

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## Schlussbericht

Verbund: 05M2020 - ML-MORE

Zuwendungsempfänger: Technische Universität Darmstadt  
Projektleitung: Prof. Dr. Martin Votsmeier  
E-Mail: martin.votsmeier@tc1.tu-darmstadt.de  
Förderkennzeichen: 05M20RDA  
Förderzeitraum: 01.04.2020 - 31.12.2023  
Zuwendung: 168.520,88 €  
Projektträger: Projektträger DESY  
  
Zusätzlicher Kontakt: sekretariat@tc1.tu-darmstadt.de  
Zusätzlicher Name: Christine Gabler

Genutzte Großgeräte:	Labor	Gerät	Experiment
Diplomarbeiten:	0		
Dissertationen:	1		
Habilitationen:	0		
Referierte Publikationen:	8		
Andere Veröffentlichungen:	9		
Patente:	0		
Bachelorarbeiten:	0		
Masterarbeiten:	2		
Staatsexamen:	0		

Dieser Bericht wurde beim Projektträger über einen individuellen Online-Zugang vom Projektleiter eingereicht und am 09.07.2024 09:58 für eine Veröffentlichung freigegeben.

# Schlussbericht

**Zuwendungsempfänger:** Technische Universität Darmstadt (Förderkennzeichen: 05M20RDA)

**Projektleitung:** Prof. Dr. Martin Votsmeier

**Verbund:**

*Wissenschaftliche Projektpartner:*

- Universität Münster, Prof. Dr. Mario Ohlberger, Institut für Analysis und Numerik, Einsteinstraße 62, 48149 Münster
- Universität Stuttgart, Prof. Dr. Bernard Haasdonk, Institut für Angewandte Analysis und Numerische Simulation, Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart
- Fraunhofer-Institut für Techno- und Wirtschaftsmathematik, Prof. Dr. Oleg Iliev und Dr. Konrad Steiner, Abteilung Strömungs- und Materialsimulation, Fraunhofer-Platz 1, 67663 Kaiserslautern
- TU Darmstadt und Umicore AG & Co. KG, Prof. Dr. Martin Votsmeier, Peter-Grünberg-Straße 8, 64287 Darmstadt

*Industriepartner:*

- Umicore AG & Co. KG, Dr. Manuel Gensch, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau

**Thema:** ML-MORE: Maschinelles Lernen und Modellordnungsreduktion zur Vorhersage der Effizienz katalytischer Filter.

## Zusammenfassung

Das Verbundprojekt ML-MORE adressierte die Herausforderungen der Modellierung und Simulation reaktiven Stofftransports in porösen Medien, welche die Basis vieler industrieller Prozesse bilden. Dazu gehören beispielsweise katalytische Filter für Abgase, die in diesem Projekt durch die Kooperation mit Umicore im Fokus standen, sowie Brennstoffzellen und photovoltaische Zellen. Solche Simulationen können große Datenmengen generieren, wodurch ein effizientes Design optimiert werden kann. Gleichzeitig sind diese Simulationen jedoch auch zeitintensiv und können von einer Vielzahl von Parametern abhängen. Darüber hinaus bleibt das Potenzial, vorhandene Experimentaldaten wiederzuverwerten, in bisherigen Herangehensweisen ungenutzt.

Um diesen Engpass zu beseitigen, wurde in diesem Projekt eine integrative Plattform entwickelt, die auf modernen datenbasierten Methoden des maschinellen Lernens (ML) basiert. Das Ziel war es, zuverlässige und schnelle prädiktive Modelle für die Vorhersage chemischer Konversionsraten bereitzustellen. Hierfür waren mehrere methodische Komponenten erforderlich, darunter klassische Simulationsverfahren auf der Porenskala, Modellordnungsreduktion sowie maschinelles Lernen. Aufgrund

der hohen Kosten klassischer Simulationsverfahren wurden zunächst Modellordnungsreduktionsmethoden entwickelt, um reduzierte Modelle für den betrachteten instationären reaktiven Transport zu erstellen. Damit lassen sich große Mengen an Trainingsdaten generieren, die dann im Training für Methoden des maschinellen Lernens verwendet werden können. Hierbei fokussierten wir uns vor allem auf mehrschichtige Kernel-basierte Lernverfahren. Insgesamt gelang es in diesem Forschungsprojekt, sämtliche dieser Methoden in einem prädiktiven hierarchischen ML-Werkzeug (RB-ML-ROM Framework) zu integrieren. Dieses Werkzeug unterstützt Unternehmen bei der Entwicklung neuartiger katalytischer Filter und kann auf viele weitere ähnliche Prozesse übertragen werden kann.

Das Gesamtvorhaben war in fünf Arbeitspakete strukturiert, die den jeweiligen Projektpartnern zugeordnet waren. Diese sind [AP 1] Modellreduktion, UMS (Ohlberger); [AP 2] Maschinelles Lernen, USt (Haasdonk); [AP 3] Numerische Simulation und Softwareintegration, ITWM (Iliev/Steiner); [AP 4] Datenaufbereitung und Modellierung chemischer Reaktionen, TUD (Votsmeier); [AP 5] CT-Bilder und Materialdaten, Industriepartner UMICORE (Gieshoff).

Nachfolgend ist die Verbundstruktur der beteiligten Projektpartner im Projekt ML-MORE sowie deren Interaktion dargestellt (Abb. 1). Die Projektkoordination erfolgte durch die UMS (Ohlberger).

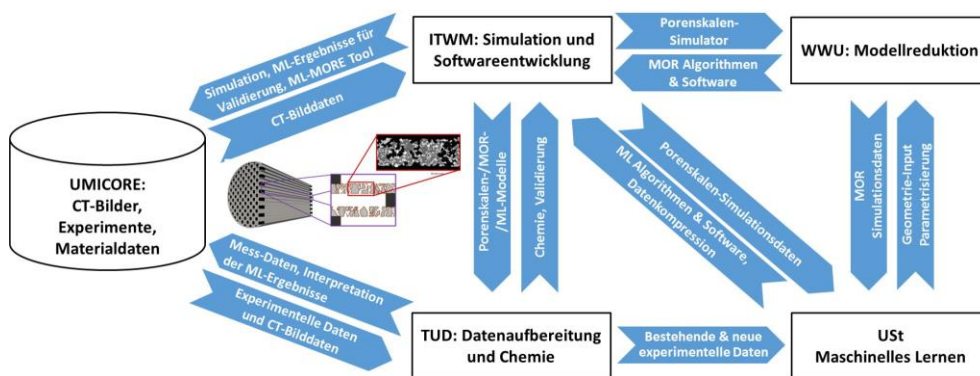


Abbildung 1 Verbundstruktur.

Im Teilprojekt „Datenaufbereitung und Modellierung chemischer Reaktionen“ (AP4, TUDa (Votsmeier)) wurde der in ML-MORE von den mathematischen Partnern entwickelte Simulationscode auf die Optimierung von katalytisch beschichtete Filter angewendet. Dazu wurden Modelle für den Gesamtfilter entwickelt, die es erlauben, aus dem von den Verbundpartnern bereitgestellten Modellen für die Strömung in der Filterwand auf das Verhalten des gesamten Filters zu schließen. Mithilfe des in ML-MORE entwickelten Simulators wurden erstmals Simulationen durchgeführt, die auch die  $\mu$ -Poren innerhalb der Katalysatordomänen eines beschichteten Filters auflösen. Diese Simulationen bieten dem Industriepartner Umicore wichtige Erkenntnisse zur Optimierung der beschichteten Filter. Zusammen mit dem Projektpartner Uni Stuttgart wurde eine neue Maschinenlernmethode zur effizienten Abbildung komplexer Reaktionssysteme entwickelt. Schließlich wurde basierend auf den Ergebnissen des Projekts ein vereinfachtes Simulationstool für katalytisch beschichtete Partikelfilter erstellt und zusammen mit dem Industriepartnerpartner Umicore zur Optimierung des Filterdesigns angewendet.

