

Opponensi vélemény
Dr. Rajkó Róbert
“Görbeillesztés nélküli komponensprofil-kinyerés az
analitikai kémiában”
című MTA doktori értekezéséről

Bevezető megjegyzések

Dr. Rajkó Róbert 1999-ben szerzett PhD fokozatot a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetemen vegyészmérnöki tudományokból, és 2008-ban habilitált gyógyszerészeti tudományokból a Szegedi Tudományegyetemen. 2010-től 2019-ig a Szegedi Tudományegyetemen, majd a Pécsi Tudományegyetemen dolgozott egyetemi tanárként. Pályája során számos sikeres alapkutatói projekt vezető kutatója és résztvevője volt, valamint intenzív és eredményes témavezetői tevékenységet folytatott.

A pályázó kutatási területe a kemometria, amely lényegében a kémiai folyamatokkal kapcsolatos mérések és a tanulmányozott mennyiségek/tulajdonságok közötti összefüggések feltárására irányul. Ehhez korszerű formális (matematikai, statisztikai, számítás- és adattudományi) eszközök alkalmazására és továbbfejlesztésére van szükség, tehát egy izgalmas interdiszciplináris területről van szó, ahol gyakran komoly kihívás a maximálisan releváns információtartalom kinyerése a megfigyelésekből. A terület fejlődését nagyban segíti az adattudomány mint önálló terület robbanásszerű fejlődése és a rendelkezésre álló számítási kapacitás folyamatos bővülése. Fordítva is megállapítható, hogy kémiai motivációjú problémafelvetésekből kiindulva új matematikai és számítástudományi eredmények szülehetnek, amelyek aztán más területeken is alkalmazhatók.

A disszertáció témaköre az ún. görbeillesztés nélküli módszerek analízise, fejlesztése és alkalmazása kémiai folyamatok vizsgálatához. Ez a megközelítés abban különbözik a „klasszikus” illesztési módszerektől, hogy nem szükséges konkrét parametrizált függvényt feltételezni az összefüggések leírásához, hanem egy tipikusan bilineáris adatmátrixot kell szinguláris érték felbontás (SVD) vagy főkomponens analízis (PCA) segítségével ortogonális komponensekre bontani. A komponensekből további számításokkal analitikusan meghatározhatók az érvényes megoldási tartományok.

A tárgyalt témakör tehát mindenképpen fontos és időszerű, hiszen a kidolgozott módszerek a klasszikus technikákkal együtt alkalmazva segítik a kutatók számára a kémiai

folyamatok megértését és a nagyobb pontosságú predikciók készítését. Az alkalmazások számos egyéb területet és iparágat érintenek, pl. a gyógyszeripart, a környezetvédelmi megfigyeléseket, az élelmiszertudományt vagy a szintetikus biológiát. Az adattudományok terén elért fejlődés pedig tovább növeli a kemometriai módszerek teljesítményét, ami mind a tudományos, mind pedig az ipari életben ösztönzi az innovációt és a további új felfedezéseket.

Formai észrevételek

A magyar nyelvű dolgozat összesen 117 oldalas, ebből a főszöveg 80 oldal terjedelmű. A bevezető részek (Bevezetés, Célkitűzések, Irodalmi áttekintés) után a szerző két részre bontja saját tudományos hozzájárulásait: a 4. fejezetben döntően elméleti eredmények, az 5. fejezetben pedig az adatok gyakorlati kiértékelésére vonatkozó eredmények szerepelnek. A szerkesztés alapelve az, hogy az alfejezetekben a disszertáció alapjául szolgáló 20 publikáció néhány oldalas összefoglalásai találhatóak. Így eléggé diszjunktnak tűnnek az alfejezetek, és kissé hiányolom ezek összekapcsolását és általánosabb keretbe foglalását, amire egy MTA doktora disszertáció jó alkalmat kínálhatott volna. Ettől függetlenül a formátum és a szerkesztési munka igényes, az ábrák informatívak, elgépelést szinte egyáltalán nem találtam. A matematikai formulák jól értelmezhetők, a mátrixok és vektorok dimenzióinak következetes jelzése is segíti a megértést.

