

Warszawa, 2 kwietnia 2019 r.

Dr hab. inż. Piotr Woyciechowski, prof. PW

Wydział Inżynierii Lądowej

Politechnika Warszawska

ul. L. Kaczyńskiego 16

00-637 Warszawa

Recenzja rozprawy doktorskiej

Mgr. inż. Huberta Witkowskiego

„Sekwestracja dwutlenku węgla betonów samozagęszczalnych w procesie karbonatyzacji”

Podstawę formalną opracowania recenzji stanowi pismo prof. dr hab. inż. Marka Lefika, Dziekana Wydziału Budownictwa, Architektury i Inżynierii Środowiska Politechniki Łódzkiej z dn. 12.03.2019 r., wynikające z postanowienia uchwały Rady Wydziału z dn. 7.03.2019.

Rozprawa doktorska będąca przedmiotem recenzji została przygotowana w Politechnice Łódzkiej, promotorem rozprawy był dr hab. inż. Marcin Koniorczyk, prof. PŁ.

1. Charakterystyka ogólna pracy

Rozprawa ma charakter badawczy i liczy 149 stron. Praca została podzielona na 7 części podstawowych. Praca zawiera w części podstawowej 29 rysunków, 9 zdjęć i 37 tablic. Pracę kończą wykaz literatury, obejmujący 141 pozycji, w tym 22 normy oraz streszczenia w języku polskim i angielskim. Praca zawiera także na początku wykaz ważniejszych skrótów i oznaczeń oraz zestawienie tablic, rysunków i zdjęć.

W części pierwszej pracy Autor przedstawia genezę tematu oraz formułuje cel, zakres a także trzy tezy pracy. Część druga – studium literaturowe – obejmuje trzy główne zagadnienia. Pierwsze z nich (rozdz. 2.1.) to syntetyczne przedstawienie stanu wiedzy o betonach samozagęszczalnych, ze szczególnym uwzględnieniem aspektów ekologicznych tej technologii. Drugie zagadnienie to ogólne rozważania o betonie w kontekście zasad zrównoważonego rozwoju (rozdz. 2.2). Trzeci wątek poruszony w części studialnej pracy to podstawy fizykochemiczne i modelowanie matematyczne przebiegu karbonatyzacji betonu (rozdz. 2.3). Wszystkie trzy elementy studium literaturowego są bezpośrednio związane z postawionymi тезami, a przeprowadzona analiza stanu wiedzy i wnioski z niej płynące są w dalszej – badawczej – części pracy wielokrotnie przywoływane, stanowiąc podstawę planu badań i sposobu analizowania własnych wyników. Część studialna objętościowo jest wyraźnie obszerniejsza niż część zawierająca badania i analizy własne.

Część trzecia pracy obejmuje prezentację badań własnych, których celem jest weryfikacja autorskiej procedury przygotowania próbek do badań zasięgu karbonatyzacji betonu z wykorzystaniem metod TG/DTA i FTIR oraz wykorzystania tej metody przygotowania próbek do sprawdzenia rzeczywistej zdolności sekwestracyjnej przykładowych betonów samozagęszczalnych, przy pomocy analizy DTA i odpowiednich obliczeń.

Część czwarta i piąta pracy to obliczenia i porównanie śladu węglowego i zdolności sekwestracyjnej na podstawie własnych danych eksperymentalnych oraz na podstawie normy PN-EN 16757. Pracę kończą wnioski i podsumowanie (rozdz. 6 i 7) wskazujące na udowodnienie postawionych tez. Rozdzielenie treści rozdziałów 4 i 5 na dwa osobne rozdziały nie znajduje uzasadnienia merytorycznego zwłaszcza w świetle faktu, że łącznie oba rozdziały zajmują 3 strony. Kolejność rozdziałów 6 i 7, tzn. najpierw wnioski a następnie podsumowanie budzi zdziwienie, a lektura treści obu tych części skłania do refleksji, że warto było je połączyć, co pozwoliłoby uniknąć powtórzeń niektórych stwierdzeń w obu rozdziałach.