# Bericht

## 1 Aufgabenstellung und Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Der reaktive Stofftransport in porösen Medien in Verbindung mit katalytischen Reaktionen ist die Grundlage für viele industrielle Prozesse und Anlagen, wie z.B. Brennstoffzellen, Photovoltaikzellen, katalytische Filter für Abgase und katalytische Brenner. Darüber hinaus haben katalytische Membranreaktoren ein großes Potenzial in den Bereichen Biotechnologie, Pharmazie, petrochemische Anlagen, Energie und Umweltsanwendungen. Die Effizienz der Umwandlung hängt in all diesen Fällen ab vom Zusammenspiel zwischen Konvektion, Diffusion und Reaktion sowie der Morphologie des porösen Mediums und der darin vorhandenen Katalysatorverteilung. Die übliche Art der Herstellung und Prüfung von Prototypen ist teuer und zeitaufwendig. Die Modellierung und Simulation der Prozesse auf der Porenskala kann bei der Optimierung des Designs von katalytischen Komponenten und der Prozessführung helfen, ist jedoch derzeit dadurch eingeschränkt, dass solche Simulationen zu großen Datenmengen führen (jede Simulation besteht aus Hunderten von TB), zeitaufwändig sind und die betrachteten Prozesse von einer großen Anzahl von Parametern abhängen. Außerdem werden auf diese Weise die im Laufe der Jahre gesammelten Versuchsdaten nicht wiederverwendet. Die Entwicklung von Lösungsansätzen mit diesen großen Datenmengen, sowie für die Vorhersage der chemischen Konversionsrate mittels moderner datenbasierter Methoden ist essenziell, um zu schnellen, zuverlässigen prädiktiven Modellen zu gelangen. Von all diesen Prozessen und Anlagen, die eine ähnliche mathematische Behandlung erfordern, haben wir uns in diesem Projekt auf das Design von katalytischen Filtern zur Abgasbehandlung konzentriert. Das Ziel dieses Projektes war es, die verschiedenen Daten aus der aufgelösten Porenskalensimulation auf 3D Voxelgeometrien und von Simulationsergebnissen reduzierter Modelle zusammenzuführen und sie in der Trainingsphase von Algorithmen des Maschinellen Lernens (ML) zu verschmelzen, mit dem Ziel, ein Werkzeug zur Vorhersage der Konversionsrate für die kritischen Spezies in Abhängigkeit von Mikrostruktur, Prozessparametern und Katalysatorzusammensetzung zu entwickeln. Hierzu waren alle beteiligten Methodenklassen erforderlich. Voll aufgelöste Simulationen sind zu teuer, um einen umfangreichen Satz an Trainingsdaten zu generieren. Daher war die Modellordnungsreduktion (MOR) entscheidend, um ausreichend viele Trainingsdaten zu simulieren. MOR-Modelle sind bereits prädiktiv, erfordern jedoch immer noch Zeitintegration und erst mit ML-Modellen sind schnelle Vorhersagen zu erwarten, wie sie in einem interaktiven Analyse-Werkzeug erforderlich sind. Der am ITWM existierende Porenskalensimulator PoreChem wurde in Zusammenarbeit mit USt um einen Datenkompressionsalgorithmus erweitert, um die Verarbeitung großer Daten zu ermöglichen, die bei instationären chemischen Berechnungen auf großen Probengeometrien entstehen. Von der WWU werden reduzierte Modelle für den betrachteten instationären Transport mitsamt den Reaktionen entwickelt und in den Simulator integriert, um schnellere Simulationen zu ermöglichen und so dazu beizutragen, den Trainingsdatensatz für die Lernalgorithmen zu erweitern. Mehrschichtige kernbasierte Lernverfahren werden von USt entwickelt, um die heterogenen Daten zu kalibrieren und nichtlineare prädiktive Modelle zur Effizienzvorhersage zu entwickeln. Hierbei mussten große Daten, sowohl hinsichtlich Dimensionalität als auch hinsichtlich Sample-Anzahl, behandelt werden, was Datenkompression und Parallelisierung des Trainings erfordert. An der TUD wurden die entwickelten Software-Werkzeuge eingesetzt, um ein besseres Verständnis der Abhängigkeit des katalytischen Umsatzes und der Filtrationseffizienz von der Porenskalengeometrie und den Prozessparametern zu gewinnen. Das Hauptziel des Projekts war es, alle oben genannten Entwicklungen in einem prädiktiven ML-Tool zu integrieren, das die Industrie bei der Entwicklung neuer katalytischer Filter unterstützt und auf viele andere vergleichbare Prozesse übertragbar ist. Dies wird durch Bereitstellung der entwickelten Lernverfahren und MOR-Algorithmen als open-source Programmpakete gewährleistet.

## 2 Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Reduzierte Ordnungsmodelle (ROM) für gekoppelte Konvektions-Diffusions-Reaktions-Systeme waren in der Literatur nicht verfügbar, und die Entwicklung eines solchen ROM innerhalb dieses Projekts hat den Stand der Technik in diesem Bereich deutlich verbessert. Verfügbare 3D-Porenskalensimulatoren für reaktive Strömungen in porösen Medien waren entweder in der Lage, kleine akademische Probleme zu lösen, oder mit vereinfachter Chemie umzugehen, oder umgekehrt die Chemie richtig zu behandeln, aber dafür nicht die porenskalierten Domänen zu berücksichtigen. Darüber hinaus waren die meisten von ihnen in Verbindung mit katalytischen Filtern auf stationäre Strömungen beschränkt, was es unmöglich machte, die Effizienz der Filter unter Betriebsbedingungen zu bewerten. Die Erweiterung des Softwaretools PoreChem zur Lösung von Problemen mit komplexer Chemie auf großen CT-Bildern wird die Fähigkeit von Forschern und Praktikern, Computersimulationen durchzuführen, auf ein neues Niveau heben. Trotz der aktiven Forschung im Bereich des maschinellen Lernens in den letzten Jahren gab es keine ML-Algorithmen zur Vorhersage der Konversionsrate oder anderer Outputgrößen für reaktive Strömung in porösen Medien mit katalytischen Reaktionen. Die zu entwickelnden mehrschichtigen "greedy" Kernmethoden existierten noch nicht und stellen eine neue Klasse von Lern-Verfahren dar, welche Effizienz speziell auf hochdimensionalen Problemen versprechen.

Modellordnungsreduktion für parametrisierte Systeme (MOR) ist ein sehr aktives Forschungsgebiet, welches in der vergangenen Dekade eine enorme Entwicklung erfahren hat. Ein konkreter Modellreduktionsansatz ist die Reduzierte Basis (RB) Methode. Für zeitabhängige parametrisierte Systeme hat sich die POD-Greedy Methode inzwischen als "gold standard" etabliert. Da die RB Methode auf einer effizienten sogenannten offline/online Zerlegung beruht, muss sie für nicht separierbare parametrische Probleme mit einer Interpolationsmethode kombiniert werden. Dies ist insbesondere bei nichtlinearen Problemen der Fall. Hier hat sich die Empirische Interpolationsmethode (EIM) mit ihren zahlreichen Varianten als Schlüsseltechnologie etabliert. Während RB Methoden inzwischen z.B. für skalare koerzive Probleme sowohl numerisch als auch theoretisch etabliert sind, gibt es immer noch große Herausforderungen bei Problemen, die durch einen relativ langsamen Abfall der Kolmogorov N-Weite gekennzeichnet sind. Hierzu gehören insbesondere Mehrskalprobleme und advektions-dominierte Transport-Reaktionssysteme, wie sie in diesem Projekt betrachtet werden. Vielversprechende Ansätze für solche Probleme sind lokalisierte Modellreduktionsmethoden oder generisch nicht-lineare Ansätze, wie z.B. die sogenannte Method of Freezing und verwandte Methoden. Einige dieser Methoden wurden bereits erfolgreich in dem BMBF-Projekt MULTIBAT (gemeinsam von Ohlberger, Iliev u.a.) zur effizienten Simulation von Batterien eingesetzt. Mit unserer Modellreduktionssoftware *pyMOR* bauen wir in diesem Projekt auf ein etabliertes Software-Framework auf, das die prozedurale Anbindung an bestehende Lösungsbibliotheken für partielle Differentialgleichungen erlaubt.