Az egyes fejezetekhez és tézisekhez tartozó tartalmi észrevételek

1-3. fejezetek (Bevezetés, Célkitűzések, Irodalmi áttekintés)

A rövid bevezetésben a szerző világosan definiálja a kemometria tárgykörét és annak kapcsolódását kémiai és matematikai-informatikai területekhez. Ezután ismertetésre kerülnek a célkitűzések és azok fő motivációi. Az irodalmi áttekintés véleményem szerint jól megírt rész, és a további megértés szempontjából igen hasznos: a fontos irodalmi előzmények összefoglalása mellett itt ismerteti a szerző a legfontosabb jelöléseket és az alkalmazott adatfelbontási eljárások alapjait. Egy kisebb formai észrevétel: több helyen említi a szerző, hogy Lawton és Sylvestre 1970-ben adott egy alapvető módszert görbefulbonásra, de az ehhez tartozó [20]-as publikáció az irodalomjegyzék szerint 1971-es.

4. fejezet

A fejezet témája görbefulbonási módszerek elméleti analízise és továbbfejlesztése. A bemutatott módszereknél közös pont a geometriai szemlélet és intuíció alkalmazása, amelynek segítségével a szerzőnek sikerült több alapvető tulajdonságot tisztázni, ill. új számitási módszereket bevezetnie. Ezen metódusok alkalmazásánál lényeges nehézség, hogy

a forgatási bizonytalanság miatt a megoldások rendszerint nem egyértelműek. Ez a gyakorlatban azt jelenti, hogy több fizibilis megoldás is ugyanolyan jól illeszkedhet a kísérleti adatokra, amelyek ráadásul teljesítik a megadott korlátozó feltételeket is. Emiatt különösen fontos a folyamatról rendelkezésre álló előzetes tudás kreatív alkalmazása az információfeldolgozás során.

A fejezet legfontosabb új tudományos eredményei véleményem szerint a következők: A szerző új módszert adott a megengedett megoldás-tartományok generálására a koncentráció, ill. spektrális térben. Megmutatta, hogy a Borgen-normák sikeresen alkalmazhatók az SMCR-alkalmazásokban. Kimutatta továbbá, hogy a minimálisan korlátozott SMCR módszer rotációs bizonytalansága (amelyet a megfelelő sáv maximális 1-re normalizált területe határoz meg) Borgen normafüggő. A szakirodalomban először egyértelmű kapcsolatot adott Lawton és Sylvestre megközelítése és Tauler módszere (valamint Maeder megközelítése) között. Megállapította, hogy a vizsgált összes megközelítés ekvivalens eredményt ad a zajmentes vagy mérsékelten zajos kétkomponensű rendszerek esetében. Egyenlőségi feltételek hatását vizsgálta a forgatási bizonytalanság csökkenésére. Az ismert spektrumnak megfelelő összes fizibilis megoldás kiszámításához egy új, szisztematikus rácskeresési módszert javasolt, amely részecske-raj optimalizáláson alapul. Új eljárást dolgozott ki egyenlőségi feltételekkel ellátott Borgen grafikonok előállítására. Nagyon fontos hozzájárulásnak tartom a 4.8 szakaszban található eredményt, miszerint a Manne-feltételek teljesülése nem garantálja a görbefelbontás egyértelműségét. Ezzel párhuzamosan adat-alapú feltételt adott a megoldások egyértelműségére. Továbbá minimális előzetes feltételezések alapján feltételt adott trilineáris felbontások egyértelműségére.

5. fejezet

Az 5. fejezet mérési adatok kiértékelésével kapcsolatos számítási megoldásokat, illetve a kidolgozott módszerek gyakorlati alkalmazását bemutató esettanulmányokat ismertet.