2. Ocena merytoryczna rozprawy

2.1. Dobór tematu, cel i teza rozprawy

Tematem rozprawy są rola karbonatyzacji betonu samozagęszczalnego w analizowaniu jego charakterystyk środowiskowych, w tym przede wszystkim śladu węglowego oraz zaawansowane metody badawcze służące temu celowi. Tak sformułowany cel badawczo-analityczny łączy w sobie trzy zagadnienia z technologii betonu, które w ostatnich latach stanowią przedmiot różnorodnych badań w ośrodkach naukowych całego świata. Hasła „samozagęszczalność”, „karbonatyzacja” i „ślad węglowy” stanowią ważne szczegółowe elementy macierzy dyscyplinarnej paradygmatu rozwoju zrównoważonego w obszarze technologii betonu. Stanowią one przykłady właściwości i miar, które służą wyznaczaniu bieżących kierunków modyfikacji materiałowo-technologicznych i sposobów oceny betonu, zgodnie z takimi zasadami zrównoważenia jak minimum obciążenia środowiska, minimum energii wbudowanej, maksimum trwałości, optimum funkcjonalności. W tym kontekście należy uznać wybór tematu i sformułowanie celu za aktualne, dobrze wpisujące się w obecne trendy naukowo-badawcze w technologii betonu.

Teza pracy podana jest w formie trzyczęściowej. **Część pierwsza tezy** jest oczywista, dotyczy każdej odmiany betonu – nie tylko samozagęszczalnego, a jej ogólnikowość sprawia, że stanowi ona aksjomat, będący podstawą jakichkolwiek analiz LCA w technologii betonu. Pominięcie tego elementu w formułowaniu tez rozprawy byłoby zasadne tym bardziej, że autor nie dowodzi jej explicite a wręcz przyjmuje jej słuszność a priori. **Część druga tezy** stanowi w moim przekonaniu główne osiągnięcie badawcze rozprawy, jakim jest opracowanie i zweryfikowanie metody pobierania reprezentatywnej próbki do badań skutków karbonatyzacji betonu z wykorzystaniem technik TG/DTA i FTIR. Sformułowanie tezy nr 2 pozostawia sporo do życzenia ale jej sens merytoryczny jest ważny i znaczący, tak poznawczo jak i praktycznie. Teza jest zogniskowana na stronie technicznej

zagadnienia, natomiast nieco w niej brakuje odniesienia się do fizykochemicznych powodów większej dokładności proponowanej metody. W ten sposób teza nr 2 nieco traci na wartości naukowej. **Część trzecia tezy** dotyczy porównania śladu węglowego obliczonego według procedur normowych i wyznaczonego eksperymentalnie w odniesieniu do trzech znacząco odmiennych betonów samozagęszczalnych. Postawiona hipoteza de facto stanowi polemikę badacza-doświadczalnika z postanowieniami normy europejskiej, ponownie bez głębszej analizy przypuszczalnych powodów rozbieżności.

Genezę, sens i sposób realizacji postawionych celów autor motywuje w obszernej (ok. 60-stronicowej) części studialnej, która wykazuje ogólną wiedzę teoretyczną kandydata w zakresie koniecznym do realizacji rozprawy.

Temat rozprawy można uznać za interesujący i przydatny, a sformułowane cele oceniam jako zawierające elementy naukowo-badawcze odpowiednie na poziomie doktorskim.

2.2. Ocena wartości naukowej rozprawy

Na zawartość naukową rozprawy składają się dwa podstawowe elementy: badania laboratoryjne nad metodyką pobierania próbek do badań termogravimetrycznych i spektroskopowych składu betonu w różnych fazach karbonatyzacji oraz weryfikacja doświadczalna teoretycznej zdolności sekwestracyjnej betonu. Fakt, że analizy są prowadzone w odniesieniu do betonu samozagęszczalnego ma głównie znaczenie poznawcze na poziomie ogólnym, ponieważ autor swoich obserwacji nie wiąże z charakterystykami samozagęszczalności.

Moim zdaniem oba wskazane elementy mają pewną wartość naukową ale autor nie wykorzystał w pełni ani potencjału badawczego ani analitycznego jaki zawarty jest w obu trafnie sformułowanych problemach naukowych.