## 3 Planung und Ablauf des Vorhabens sowie Kooperation mit Dritten

Das Hauptziel von ML-MORE war die Entwicklung eines schnellen prädiktiven Analysewerkzeugs, das die Industrie bei der Entwicklung neuer katalytischer Filter unterstützt und auf viele andere vergleichbare Prozesse übertragbar ist. Das Analysewerkzeug wird durch ML aufgebaut, wobei sowohl auf experimentelle Trainingsdaten als auch auf simulierte Trainingsdaten zurückgegriffen wird. Um ausreichend viele Trainingspunkte für das ML zu erhalten, wurden neue Modellreduktionsverfahren entwickelt, welche wesentlich schneller sind und damit mehr Samples produzieren können als das volle Porenskalen-Modell. Das Arbeitsprogramm war in fünf Arbeitspakete gegliedert, die eng ineinander greifen:

AP 1:	Modellreduktion	<b>UMS (Ohlberger)</b>
AP 2:	Maschinelles Lernen	<b>USt (Haasdonk)</b>
AP 3:	Numerische Simulation und Softwareintegration	<b>ITWM (Iliev/Steiner)</b>
AP 4:	Datenaufbereitung und Modellierung chemischer Reaktionen	<b>TUD (Votsmeier)</b>
AP 5:	CT-Bilder und Materialdaten	<b>UMICORE (Gieshoff)</b>

Die Rolle der TU Darmstadt bestand darin Domänenwissen auf dem Gebiet der Modellierung katalytischer Reaktoren, insbesondere katalytisch beschichteter Filter in das Projekt einzubringen. Dazu wurden im von der TU Darmstadt verantworteten Arbeitspaket 4 kinetische Modelle entwickelt und tomographischen Daten typischer Partikelfilter zur Verfügung gestellt. Weiterhin bestand eine wichtige Aufgabe der TU Darmstadt darin, die von den mathematischen Partnern im Rahmen von ML-MORE entwickelte Software zusammen mit dem Industriepartner Umicore in Betrieb zu nehmen und die praktische Anwendung der Software zu demonstrieren. Im Arbeitspaket 4 waren ursprünglich vier Arbeitspakete vorgesehen. Die in diesen Arbeitspaketen erzielten Ergebnisse werden im Folgenden dargestellt. Zu Beginn des Projekts hat sich herausgestellt, dass es vorteilhaft ist, die zur Beschreibung der komplexen Oberflächenchemie verwendeten Reaktionsmechanismen auch als per Maschinenlernen erstellte Surrogatmodelle zur Verfügung zu stellen. Dieses zusätzliche Aufgabenpaket wurde von der TU Darmstadt gemeinsam mit dem Projektpartner Uni Stuttgart bearbeitet. Die in Darmstadt erzielten Ergebnisse werden im Folgenden als Arbeitspaket 4.0. dokumentiert. Als Anwendungsbeispiel für die in ML-MORE entwickelten Methoden waren ursprünglich katalytisch beschichtete Filter für Diesel- (AP 4.3) und Benzinmotoren (AP 4.4) vorgesehen. Aufgrund der schneller als ursprünglich absehbaren Einführung von Elektroantrieben im PKW Bereich war die Entwicklung von Benzin-Partikelfiltern für den Industriepartner Umicore weniger interessant. Deshalb wurden im Laufe des Projekts alle Arbeiten an der TU Darmstadt auf den Diesel-Partikelfilter AP4.3. fokussiert, der wegen der Anwendung in LKW noch für lange Zeit unverzichtbar sein wird. Für die methodischen Entwicklungen hat dies keinen Einfluss, weil die entwickelten Simulationsprogramme gleichermaßen für Benzin- und Dieselpartikelfilter anwendbar sind.

#### **AP 4.0 Bereitstellung der chemischen Kinetik als Surrogatmodelle basierend auf den in Stuttgart entwickelten Kernel-Methoden**

Die exakte Simulation reaktiver Strömungen heterogen katalysierter Systeme erfordert die Verwendung komplexer Reaktionsmechanismen. So auch die Beschreibung katalytisch beschichteter Partikelfilter. Ein Großteil des numerischen Aufwands entfällt dann auf die Berechnung der Oberflächenchemie. Das Ersetzen der chemischen Kinetik durch numerisch effiziente Surrogatmodelle birgt daher großes Potenzial, die Rechenzeiten drastisch zu reduzieren. Bei diesem Ansatz wird die Oberflächenchemie vor der eigentlichen Simulation für eine Vielzahl relevanter Reaktionsbedingungen gelöst. Anhand dieser Daten werden Surrogatmodelle erstellt. Einmal erstellt, kann ein Surrogatmodell die Laufzeit aller nachfolgenden Simulationen senken.

Vorarbeiten in Darmstadt hatten gezeigt, dass kinetische Modelle moderater Komplexität (bis 5 Gasphasenspezies) sehr genau durch Splineinterpolation abgebildet werden können. Der Anwendungsbereich der Splineinterpolation lässt sich durch spezielle Hermite Splines auf bis zu 7 Gasphasenspezies ausweiten.

Für komplexere Modelle versagt dieser Ansatz aufgrund des sogenannten Fluchs der Dimensionalität. Speicherbedarf und numerischer Aufwand wachsen exponentiell und werden untragbar. Eine erste in Darmstadt im Rahmen von ML-MORE durchgeführte Masterarbeit hat gezeigt, dass maschinelle Lernmethoden wie neuronale Netzwerke den bisher verwendeten Splinemethoden in Bezug auf Genauigkeit, Anzahl der benötigten Trainingsdaten und Interpolationsgeschwindigkeit überlegen sind

**[Masterthesis Doeppel 2020]**. Neuronale Netze ermöglichen damit die Anwendung komplexerer Oberflächenmechanismen. Die in Stuttgart von der Arbeitsgruppe Haasdonk im Rahmen von ML-MORE bearbeiteten Kernmethoden versprechen gegenüber üblichen Neuronalen Netzen signifikante Vorteile bei der Erstellung von Surrogatmodellen für komplexe oberflächenkinetische Modelle, insbesondere ein effizienteres Erstellen der Modelle aufgrund einer reduzierten Anzahl an Trainingsdaten sowie die besser ausgearbeiteten theoretischen Grundlagen, die zu verbesserten Garantien hinsichtlich der Modellqualität führen.

Es wurde deshalb innerhalb des ML-MORE Konsortiums beschlossen, die kinetischen Modelle der TU Darmstadt zusätzlich zur Beschreibung über Ratenmodelle und kinetische Parameter auch als Surrogatmodelle basierend auf den in Stuttgart entwickelten Kernmethoden zur Verfügung zu stellen.

In einem ersten Schritt wurde die Verwendung Neuronaler Netze als Surrogatmodell für oberflächenkinetische Modelle in Darmstadt an einem überschaubaren Testbeispiel demonstriert **[Masterthesis Doeppel 2020]**. Hierzu wurde ein aus quantenchemischen Rechnungen abgeleitetes kinetisches Modell für die  $\text{NH}_3$  Oxidation von Ma und Schneider verwendet [5]. An diesem Beispiel zeigte sich, dass das Lernen der Raten insbesondere dann eine Herausforderung darstellt, wenn Gasphasenspezies sowohl als Edukt als auch Produkt fungieren. Dieses Problem wurde auch schon bei Verwendung von Splines beobachtet **[Doeppel2022]**.

