych. Wskutek tego wykorzystanie sieci neuronowych w technice WMS nie było znacząco skuteczne.

Przystępując do przełamania tej bariery doktorant rozpoczął działania od budowy własnego sensora metanu wykorzystującego technikę WMS. Wybrane zostało pasmo absorpcyjne CH_4 o długości fali 3270,4 nm, charakteryzujące się dużym przekrojem czynnym. Jest ono niezakłócone przez pasma absorpcyjne innych gazów występujących w atmosferze, jednak jego kształt i amplituda – podobnie jak dla wszystkich widm - mogą się znacząco zmieniać w funkcji ciśnienia i temperatury, co jest źródłem wymienionych powyżej ograniczeń i niedokładności pomiarowych.

Źródłem światła w sensorze był laser kaskadowy przestrajalny przez zmianę jego temperatury ale – co użyteczniejsze, także przestrajalny z wysoką precyzją i częstotliwością poprzez zmianę jego prądu zasilania. Umożliwia to modulację długości fali poprzez widmo absorpcyjne, a to jest istotą techniki WMS. Pomiaru koncentracji CH_4 dokonywano w komórce wieloprześciowej o ponad metrowej drodze optycznej. Do detekcji promieniowania wykorzystano czułe fotodetektory na wspomniane pasmo długości fal. Wykorzystując wysokiej jakości elektroniczne układy pomiarowe (kartę oscyloskopową i kontroler) i odpowiednie, przez siebie opracowane, oprogramowanie autor zbudował cyfrowy dwufazowy detektor homodynowy, który wykorzystywał do rejestracji sygnałów elektronicznych. Wszystkie podzespoły sensora zostały starannie przetestowane przed jego uruchomieniem. Uzyskane w ten sposób ich parametry posłużyły do określenia zarówno czułości jak i niedokładności przyrządu. Wyznaczono teoretyczne granice jego zakresu pomiarowego (2 ppb – 2300 ppm), co umożliwiło dobór mieszaniny referencyjnej (100 ppm $\text{CH}_4 + \text{N}_2$). Pomiary z jej użyciem wykazały dobrą zgodność wyników z wielkościami zawartymi w powszechnie wykorzystywanej bazie HITRAN, zawierającej dane o gazach atmosferycznych. Stanowi to potwierdzenie poprawności działania sensora. Przeprowadzono też test Alana, określający możliwą do osiągnięcia dokładność aparatury przy pomiarach długoczasowych. Opisane powyżej badania, umożliwiły także opracowanie symulacyjnego modelu miernika.

Następny krok polegał na opracowaniu modeli wspomnianych już sztucznych sieci neuronowych. W celu ich wytrenowania i walidacji konieczne było zgromadzenie odpowiednich danych. Doktorant wykorzystał własny skrypt do wyznaczania symulacyjnych sygnałów uzyskiwanych w technice WMS dla różnych stężeń, ciśnień oraz temperatur gazu. Dzięki temu powstała baza zawierająca 200 tys. sygnałów dla stężeń CH_4 w zakresie od 1 do 100 ppm, ciśnień w przedziale 0,05 - 2 atm i temperatur od -50 do +50 °C. Następnie samodzielnie skonstruował 2 modele sztucznych sieci neuronowych, które nazwał WMS-A i WMS-B. WMS-A po wprowadzeniu wartości maksymalnej sygnału z sensora oraz ciśnienia i temperatury dopasowuje stężenie metanu z poprawnością lepszą niż 0,5% w czasie < 50 ms. Odpowiada to skróceniu czasu odpowiedzi sensora metanu o co najmniej dwa rzędy wielkości. Uzyskano też około 20 krotnie mniejszą zależność wartości wyniku od ciśnienia i temperatury. Działający w inny sposób model WMS-B także charakteryzuje się krótkim czasem pomiaru (< 50 ms) i porównywalnie małą (15 krotnie mniejszą) zależnością odpowiedzi od ciśnienia i temperatury w porównaniu ze stosowaną w technice WMS metodą opartą na wartości maksymalnej sygnału, lecz bez wsparcia siecią neuronową. Doktorant opracował też trzecią sieć, którą połączył z modelami WMS-A i WMS-B. Służyła ona do redukcji szumu w układach WMS.