Kwestia sposobu przygotowania próbek z betonu do badań proporcji/zawartości wodorotlenku wapnia/węglanu wapnia na różnych głębokościach od powierzchni poddanej działaniu dwutlenku węgla jest kluczowa w kontekście wiarygodności wyników analiz DTA czy też spektroskopii w podczerwieni służących ocenie przebiegu karbonatyzacji. Niestety autor zbyt pobieżnie opisał własną autorską procedurę pobierania próbek (nazywanie jej żargonowo procedurą „próbkiowania” nie jest eleganckie w rozprawie doktorskiej). Skoro oawiana metodyka jest najważniejszym elementem pracy, zasługiwała ona na postać formalnej procedury – opisaną tak, aby czytelnik mógł w razie potrzeby odtworzyć ją i zastosować we własnych badaniach. Cytowana w rozprawie publikacja autora w renomowanym czasopiśmie *Construction and Building Materials* (172, 20181) zawiera także dość ogólnikowy opis metody, natomiast rozprawa jest miejscem, gdzie proceduralny i sformalizowany opis nowej metody powinien się być znaleźć. Wartość naukową analiz związanych z metodą badania nieco osłabia ogólnikowe odniesienie się do powodów przewagi proponowanej metody nad dotychczas stosowanymi. Istotą osiągnięcia naukowego jest przecież ustalenie wpływu udziału w badanej próbce materiału pochodzącego z ziaren kruszywa na wynik badania a nie wpływu

wykuwania próbki rylcem lub wiercenia jej koronką... Wiarygodność wniosków jest także nieco osłabiona z uwagi na bardzo mało liczne zbiory próbek z każdego betonu, uniemożliwiające analizy statystyczne, na co zresztą zwraca uwagę sam autor. Zrozumiałe są ograniczenia wynikające z trudności badań, dostępności aparatury i czasu realizacji, ale w takiej sytuacji może jednak warto było się ograniczyć do jednego składu betonu na rzecz liczniejszej próby, przydatnej do analiz statystycznych? Pomimo tych zastrzeżeń wnioski autora w zakresie metodyki badawczej stanowią wartościowe osiągnięcie rozprawy.

Problem doświadczalnej weryfikacji wzorów normowych na obliczanie śladu węglowego betonów jest niezwykle aktualny i przyszłościowo wpisuje się w zasady zrównoważonego rozwoju w technologii betonu. Norma PN-EN 16757 jest dokumentem nowym, w Polsce ustanowionym w 2017 roku i praktyka jej stosowania jest jeszcze niewielka. Zawiera ona teoretyczne wzory na obliczanie potencjału sekwestracyjnego betonu. Literatura światowa wskazuje, że nawet w przypadku betonów z cementem portlandzkim faktyczny potencjał sekwestracji betonu może być znacznie niższy niż teoretyczny. Fakt obecności w betonie dodatków pucolanowych czy też materiałów o utajonych właściwościach hydraulicznych, praktycznie nieodzownych w betonach samozagęszczalnych, nie jest uwzględniony w normowych wzorach. Wpływa to także dodatkowo na potencjał sekwestracyjny. Tak więc podjęcie przez autora próby weryfikacji rzeczywistej zdolności sekwestracyjnej betonu samozagęszczalnego ma duży potencjał naukowy. Rozbieżności pomiędzy normą a wynikami badań, które uzyskał autor, są bardzo duże i powinny stanowić punkt wyjścia do dalszych badań nad istotą stwierdzonego zjawiska. W pracy brakuje chociażby próby wyjaśnienia tego fenomenu co niekorzystnie rzutuje na ocenę wartości naukowej tej części pracy. Ponownie istotne zastrzeżenie budzi mała populacja badanych próbek.

Główne osiągnięcia Autora rozprawy w moim przekonaniu to:

- zaproponowanie i zweryfikowanie autorskiej metody pobierania próbek do fizykochemicznych badań skutków karbonatyzacji metodami TG/DTA i FTIR,
- oszacowanie rzeczywistej maksymalnej sekwestracji CO₂ przez betony samozagęszczalne na poziomie 6-8 razy mniejszym niż wartości obliczone według teoretycznych wzorów normowych.