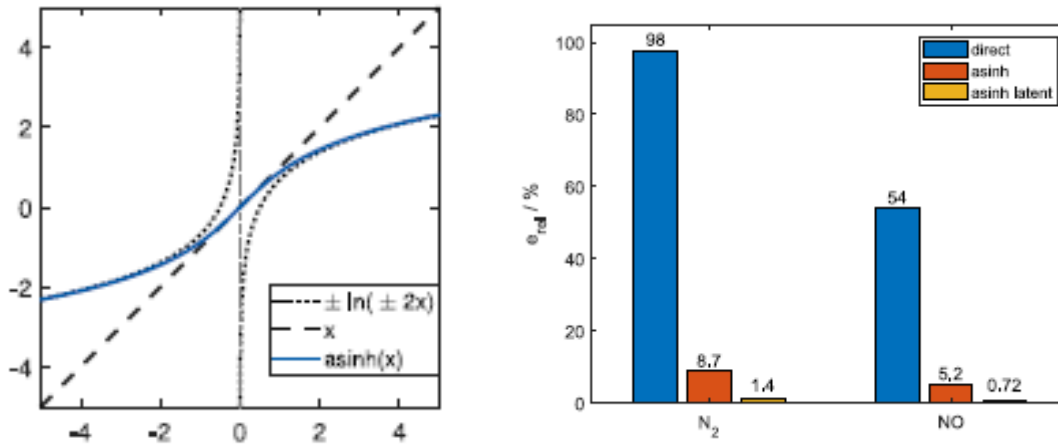
Im Rahmen von ML-MORE wurden drei Lösungsansätze entwickelt:

- 1.) Die Skalierung der Raten als  $\text{asinh}(r)$
- 2.) Das Lernen der Beiträge einzelner geschwindigkeitskontrollierende Elementarreaktionen
- 3.) Neuronale Netzwerke mit integriertem stochiometrischen und thermodynamischen Vorwissen, sog. Global Reaction Neural Networks

Alle drei Ansätze wurden zunächst in Darmstadt weiterverfolgt. Die Ergebnisse werden im Folgenden dargestellt. Für die Zwecke von ML-MORE hat sich letztlich der Ansatz 2.) als am geeignetsten herausgestellt. Dieser Ansatz wurde deshalb an die Uni Stuttgart übertragen und mit den dort entwickelten Kernmethoden kombiniert.

#### *4.1.1 Effiziente Surrogatmodelle durch Skalierung der Reaktionsraten als $\text{asinh}(r)$*

Das Lernen chemischer Reaktionsraten hat sich vor allem dann als schwierig erwiesen, wenn für einzelne Spezies abhängig von den Reaktionsbedingungen Raten mit wechselnden Vorzeichen erhalten werden. Eine erste im Rahmen von ML-MORE erarbeitete Lösung ist die Skalierung der Reaktionsraten als  $\text{asinh}(r)$ . Als besonders vorteilhaft hat es sich dabei herausgestellt, die Skalierung latent innerhalb eines neuronalen Netzes durchzuführen. Ergebnisse wurden im Detail in einer Publikation dargestellt **[Doeppel2023]**.



**Abbildung 1: Skalierung der Raten als  $\text{asinh}(r)$**

Links: Plot der  $\text{asinh}$  Funktion, die sich für große positive und negative Werte logarithmisch verhält, nahe des Ursprungs aber linear verläuft.

Rechts: Vorhersagefehler kleiner Neuronaler Netze mit 320 anpassbaren Parametern in einer verdeckten Schicht bei der Modellierung von  $\text{N}_2$  und  $\text{NO}$  Quelltermen. Die direkte Modellierung erzielt keine brauchbaren Ergebnisse. Die Transformation der Daten mit der  $\text{asinh}$  Funktion reduziert den Fehler etwa um Faktor zehn. Wird die gleiche Transformation in das Neuronale Netz eingebettet (latente Variante), reduziert sich der Fehler nochmals deutlich, sodass anwendungsreife Modelle mit relativen Fehlern um 1 % erhalten werden.

#### 4.1.2 Effiziente Surrogatmodelle durch maschinelles Lernen der Raten der ratenbestimmenden Elementarreaktionen

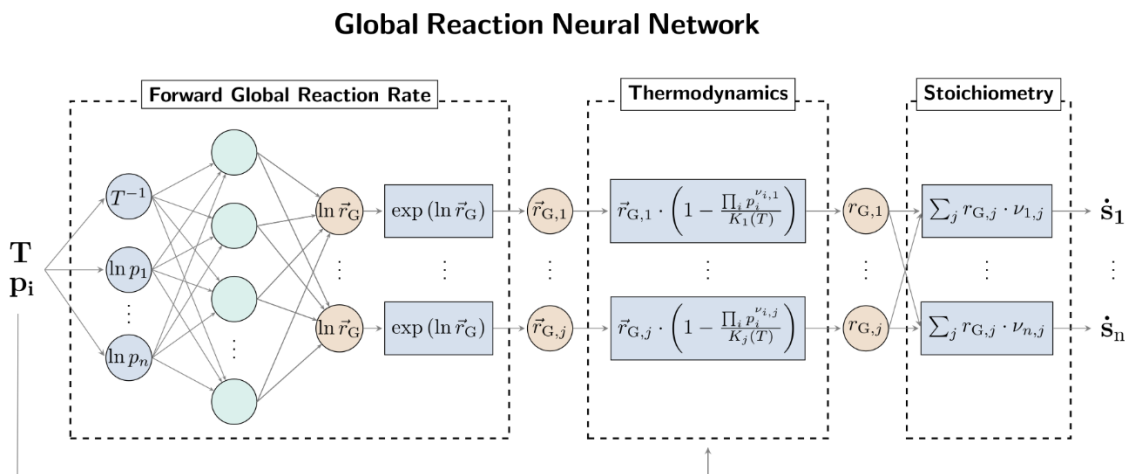
Reaktionsraten einzelner Elementarreaktionen sind per Definition positiv. Probleme mit Raten wechselnder Vorzeichen lassen sich daher vermeiden wenn anstelle der effektiven Quellterme die Raten der einzelnen Elementarreaktionen gelernt werden. Als besonders vorteilhaft hat es sich dabei erwiesen, die Raten der geschwindigkeitsbestimmenden Elementarreaktionen zu lernen. Ist eine Elementarreaktion unter bestimmten Reaktionsbedingungen im partiellen Gleichgewicht, weisen sowohl Hin- als auch Rückreaktion große Geschwindigkeiten auf. Die Gesamtgeschwindigkeit ergibt sich als Differenz dieser beiden großen Werte. Selbst wenn die Hin- und Rückraten beide genau gelernt werden, wird die Differenz dieser beiden großen Zahlen erhebliche Ungenauigkeiten aufweisen. Geschwindigkeitsbestimmende Elementarreaktionen zeichnen sich dadurch aus, dass entweder die Hin- oder die Rückreaktion sehr kleine Raten aufweist. Ein genaues Lernen der einzelnen Raten führt daher auch zu einer genauen Vorhersage der Gesamtrate. Der Ansatz die geschwindigkeitsbestimmenden Elementarraten zu lernen ist im Detail in der Publikation [Doepfel2022] beschrieben.

Der Ansatz des Lernens von geschwindigkeitsbestimmenden Elementarraten ist unabhängig von der Art des verwendeten maschinellen Lerntechnik und wurde im Rahmen von ML-MORE in Kombination mit verschiedenen Lernmethoden getestet, unter anderem mit: Linearer Regression, Splines, Support-Vector-Maschinen, Random Forests, Neuronale Netze und den in Stuttgart entwickelten Kernelmethoden. Als besonders erfolgversprechend erwiesen sich Neuronale Netze und die Kernelmethoden. Die Anwendung der Kernelmethoden wird in Abschnitt 4.1.4 beschrieben.

#### 4.1.3 Neuronale Netze mit integriertem stoichiometrischen und thermodynamischen Vorwissen

Als dritter Ansatz zum effizienten Lernen kinetische Modelle wurden in Darmstadt Neuronale Netze entwickelt, die physikalische Vorinformationen wie z.B. die Atomerhaltung und die Thermodynamik der Gleichgewichtseinstellung in die Struktur des Neuronalen Netzes einbauen. Dieser Ansatz ist

Abb. 2 dargestellt und konnte im Chemical Engineering Journal veröffentlicht werden [Kircher2024] [Kircher2024a].