Tak przygotowany układ system hardwarowo – softwarowy testowano doświadczalnie. Sprawdzono poprawność pomiaru koncentracji referencyjnych mieszanek CH₄ z azotem w zakresie stężeń od 10 do 100 ppm w warunkach normalnych, uzyskując poprawność wynoszącą dla modelu WMS-A - 2,6%, a dla WMS-B - 5,6%, zarówno przy powolnych jak i przy szybkich zmianach stężenia. Uzyskano precyzję pomiaru lepszą niż 0,2%. Przy różnych ciśnieniach i temperaturach wyniki były zgodne z dokładnością do 5%.

Parametry systemu przedstawionego w dysertacji są znacząco lepsze niż parametry innych podobnych układów opisanych w literaturze naukowej. Stanowi to potwierdzenie, że opracowana przez doktoranta metoda skutecznie redukuje wpływ zmian ciśnienia i temperatury na rezultaty pomiarów stężenia CH₄. **Stanowi jednocześnie dowód założonej tezy rozprawy.**

Mimo bardzo starannego opracowania dysertacji, autor nie uniknął błędów i uchybień. Kilka z nich znalazło się we wstępie. I tak na str. 15 u góry czytamy: *część promieniowania ulega zjawisku absorpcji przez molekuły gazu, jeżeli energie fotonów odpowiadają różnicom pomiędzy energiami stanów wzbudzenia cząsteczek*. Nie jest to ściśle, gdyż poza dopasowaniem energetycznym muszą być także spełnione tzw. warunki wyboru, często polegające na spełnieniu zasady zachowania momentu pędu, ale także i innych zasad.

Dalej, na tej stronie, stwierdzenie: *Przejścia oscylacyjne wynikają z drgań względem siebie atomów w molekułach...* obciążona jest żargonem, gdyż przejścia te odpowiadają nie drganiom, a zmianom energii drgań atomów w molekułach. I poprawniej byłoby użyć tutaj określenia *zręby atomowe*, gdyż drgają jądra atomowe wraz z elektronami znajdującymi się na przyległych do nich powłokach. Elektrony z powłok walencyjnych uczestniczą w wiązaniach chemicznych, więc ich drgania są odmienne.

Niestety, następne zdanie ze strony 15 ... *przejścia elektronowe związane są z energią kinetyczną i potencjalną elektronów poruszających się wokół jąder atomowych* – o ile można przyjąć dla swobodnych atomów, w żaden sposób nie jest prawdziwe w odniesieniu do molekuł. W szczególności prosta molekuła, jak molekuła metanu, to stabilny układ ładunków: dodatnio naładowanych zrębów atomowych i ujemnie naładowanych elektronów z powłok walencyjnych. Elektrony te są często zdelokalizowane, a więc nie są związane z konkretnym zrębem lecz są wspólną częścią molekuły. Istnieje na ogół wiele stabilnych konfiguracji tych ładunków – układów zrębów atomowych i elektronów walencyjnych. Stanowią one grupę stanów elektronowych wiążących molekułę. Każdy ze stanów charakteryzuje się swoją energią. Stan o najniższej energii jest podstawowym stanem elektronowym. Przejścia elektronowe zachodzące wskutek dostarczenia molekułce energii - prowadzą więc do zmiany tej konfiguracji.

Jednym z problemów przejawiających się w całej pracy, a dotyczących używania nazewnictwa fizycznego, jest pomieszanie pojęć *linia spektralna* i *pasmo spektralne*. *Linia spektralna* – pojedynczy rezonans kwantowy - to widmo odpowiadające przejściu między dwoma niezdegenerowanymi stanami danego układu kwantowego. A *pasmo spektralne* to grupa bliskich linii, które w jednych warunkach, jak np. niskie ciśnienie, mogą być rozseparowane, a w innych warunkach tworzą pewien ciągły profil absorpcyjny. Dobrze to widać na rys. 4.2, który przedstawia pasmo absorpcyjne metanu wykorzystane w tej pracy doktorskiej. Składa się ono z trzech linii odpowiadających poszczególnym przejściom między stanami oscylacyjno – rotacyjnymi. Linie te separują się przy ciśnieniu 0.05 atm. Przy ciśnieniu 1 atm. – na skutek poszerzenia ciśnieniowego tworzą one ciągłe pasmo z maksimum o długości fali (w przybliżeniu) 3270.4 nm.