3. Uwagi krytyczne do pracy

Uwagi merytoryczne

Uwagi ogólne

Lektura pracy skłoniła mnie do kilku krytycznych refleksji natury ogólnej, które jednak tylko w pewnym stopniu rzutują na końcową ocenę rozprawy:

- zamierzenie badawcze autora ma znaczący potencjał naukowy, natomiast sposób jego realizacji, a zwłaszcza wnioskowanie skupione jest na obserwacji efektów bez głębszej analizy przyczyn, w tym zjawisk i mechanizmów odpowiadających za – nie zawsze oczywiste –

zaobserwowane efekty; Taki sposób wykonywania prac badawczych jest częsty w przypadku doktoratów realizowanych przez inżynierów – praktyków ale pozostawia pewien niedosyt,

- zasadniczym mankamentem pracy jest brak przejrzystego programu badań z wyodrębnieniem kolejnych ich etapów i związków przyczynowo-skutkowych między nimi; opis w rozdz. 3.1 nie jest klarowny i nie ułatwia śledzenia wywodów zawartych w kolejnych rozdziałach – dobrym rozwiązaniem byłoby przedstawienie całości programu w formie sekwencyjnej w schemacie blokowym lub tablicy,

- istotną usterką pracy jest – wspomniany już wcześniej w tej recenzji - brak precyzyjnie opisaną autorskiej procedury przygotowania próbek, którą należałoby uznać za najważniejszy dorobek rozprawy; brak jest zdjęć i rysunków ilustrujących metodę omówioną na str. 97, opisu narzędzi itp. oraz precyzyjnej procedury przygotowania próbki,

- badania przeprowadzone w ramach rozprawy ograniczone są do bardzo mało licznych zbiorów próbek, w tym wręcz pojedynczych wyników oznaczeń; wnioski z badań nie są oparte o statystyczną analizę wyników a zatem mogą mieć jedynie charakter wstępnych hipotez do dalszej weryfikacji – autor wspomina o tym w pracy co dobrze świadczy o Jego rzetelności badawczej, ale fakt braku statystycznych potwierdzeń obserwowanych prawidłowości obniża ocenę rozprawy.

Uwagi szczegółowe

Uwagi szczegółowe zostaną przedstawione w kolejności pojawiania się w pracy:

- str. 14 – „proces karbonatyzacji jest strumieniem odwrotnym CO₂” – duży skrót myślowy i nie całkiem trafny, ponieważ proces nie jest strumieniem tylko powoduje częściowe odwrócenie kierunku strumienia CO₂ w stosunku do fazy produkcji i wbudowania,

- str. 41 – „doszczelnienie mieszanki” budzi opory jako duży skrót myślowy, natomiast dyskusyjne jest czy dodatki do SCC zawsze i wszystkie zwiększają odporność na korozję,

- str. 56 – „jednostką funkcyjną była całkowita ilość betonu potrzebna do zapewnienia 1 MPa wytrzymałości w okresie 1 roku” – zapis kompletnie niezrozumiały – co ma ilość betonu do jego wytrzymałości? Jaki to ma związek z okresem 1 roku?

- str. 62 – „proces karbonatyzacji przyspiesza, gdy zwiększa się powierzchnia elementów betonowych” - zwiększa się powierzchnia, na którą działa CO₂ ale szybkość procesu pozostaje stała – chyba, że autor ma na myśli ułatwienie dyfuzji przez powierzchnię przełamu w stosunku do dyfuzji przez powierzchnię zewnętrzną elementu betonowego – ale i to nie przyspiesza procesu a jedynie skraca okres jego inicjacji

- str. 80 – do analiz DTA czy FTIR wielkość próbki wynosi kilka - kilkadziesiąt miligramów (mg) a nie mikrogramów (µg)

- str. 80 – przebiegi karbonatyzacji betonu i zaczynu trudno jest ze sobą ściśle powiązać z uwagi na rolę strefy przejściowej zaczynu – kruszywo; badania na zaczynach mogą natomiast służyć do określania wpływu modyfikacji materiałowych zaczynu (domieszkami, dodatkami) na przebieg procesu karbonatyzacji