**Abbildung 2: Architektur des Global Reaction Neural Network. Es enthält physikalische Informationen zu Thermodynamik und Stöchiometrie des Reaktionssystems und garantiert somit physikalisch plausible Vorhersagen zur effizienten Implementierung realistischer Oberflächenchemie in reaktive Strömungssimulationen. [Kircher2024]**

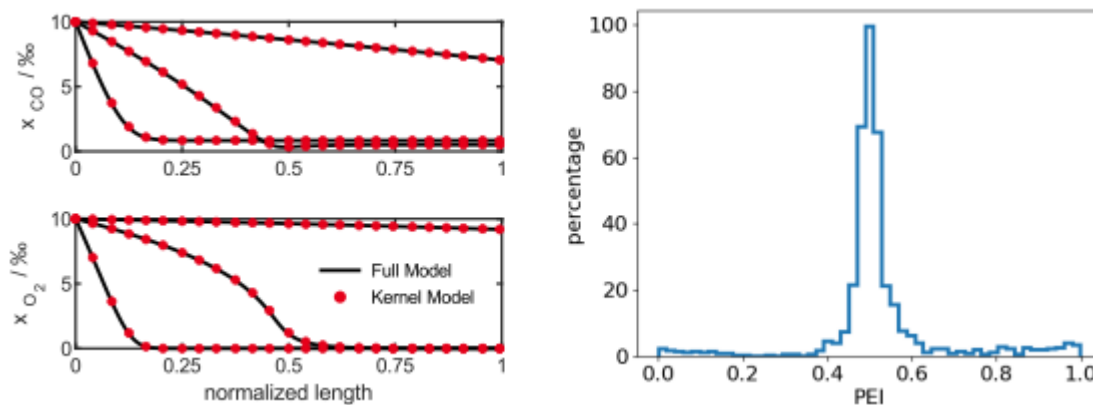
#### 4.1.4 Zusammenarbeit mit der Uni Stuttgart: Erstellen von tiefen Kernelmodellen als Surrogate zum Bereitstellen kinetischer Modelle

Von den drei in Darmstadt verfolgten Ansätzen zum Erstellen von kinetischen Surrogatmodellen erwies der zweite Ansatz (Lernen der Raten  $\vec{r}$  der geschwindigkeitsbestimmenden Elementarreaktionen, siehe Abschn. 4.1.2) als am besten geeignet für die Problemstellung von ML-MORE. Insbesondere lässt sich dieser Ansatz am besten mit den in Stuttgart bearbeiteten Kernmethoden kombinieren. Die Methode wurde deshalb an die Uni Stuttgart übertragen.

In Darmstadt wurden zum Erstellen der kinetischen Surrogatmodelle Neuronale Netze verwendet. Die in Stuttgart von der Arbeitsgruppe Haasdonk im Rahmen von ML-MORE bearbeiteten Kernmethoden versprechen gegenüber Neuronalen Netzen signifikante Vorteile bei der Erstellung von Surrogatmodellen für komplexe oberflächenkinetische Modelle, insbesondere ein effizienteres Erstellen der Modelle aufgrund einer reduzierten Anzahl an Trainingsdaten, sowie die besser ausgearbeiteten theoretischen Grundlagen, die zu verbesserten Garantien hinsichtlich der Modellqualität führen.

In Zusammenarbeit mit der Universität Stuttgart wurden verschiedene Kernel-Methoden zum Erlernen der aus Darmstadt bereitgestellten Anwendungsdatensätze eingesetzt. Die in Stuttgart vielfach verwendeten flachen Kernmodelle (VKOGA) haben sich dabei als geeignet, jedoch nicht als optimal erwiesen: Als Grund stellte sich die hohe Linearität des Datensatzes heraus, welcher die Entwicklung von tiefen Kernmodelle (zur Erkennen solcher Merkmale im Datensatz) motiviert. Tatsächlich liefert der Einsatz zweischichtiger Kernmodelle deutlich genauere Vorhersagen. Eine weitere deutliche Verbesserung lässt sich erreichen, wenn das Training der Kernmodelle in einer zielorientierten Weise erfolgt. Dabei werden zwar noch immer Bildungs- und Verbrauchsdaten modelliert, jedoch wird gleichzeitig auf die eigentliche Zielgröße, die Nettobildungsraten der Spezies optimiert. Wie Abbildung 3a zeigt, sind so erzeugte Modelle in der Lage Reaktorsimulationen mit detaillierter Oberflächenkinetik akkurat nachzubilden und liefern gegenüber dem vollen physikalischen Modell eine Rechenzeiterparnis von mehr als zwei Größenordnungen. In einer früheren Veröffentlichung [Doepfel2022] wurden Bedingungen nahe des chemischen Gleichgewichts als primäre Fehlerquelle der Modellvorhersage

gen von Neuronal Netzen erkannt. Genau diese Punkte werden nun automatisch durch Einführung des zielorientierten Kriteriums bevorzugt als Stützstellen der Kernmodelle ausgewählt. Damit lässt sich der Erfolg dieser Methode auch chemisch verstehen. Abbildung 2b zeigt den Anteil der von den Trainingsdaten ausgewählten Daten aufgeschlüsselt nach dem Gleichgewichtsindex PEI. Während fast alle verfügbaren Punkte nahe des Gleichgewichts ( $PEI = 0.5$ ) ausgewählt werden, verwendet das Modell weit entfernt vom Gleichgewicht nur einen geringen Teil der verfügbaren Daten. Das weist darauf hin, dass die Anzahl teuer gewonnener Trainingsdaten deutlich reduziert werden kann, wenn vorrangig Punkte nahe des Gleichgewichts erzeugt werden. Ein weiterer entscheidender Vorteil der Kernel-Methoden gegenüber den Neuronalen Netzen ist die intrinsische Fehlerabschätzung. Diese kann genutzt werden, um Vorhersagefehler der Modelle während einer Simulation abzuschätzen und zu entscheiden, ob auf das volle physikalische Modell zurückgegriffen werden muss. Die Ergebnisse mit den Kernmethoden wurden in einer gemeinsamen Publikation von Uni Stuttgart und TU Darmstadt im Detail dargestellt [Doepfel2023].



**Abbildung 3:** Erlernen von chemischen Reaktionsraten durch die in Stuttgart entwickelten tiefen Kernmodelle.

**Links:** Die durch tiefe Kernmodelle vorhergesagten Konzentrationsprofile (rot) eines Strömungsreaktors mit detaillierter Oberflächenkinetik stimmen gut mit der exakten Lösung (schwarz) überein. **Rechts:** Im Fall des zielorientierten Trainings wählen tiefe Kernmodelle bevorzugt Punkte nahe des chemischen Gleichgewichts ( $PEI = 0.5$ ) aus. Von den verfügbaren Punkten weit entfernt vom Gleichgewicht wird nur ein geringer Anteil tatsächlich verwendet.

#### AP 4.1 Entwicklung und Validierung eines 1D Modells zur Beschreibung der Strömung in Einlasskanal, Auslasskanal und Wand

##### Entwicklung des 1D Strömungsmodells

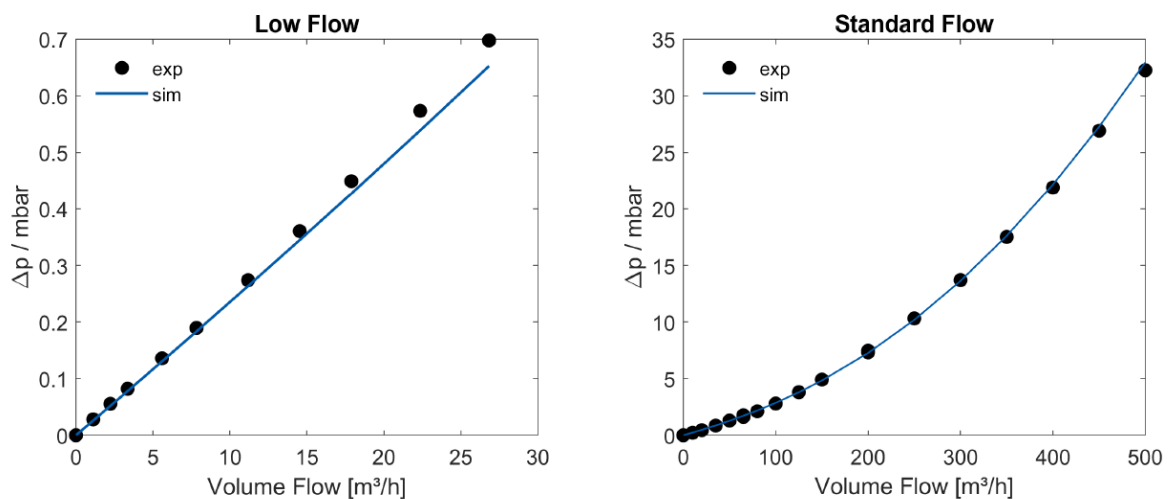
Zur Beschreibung eines vollständigen Filters muss neben der reaktiven Strömung auf der Porenskala auch die Strömung in den Kanälen und in der Wand berücksichtigt werden. Bei der Berechnung des Gesamtfilters liefert das 1D Strömungsmodell die Randbedingungen für die bei den anderen Partnern bearbeiteten Porenskalenmodelle.