W świetle powyższego w zdaniu (str. 15): *Widmo absorpcyjne gazu składa się z pojedynczych pasm odpowiadających występowaniu przejść pomiędzy poziomami energetycznymi molekuły dla danej długości fali* słowo *pasmo* powinno być zastąpione słowem *linia*.

Dalej, na str. 16, wprowadza się parametr, który jest powszechnie znany jako *siła linii*. Jednak autor nazywa go po swojemu *siłą pasma*, choć w tym samym wierszu przytacza jego anglojęzyczną nazwę: *linestrength* - tłumaczenie zbędne. Sztuczna inteligencja od Google stwierdza wprost, że *sformułowanie „siła pasma” nie jest precyzyjnym terminem naukowym*.

Pomieszczenie pojęć *linia* – *pasma* prowadzi w części rozdziału 2 dotyczącej poszerzeń widm (str 18 – 19) do niepoprawnego opisu. Przedstawione mechanizmy poszerzenia dotyczą pojedynczych linii, a nie pasm złożonych z kilku linii, jak to ma miejsce w przypadku metanu. Każda linia z danego pasma podlega tym mechanizmom w sposób indywidualny, gdyż każdy oscylator kwantowy, będący jej źródłem, ma własny czas życia i jest zaburzany w sposób na ogół odmienny przez otaczające środowisko. Np. wzór (13) ewidentnie przedstawia pojedynczą linię spektralną o kształcie gaussowskim i konkretnej częstotliwości centralnej – a nie pasmo. To samo dotyczy wzoru (15), który opisuje linię – a nie pasmo – o kształcie lorentzowskim. Natomiast kształt pasma – czyli grupy linii - wynika z sumy profili linii, będących jego składowymi, o różnych częstotliwościach centralnych i różnych szerokościach. Więc szerokość pasma jest szerokością profilu wypadkowego. Interesujące jest, że zostało to ujęte prawidłowo w rozdziale 4.2, przy opisie pasma metanu. Skąd więc te nieścisłości w rozdziale 2 ?

Przedstawiając mechanizm poszerzenia ciśnieniowego (zderzeniowego - str. 19) autor wziął pod uwagę tylko proces zderzeń nieelastycznych, prowadzący do wygaszenia wzbudzenia molekuly. Pominął bardzo istotne zjawisko zderzeń elastycznych, które – co prawda – nie powoduje depopulacji stanu wzbudzonego cząsteczki lecz prowadzi do zaburzenia fazy absorbującego oscylatora, jakim jest ta cząsteczka. Zderzenia elastyczne są szczególnie częste w gazach pod ciśnieniem porównywalnym z ciśnieniem atmosferycznym, a w takich warunkach prowadzono badania opisane w dalszej części pracy.

Niewłaściwe jest użycie pojęcia *izotopy metanu* (str. 60). Wyraz *izotop* jest zdefiniowany tylko dla atomów pierwiastków tego samego rodzaju różniących się liczbą neutronów w jądrze. Wobec identycznych związków chemicznych, ale zawierających różne izotopy danego pierwiastka, powinno się stosować nazwę *związki o różnym składzie izotopowym (izotopologi¹)*.

Formuły matematyczne zostały w dysertacji opracowane i zaprezentowane bardzo starannie, choć dziwić się można, że we wzorach (6, 7) ze str. 17, oraz (17) ze str. 19 całkowanie przebiega od $-\infty$ do $+\infty$ - czyli po ujemnych wartościach długości fali, które – jak wiadomo – nie mają zastosowania. Nie powoduje to błędu matematycznego – jedynie dysonans logiczny.