- str. 86-87 – zwykle badania w skali laboratoryjnej prowadzi się na wysuszonych kruszywach w celu wyeliminowania dodatkowego czynnika niepewności, ale poprawna korekta składów z uwagi na wilgotność wszystkich frakcji kruszywa zmniejsza takie ryzyko; analizując tablice 25 – 27 trudno jest zrozumieć ideę przeprowadzonej korekty (o ile wilgotności podane w tablicy 24 dotyczą wszystkich trzech składów z tablicy 20) - moim zdaniem poprawnie wykonana jest korekta jedynie w tabl. 27.
- str. 92 nad zdjęciem - czy autor sugeruje, że beton po etapie rozbiórki trafia zwykle do komory karbonatyzacyjnej? Jeśli nie – to o co chodzi w tym stwierdzeniu?
- str. 93 - stosowanie 10% roztworu fenoloftaleiny jest niekonwencjonalne i w dodatku niezgodne z przytoczoną normą PN –EN 13295 – jak autor wyjaśni taką praktykę przyjętą w badaniach?
- str. 94 tab. 32 i zdj. 7 – widoczne są na zdjęciu kawałki (1/4? 1/8?) próbek – w jakim celu zastosowano taką praktykę? Jaką przyjęto metodę pomiaru głębokości i z jaką dokładnością? – przytoczona norma dość precyzyjnie to podaje ale sposób prezentacji wyników w tab. 32 nie odpowiada tym wymaganiom
- str. 97 – „...i pobranie badanego materiału jedynie z matrycy cementowej” – chyba nie, przecież nie odseparowano ziaren kruszywa drobnego? To ma konsekwencje w badaniach; czy sprawdzono ewentualną zawartość ziaren wapiennych w piasku?
- str. 97 – 106 – pojawiają się dwa pojęcia: próbki z powierzchni i próbki z głębokości od 0 do 5 mm – nie jest jasne co oznaczają próbki z powierzchni (zwykle warstwa ok. 0,5 mm?) - trudno spodziewać się aby warstwa powierzchniowa i warstwa uśredniona z przestrzeni 0-5 mm będą podobne pod względem mikrostruktury a więc i efektu karbonatyzacji – czy to nie wpływa na wnioskowanie?
- str. 116 rys. 28 – co oznaczają wartości transmitancji większe niż linia bazowa (próbka odniesienia)?
- str. 118 tab. 34 – kolumna druga „zawartość CO₂ [%]” – procent czego? Wydaje się, że jest to ubytek masy próbki w określonej temperaturze – próbka nie zawiera przecież dwutlenku węgla... szkoda, że nie podano wzoru, który posłużył do obliczenia wartości podanych w ostatniej kolumnie tablicy 34; ponadto milcząco założono, że cały węglan wapnia w próbce pochodził z karbonatyzacji portlandytu – warto było potwierdzić to badaniami piasku i dodatków mineralnych i wykazaniem, że nie zawierały one składników węglanowych
- str. 119 tab. 35 – ślady węglowe cementów z publikacji ITB 2010 są mocno dyskusyjne, publikacja Kuniczuk & Wcisło także zawiera obliczenia wg wskaźników dotyczących produkcji, zaczerpniętych ze źródeł literaturowych – należało podać składowe do obliczenia śladu węglowego cementu – w tym założone zawartości klinkieru w poszczególnych cementach; różnice w tym zakresie między CEM II B i CEM III A mogą być znaczne (79% do 35%) lub przeciwnie – pomijalne (64% do 65%), co zasadniczo wpłynie na przeprowadzone w rozdz. 4 oszacowanie,
- str. 133 Literatura – spis literatury bez numeracji nie ułatwia korzystania z niego i rzadko jest stosowany w rozprawach doktorskich, ale układ alfabetyczny czyni go czytelnym dla odbiorcy.