Das System bestehend aus Einlasskanal, Auslasskanal und Wand wurde in einer detaillierten 3D CFD Simulation mit einer generischen Wandpermeabilität in dem Strömungssimulationsprogramm Fluent abgebildet. Die Ergebnisse der Strömungssimulationen wurden mit einem 1D Strömungsmodell abgeglichen und durch diesen Abgleich die Parameter für die Druckverluste am Eingang/Ausgang der Kanäle angepasst. Mit den angepassten Parametern wird eine sehr gute Übereinstimmung zwischen 3D- und 1D Modell erzielt.

In einem nächsten Arbeitsschritt wurde mittels hochaufgelöster Computer-Tomographie ( $\mu$ -CT) die Porenstruktur innerhalb der Wand für drei verschiedene Filter gemessen. Die Tomographiedaten wurden in ein kubisches Rechengitter umgewandelt dessen Voxel (3D Pixel) entweder als Feststoff (Träger oder poröser Katalysator) oder Pore klassifiziert wurden. Durch eine Strömungssimulation innerhalb dieser Rechengitter wurde die Wandpermeabilität der Filter bestimmt.

Die Simulation des 1D Strömungsmodells wurde mit den erhaltenen Permeabilitäten wiederholt. Ohne weitere Anpassung, zeigen diese Rechnungen gute Übereinstimmung mit experimentell bestimmten Druckverlusten, siehe **Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.** rechts.

Bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten dominieren Ein- und Ausströmeffekte den Druckverlust. Um die erhaltenen Permeabilitäten dennoch über Druckverlustmessungen validieren zu können, wurde der experimentelle Aufbau zur Druckverlustbestimmung so modifiziert, dass auch der Gegendruck bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten exakt bestimmt werden kann. Auch in diesem Fall wurde eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation unter Nutzung der  $\mu$ -CT basierten Permeabilitäten beobachtet, siehe Figure 4 links.

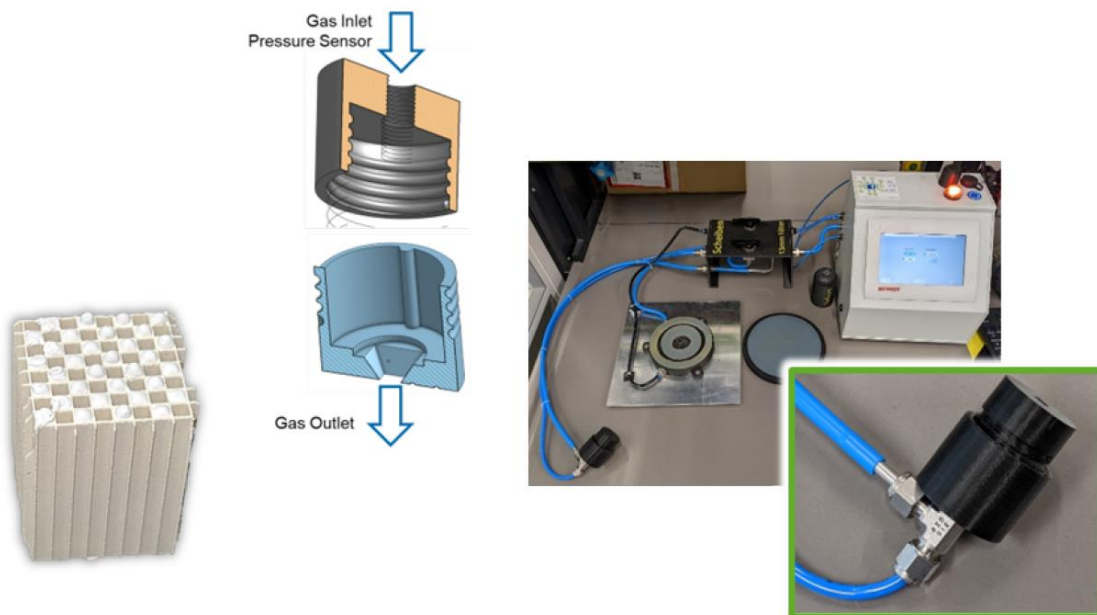


**Abbildung 4: Vergleich von gemessenem Staudruck eines Partikelfilters mit der Vorhersage des erstellten 1D Modells. Die Simulation basiert nur auf  $\mu$ -CT Daten und CFD Modellen der Kanalströmung. Rechts: Messungen mit dem konventionellen Aufbau. Links: Messungen bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten. Weil die Staudrücke besonders bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten sensitiv auf die durch die Porenskalensimulation berechneten Permeabilitäten sind, wurde ein Experiment zum Vermessen der Staudrücke bei niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten neu aufgebaut.**

In einem weiteren Arbeitsschritt wurde das Modell so erweitert, dass auch Filter mit einer gezonten Beschichtung abgebildet werden können. Solche gezonten Filter weisen entlang des Kanals unterschiedliche Beschichtungen auf. Zum Beispiel kann im Einlassbereich eine erhöhte Katalysatormenge aufgebracht sein. Die Permeabilitäten der einzelnen Zonen bilden eine wichtige Eingangsgröße für Simulationen, sind aber einzeln schwer zu messen. Gemeinsam mit dem Industriepartner Umicore wurde deshalb eine neue Messmethode entwickelt, die es erlaubt, die Permeabilitäten einzelner Zonen zu vermessen. Dabei wird zunächst der Gegendruck durch eine Katalysatorscheibe gemessen, die Permeabilität wird dann durch Vergleich mit in COMSOL durchgeführten Strömungssimulationen bestimmt. Mit den so erhaltenen Permeabilitätsprofilen entlang des Kanals können die Strömungsprofile in den einzelnen Kanälen sowie der Gegendruck des gesamten Filters berechnet werden. Zur Validierung des Modells wurden beim Industriepartner Umicore Gegendruckmessungen an verschiedenen gezonten Filtern durchgeführt und mit den Simulationsergebnissen abgeglichen. Dabei ergab sich eine zunächst zufriedenstellende Übereinstimmung von Experiment und Simulation, jedoch wur-

den für die gezonten Filter größere Abweichungen beobachtet als für ungezonte. Diese Abweichungen sind wahrscheinlich auf Ungenauigkeiten in den gemessenen Permeabilitäten der einzelnen Scheiben zurückzuführen. Trotz der beobachteten Abweichungen wurde das 1D Kanalmodell für gezonte Filter an den Projektpartner Umicore übertragen und dort weiter getestet.

Ausgiebige Tests des Industriepartners Umicore haben gezeigt, dass das Modell den Druckverlust in zonierten Filtern und damit auch die Strömung innerhalb der Filter noch immer nicht hinreichend genau abbildet. Das Problem wurde analysiert und es zeigte sich, dass das Modell Ein- und Ausströmeffekte nicht korrekt abbildet, zum anderen auch die zuvor beschriebene neuartige Messung der Wandpermeabilität von einzelnen Filterscheiben keine hinreichend genauen Messwerte liefert. Es wurde deshalb eine zweite verbesserte Methode zur Messung der Wandpermeabilität entwickelt. Dazu werden aus dem Filter kleine Proben mit einer Länge von 20 mm und einem Querschnitt von 15x15 mm (8x8 ganze Kanäle) präpariert. In diesen Proben werden die Kanäle in einem Schachbrettmuster alternierend auf der Vorder- und Rückseite des Filters mit einem keramischen Kleber verschlossen, so dass eine Durchströmung der Probe nur durch die Kanalwände erfolgen kann. Der zuverlässige Verschluss der Kanäle erwies sich als schwierig, so dass eine Reihe von verschiedenen Klebmaterialien getestet werden musste. Zur Vermessung des Gegendrucks der Filterproben wurde mittels 3D Druck eine Apparatur erstellt, die die Probenkörper mit kontrolliertem Volumenfluss durchströmt und den dabei auftretenden Druck misst (Abb. 5). Aus dem gemessenen Gegendruck kann die Permeabilität der Wand berechnet werden. Der 3D Druck für die neue Meßapparatur wurde vom Industriepartner Umicore zur Verfügung gestellt.