Równie starannie opracowano tabele i rysunki. Drobną błąd daje się zauważyć w Tab. 4.2: wymieniony tam *współczynnik przestrajania* nie dotyczy zmiany długości fali lecz przyrostu mocy wraz ze wzrostem prądu zasilania lasera. Z kolei na rys. 4.12, wbrew informacji w podpisie, na osi pionowej nie jest pokazany współczynnik transmisji (T_λ) lecz współczynnik strat promieniowania ($1 - T_\lambda$). Jego maksymalna wartość może sięgnąć 100%. Trochę więc sztucznym wydaje się ciągnięcie opisu tej osi do wartości 1 000 000%.

Język pracy jest na ogół poprawny i czyta się ją nieźle, choć miejscami odnośzę wrażenie, że autor nie operuje akapitami w sposób właściwy. W wielu miejscach te podstawowe jednostki logiczne tekstu są stanowczo zbyt długie i zdarza się, że nie jest w nich stosowana zasada: *jeden akapit – jedna myśl*. Trzymanie się tej reguły poprawiłoby czytelność dysertacji. Inne drobne błędy - stylistyczne lub interpunkcyjne - nie są warte wymienienia w tej recenzji.

Tych błędów, nieścisłości, czy też niedociągnięć jest w pracy niewiele i pojawiły się one głównie części wstępnej, a w stopniu zupełnie nieznacznym w rozdziałach dalszych, świadczących o

¹ IUPAC (Międzynarodowa Unia Chemii Czystej i Stosowanej) w dziedzinie chemii fizycznej i spektrometrii mas.

dokonaniach doktoranta. Ogółem, nie obniżają one, według mnie, wartości dysertacji, którą oceniam jako bardzo dobrą.

Wyniki badań związanych z doktoratem opublikowane zostały w trzech recenzowanych czasopismach z listy filadelfijskiej, wysoko punktowanych przez MNiSW (odpowiednio 70, 100 i 140 pkt.). Niemniej wymiernym efektem rozprawy doktorskiej jest kilka opracowań mających charakter uniwersalny, jak wysokiej jakości laboratoryjny analizator gazu wykorzystujący technikę WMS, cyfrowy detektor homodynowy, a także pakiet oprogramowania składający się z narzędzia do automatycznego gromadzenia danych spektroskopowych oraz dwóch modeli sztucznych sieci neuronowych wzbogaconych o autoenkoder do redukcji szumu. Mogą one być zaadoptowane do sensorów innych gazów, a nawet innych systemów pomiarowych.

Kpt. mgr inż. Filip Musiałek udowodnił, że jest wyróżniającym się kandydatem do stopnia doktora o znakomitych osiągnięciach. Wykazał, że jest młodym naukowcem o dużej samodzielności. Poza szeroką wiedzą z optyki dowiódł świetnego opanowania sztuki programowania, a także umiejętności konstruowania nowoczesnej aparatury naukowej. Sama dysertacja F. Musiałka jest ciekawa, nowatorska, pożyteczna i ma dużą wartość naukową. Dotyczy aktualnych problemów współczesnej absorpcyjnej spektroskopii laserowej, a osiągnięte wyniki mają istotne znaczenie dla rozwoju technik optycznych stosowanych również w innych dziedzinach. Stwierdzam, że rozprawa pt. *Wyznaczanie stężenia gazu w układach laserowej spektroskopii absorpcyjnej z modulacją długości fali za pomocą metody z wykorzystaniem sztucznych sieci neuronowych* bardzo dobrze spełnia warunki określone w ustawie o stopniach naukowych w części dla prac doktorskich.

Wniosuję nie tylko o dopuszczenie tej pracy do dalszych etapów przewodu doktorskiego. Składam też wniosek o wyróżnienie rozprawy za nowatorskość, wysoki poziom merytoryczny oraz techniczny i bogaty materiał naukowy, który jest cenny dla wszystkich zajmujących się ultraczułym oznaczaniem materii za pomocą spektroskopii absorpcyjnej i wykorzystaniem najnowszych podejść do tej dziedziny – sieci neuronowych.

Tadeusz Stacewicz