Uwagi redakcyjne i językowe

Praca zawiera wiele niedoskonałości redakcyjnych, literówek i oczywistych pomyłek. Język pracy jest daleki od perfekcji, liczne są błędy składniowe i gramatyczne, a autor nadużywa skrótów myślowych, często wypaczających sens wypowiedzi. Poniżej zestawiono wybrane przykłady tego rodzaju usterek rozprawy, pomijając oczywiste literówki:

- str. 14 „dodatkami [...] *hydraulicznymi (żuźle)*” – żużel nie jest dodatkiem hydraulicznym a jedynie wykazuje utajone własności hydrauliczne,
- str. 14 „*konstrukcja jest przekruszona na gruz*” – konstrukcja (ustrój nośny) nie może być przekruszona – może to spotkać elementy lub po prostu beton porozbiórkowy,
- str. 18 „*najbardziej nowatorskie są właściwości reologiczne*” – nowatorski może być pomysł ale nie właściwości,
- str. 19 „*zredukowanie ilości pracowników*” – pracownicy są policzalni więc chodzi o ich liczbę,
- str. 39 „*stosunku wodno-spoinowego*” – raczej spoiwowego,
- str. 41 „*domieszki były badane w wielu wariantach wzajemnych kompozycji*” - ??
- str. 42 „*wpływ betonu na środowisko najczęściej mierzony jest przez pryzmat efektu...*” - ?
- str. 43 i następnie kilkakrotnie – „*tluczka szklana*” – poprawny termin to stłuczka,
- str. 44 „*głównym założeniem była redukcja cementu...*” – raczej redukcja zawartości,
- str. 61 ostatnie zdanie – niepoprawna składnia czyni zdanie niezrozumiałym,
- str. 64 objaśnienia do wzoru (6) – nie podano jednostek dotyczących zawartości C, ponadto zamiast słowa ilość należy użyć słowa zawartość,
- str. 65 „*kształt portlandytu*” – portlandyt powstaje w postaci kryształów o określonych kształtach,
- str. 67 „*alkaiczny*” – nie ma takiego słowa, poprawny termin to: alkaliczny,
- str. 70 cytowany autor nazywa się Łagosz (nie Ługosz), błąd powtórzony w Literaturze na str. 136,
- str. 81 „*próbki miały kształt [...] rozkruszonego gruzu...*” – kształt gruzu?
- str. 96 „*obracanie badanej pastylki miało [...] sprawdzić homogeniczność próbki*” - ?
- str. 97 „*Analiza pierwszych uzyskanych wyników po 56 dniach charakteryzowała się znacznym rozrzutem wyników, które nie korelowały z wynikami postępu karbonatyzacji wykazanej w metodzie wskaźnikowej*” – „*zdanie-koszmarek*” stanowiące dobry przykład na to, jak nieporadność językowa odbiera sens pisemnej wypowiedzi,
- str. 120 tablica 36 - redundancja ponieważ tablica stanowi wierne powtórzenie części tablicy 34,
- str. 126 „*...lokalny charakter tej metody. [...] uzyskanie wyniku reprezentatywnego zależy od liczby i rozmieszczenia próbkowania.*” – lokalny charakter metody nasuwa myśl o miejscu jej stosowania, natomiast próbkowanie jest czynnością i nie może być ani rozmieszczone ani policzone
- str. 127 „*...jako najbardziej optymalnie dobranych...*” – pleonazm stanowiący błąd leksykalny; pojęcie „*optymalnie*” zawiera w sobie informację o tym, że dobrano najlepiej więc nie można go stopniować

W rozprawie zdecydowanie zabrakło konsultacji z redaktorem językowym.

4. Wniosek końcowy

Do ocenianej rozprawy zgłosiłem szereg uwag krytycznych. Wążąc jednak wszystkie aspekty oceny rozprawy i uzyskanych wyników, uważam, że Doktorant wykazał zadowalającą wiedzę teoretyczną w dyscyplinie budownictwo, w stopniu wystarczającym opanował umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej i przedstawił rozwiązanie problemu naukowego. Na pozytywne podkreślenie zasługuje ponadto dorobek publikacyjny Doktoranta, obejmujący łącznie 15 różnego rodzaju publikacji, w tym z listy JCR.

W świetle powyższego wnoszę o dopuszczenie rozprawy „Sekwestracja dwutlenku węgla betonów samozagęszczalnych w procesie karbonatyzacji” autorstwa Pana mgr inż. Huberta Witkowskiego do publicznej obrony.