A fejezet fő eredményei a következők: A szerző rámutatott a regressziós túlillesztés elkerülésére alkalmazott hagyományos validációs módszerek problémáira. Ezek megoldására egy adat-alapú megközelítést javasolt, amely a modellben szereplő tagok statisztikai szignifikanciájának értékelésén alapul. A korábban kidolgozott geometriai megközelítést alkalmazva nyomonkövette a többváltozós görbefelbontásra alkalmazott MCR-ALS algoritmus konvergenciáját, és rámutatott, hogy az egyes lépésekben kapott megoldások kívül eshetnek az adatmátrix által meghatározott tartományon, amely akár negatív értékeket is eredményezhet az eredményül kapott profilokban. A problémát új korlátozás bevezetésével megoldotta, illetve javította az algoritmus konvergenciájának sebességét. Továbbfejlesztette a kemometriában alkalmazott PARAFAC és PARAFAC2 számítási módszereket nagy teljesítményű folyadékkromatográfiás-infravörös spektroszkópiai (HPLC-IR) mérések eluens-eliminációs problémájának megoldásához. Többváltozós görbefelbontási módszereknél bevezette a lokális rangvesztés fogalmát, és rámutatott, hogy a lokális rangfeltétel alkalmazása a forgatási bizonytalanság csökkentésére akár helytelen eredményekhez is vezethet. Új algoritmust dolgozott ki vizsgált anyag relatív koncentrációjának megha-

tározására ismeretlen keveréket tartalmazó mintában, amely realiztikus hibabecslést is lehetővé tesz.

Kérdések

1. Kérem, a számítási komplexitások összehasonlításával fejtse ki, miért hatékonyabb a 4.1 szakaszban leírt számítógépes geometriai megoldás mint a mások által alkalmazott lineáris programozáson alapuló megközelítés. Hogyan skálázódik ez a számítási előny az adathalmaz dimenziójának növekedésével?
2. 4.6 szakasz: Az adatok ismeretében tudunk előzetes becslést adni a fizibilis megoldások számára? Van rá (elméleti) garancia, hogy az alkalmazott SPSO algoritmus valóban megtalálja valamennyi fizibilis megoldást?
3. 5.2 szakasz: Hogyan befolyásolja a becslés minőségét az eredeti (módosítatlan) MCR-ALS algoritmusnál az engedélyezett iterációk száma? (Pl. több iterációt engedve javulhat-e a megoldás fizibilitása?)
4. A 7. fejezetben említi, hogy kinetikai példákat mutatott helytelen kémiai rendszer alkalmazására. Kérem, hogy ezt fejtse ki kissé részletesebben.

A publikációk értékelése

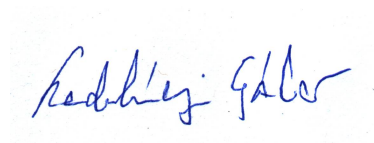
A téziseket 20 színvonalas folyóiratcikk támasztja alá, amelyek a szakterület vezető folyóirataiban (Analytica Chimica Acta, Journal of Chemometrics, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, Journal of Chromatography A, Analytical Chemistry stb.) jelentek meg. Ezek között 6 D1, 9 Q1 és 4 Q2 besorolású cikk van, melyek többsége első vagy utolsó szerzős, továbbá 6 cikk egyszerezős. Csak ezekre a cikkekre 725 független hivatkozás érkezett az MTMT adatai szerint. A szerző publikációs listájában még további több mint 30 impakt faktoros cikk és számos egyéb publikáció szerepel. Ez összességében kiváló publikációs és idézettségi teljesítmény, figyelembe véve, hogy a pályázó döntően elméleti és metodológiai területen dolgozik.

Összefoglaló vélemény és javaslat

Összefoglalva megállapítható, hogy Dr. Rajkó Róbert kiemelkedő új tudományos eredményeket ért el a kemometria és ezen belül a többváltozós görbefelbontási módszerek kutatása területén. Számos ponton tisztázta és lényegesen továbbfejlesztette az SMCR módszerek elméletét, és meggyőzően bemutatta eredményei alkalmazhatóságát. A pályázó eredményeit a szakterület vezető folyóirataiban publikálta, és azokra nagy számú független nemzetközi hivatkozást kapott. A disszertáció formai és tartalmi szempontból

egyenként megfelel az MTA doktori szabályzatában előírt követelményeknek. Az értekezésben szereplő téziseket elfogadom a szerző új tudományos eredményeinek. Az értekezésben összefoglalt eredményeket elegendőnek tartom az MTA doktori cím megszerzéséhez. Mindezek alapján javaslom a nyilvános vita kitűzését és Dr. Rajkó Róbert részére az MTA doktora cím odaítélését.

2024. március 28.



Dr. Szederkényi Gábor
az MTA doktora