**Abbildung 5: Der neue Aufbau zur experimentellen Bestimmung der Wandpermeabilität von Partikelfiltern. Links: Ein Filterprobe der Abmessung 20x15x15 mm, bei der die Kanäle alternierend vorn und hinten mit einer Keramikmasse verschlossen sind. Mitte: Der bei Umicore per 3D Druck gefertigte Probenhalter. Rechts: Aufbau zur Vermessung des Gegendrucks in der Filterprobe.**

#### *Entwicklung eines verbesserten Filtrationsmodells*

Neben dem Gegendruck und den chemischen Reaktionen stellt die Filtrationseffizienz eine weitere wichtige Kenngröße eines katalytisch beschichteten Filters dar. Es wurden deshalb auch Anstrengungen unternommen, in dem existierenden 1D Modell zusätzlich die Filtration zu berücksichtigen. Nach

dem Stand der Technik wird die Filtration näherungsweise durch analytische Gleichungen berechnet, die die Filtration in einer polydispersen Kugelschüttung beschreiben. Um diese Modelle zu validieren wurden im Rahmen des Projekts detaillierte Simulationen der Filtration in polydispersen Kugelschüttungen durchgeführt. Es zeigte sich, dass die existierenden Modelle aus der Literatur unzulässige Näherungen enthalten und die Filtration deshalb nicht gut abbilden. Basierend auf den detaillierten Simulationsergebnissen wurde ein verbessertes Filtrationsmodell vorgeschlagen. Diese Arbeiten wurden in **[Bonarens2022]** publiziert. Es wurde auch gezeigt, dass die durch Tomographie gewonnenen Voxelgitter mit der heute üblichen Auflösung von  $\sim 1 \mu\text{m}$  die Strömung in den Poren eines Partikelfilters unzureichend auflösen. Das heißt, es kommt zu einem signifikanten Diskretisierungsfehler. Diese Erkenntnis muss bei zukünftigen Projekten und bei der Anwendung der in ML-MORE entwickelten Rechen-Tools im Auge behalten werden. Jedoch bieten die unter AP4.2. diskutierten Messungen mit erhöhter Auflösung die Möglichkeit, diese Probleme teilweise zu umgehen. Durch die erhöhte Anzahl an Volumenelementen werden solche hochaufgelösten Rechnungen in besonderem Maße von den im Rahmen von ML-MORE entwickelten numerischen Methoden profitieren.

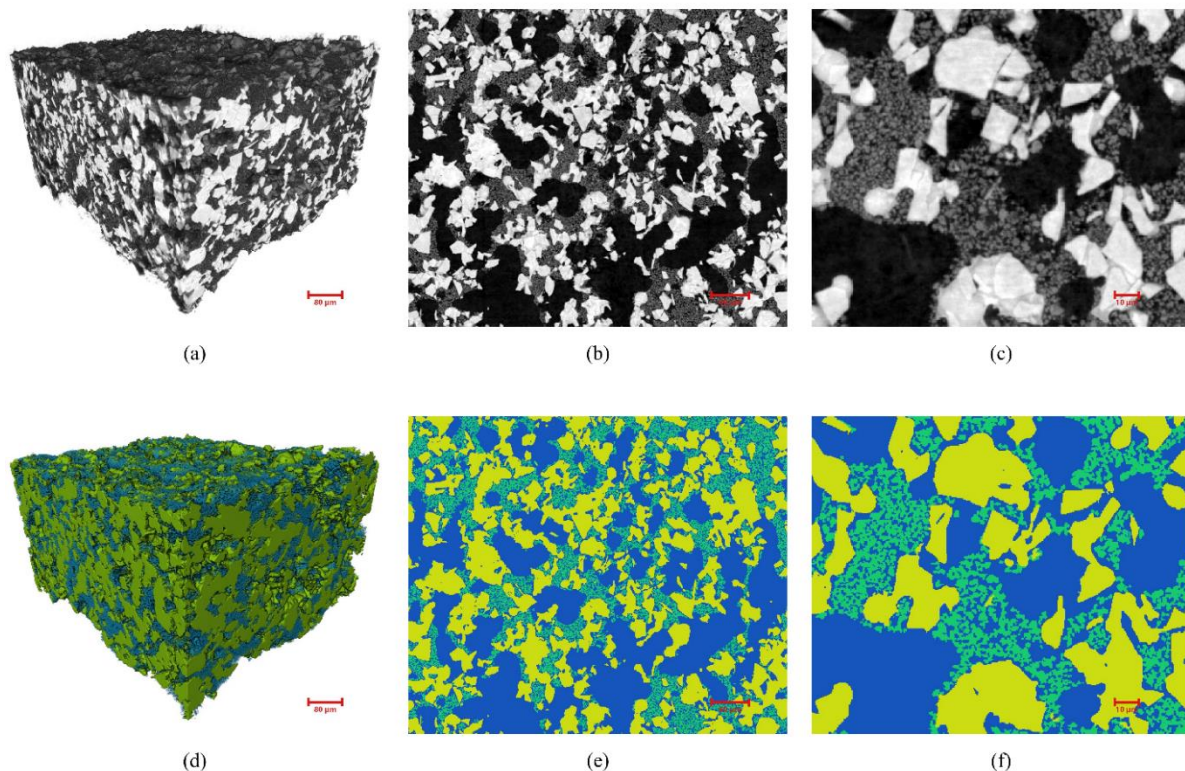
#### **AP 4.2 Qualifizierung und Verbesserung der durch Standardtomographie erhaltenen 3D Geometriedaten**

##### *Verbesserte 3D Tomographiedaten mit erhöhter Ortsauflösung*

Zuvor mit dem Projektpartner Fraunhofer ITWM veröffentlichte Arbeiten zur Simulation von Partikelfiltern stützen sich auf Tomographien mit einer Auflösung von  $1,5 \mu\text{m}$ . Innerhalb des ML-MORE Projekts konnten zusammen mit dem Fraunhoferinstitut in Würzburg Messungen mit einer Auflösung besser als  $400 \text{ nm}$  durchgeführt werden. Die neuen Messungen von Benzinpartikelfiltern und mit SCR-Katalysator beschichteten Dieselpartikelfiltern zeigen zudem einen verbesserten Materialkontrast. Das vereinfacht die Rekonstruktion der Katalysatorgeometrie. In den Dieselpartikelfiltern werden jetzt auch Poren innerhalb der Katalysator-domäne aufgelöst. Parallel zu den Röntgen-Tomographiemessungen wurde erfolgreich Messzeit für FIBSEM (Focused Ion Beam-Scanning Electron Microscope) Messungen der Porenstruktur innerhalb der Katalysator-domänen beantragt. Erste FIB-SEM Messungen eines SCR-Katalysators wurden durchgeführt. Die Röntgen-Tomographiemessungen sowie die FIB-SEM Messungen werden es in Zukunft ermöglichen, die Diffusion innerhalb der porösen Katalysator-domänen explizit in den Simulationen aufzulösen.

##### *Segmentierung von hochaufgelösten 3D Tomographiedaten eines mit SCR-Katalysator beschichteten Partikelfilters*

Durch die höhere Auflösung der m-Tomographiemessungen (siehe vorhergehender Abschnitt) können jetzt für den mit SCR Katalysator beschichteten Filter erstmals die Poren innerhalb der einzelnen Katalysator-domänen aufgelöst werden. Die Segmentierung dieser neuen Daten erwies sich als schwieriger als erwartet. Bei den früheren Messungen zeigten die Katalysator-domänen aufgrund der nicht aufgelösten Porenstruktur eine signifikant geringere optische Dichte als das Keramikmaterial des Filterträgers, so dass beide Phasen aufgrund ihrer Graustufen in der rekonstruierten Geometrie segmentiert werden konnten. Bei den neuen Messungen entspricht die optische Dichte des (jetzt nicht mehr durch unaufgelöste Poren verdünnten) Katalysatormaterials ziemlich genau der optischen Dichte des Trägers, so dass beide Phasen nicht mehr durch ihre Graustufe segmentiert werden können. Es wurde deshalb versucht, die beiden Materialien anhand ihrer unterschiedlichen Struktur zu segmentieren. Dazu wurde zunächst in kleinen Domänen eine Segmentierung von Hand durchgeführt. Diese Segmentierung wurde dann durch einen Maschinenlernalgorithmus gelernt und mittels des Algorithmus die gesamte Geometrie segmentiert.

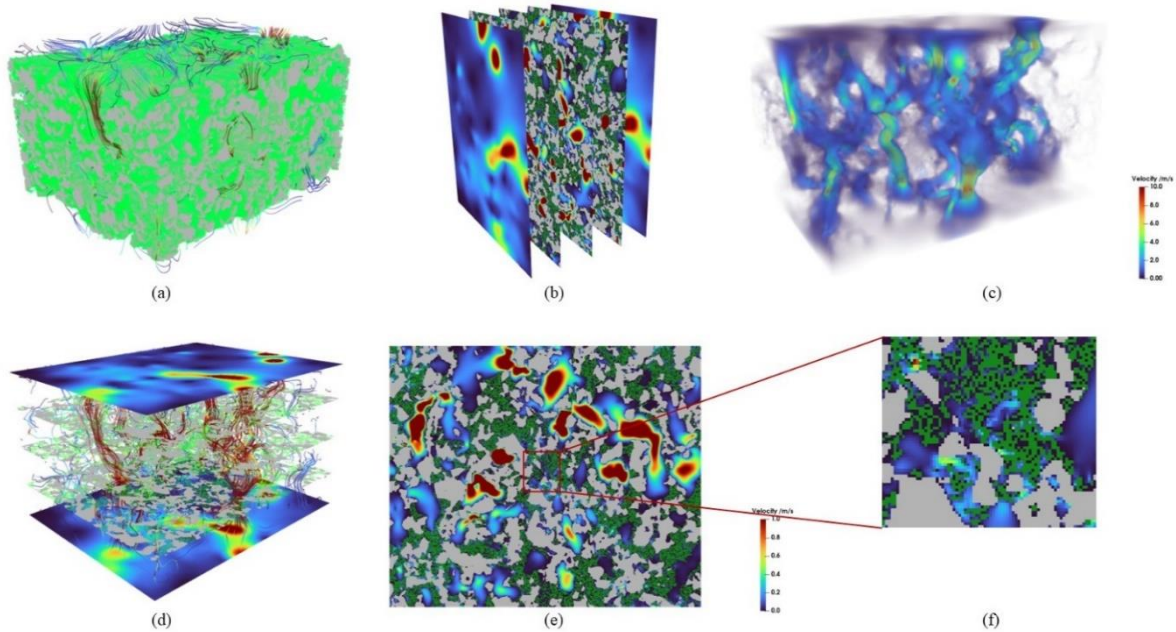


**Abbildung 6:** Rohdaten eines hochauflösenden CT-Scans eines mit SCR Katalysator beschichteten Filters (SDPF) und segmentiertes Bild. (a) ~ (c), die Rohdaten des SDPF. (a) 3D-Ansicht der gesamten Wand. (b) Schnittansicht der Wand, im Bild sind die offenen Poren schwarz, das Substrat weiß, die Beschichtungen grau. (c) Eine vergrößerte Schnittansicht des SDPF. Hier können kleine Poren innerhalb der Beschichtung beobachtet werden. (d) ~ (f), die segmentierten Bilder des SDPF entsprechend (a) ~ (c).

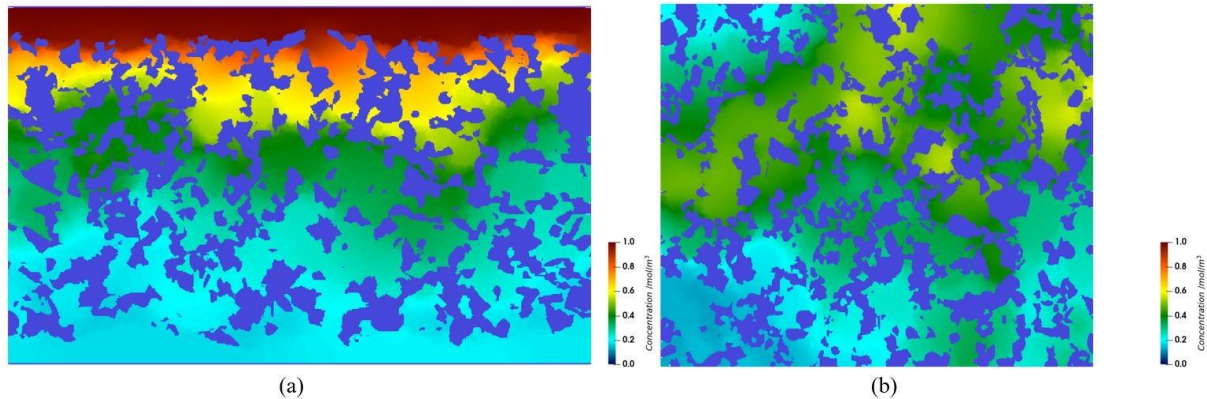
*Simulation eines SCR-Partikelfilters mit aufgelöster Porenstruktur innerhalb der Katalysatoromänen.*

Durch Fortschritte in der Auflösung der  $\mu$ -Tomographie und bei der Segmentierung der erhaltenen Daten war es innerhalb ML-MORE erstmalig möglich, die Porenstruktur innerhalb der Katalysatoromänen bei der Simulation eines Partikelfilters mit zu berücksichtigen. Frühere Arbeiten hatten die Diffusion innerhalb der Katalysatoromänen durch abgeschätzte effektive Diffusionskoeffizienten berücksichtigt. Abbildung 7 zeigt die berechneten Strömungsfelder innerhalb der hochaufgelösten Wandstruktur. Zum einen zeigt sich, dass ein Großteil des Gases durch einige wenige große Poren fließt. Durch diese Kanalisierung des Flusses werden einige Regionen kaum durch das fließende Gas erreicht und der Katalysator in diesen Regionen wird nicht gut genutzt. Diese Ergebnisse sind konsistent mit früheren Ergebnisse von Simulationen auf weniger hoch aufgelösten Wandgeometrien. Dies ist nicht erstaunlich, weil für die Kanalisierung die großen Poren relevant sind, die schon in der niedrigeren Auflösung gut erfasst werden. Neu ist, dass die Simulationen auf den hochaufgelösten Geometrien auch die Strömung innerhalb der kleinen Poren innerhalb der Katalysatoromänen erfassen. Abbildung 7e zeigt, dass auch in diesen kleinen Poren teilweise eine signifikante Strömung berechnet wird. Durch diese Strömung innerhalb der kleinen Poren in den Katalysatoromänen wird die Zugänglichkeit des Katalysators verbessert. Dieses Ergebnis bedeutet auch, dass in weniger hoch aufgelösten Simulationen die Strömung in der dann nicht aufgelösten Katalysatoromäne nicht vernachlässigt werden kann, und zum Beispiel durch eine Darcy-Strömung berücksichtigt werden muss. Dies wird heute in der Regel vernachlässigt.

In einem zweiten Schritt wurde auf dem in Abb. 7 gezeigten Strömungsfeld die Konzentrationsprofile für eine als Modellreaktion verwendete Reaktion erster Ordnung berechnet. Ergebnisse sind in Abb. 8 dargestellt. Diese Berechnungen zeigen, dass der untersuchten SCR-Filter eine extrem gute Zugänglichkeit des Katalysators aufweist, wodurch der Katalysator sehr gut ausgenutzt wird. Die gute Zugänglichkeit wird in erster Linie durch die zahlreichen  $\mu$ -Poren innerhalb der Katalysatoromänen bewirkt. Frühere, weniger aufgelöste Simulationen hätten diese  $\mu$ -Poren nicht erfasst und deshalb ein deutlich zu schlechtes Umsatzverhalten vorhergesagt. Dies zeigt, dass für die Optimierung der Katalysator  $\mu$ -Struktur hochaufgelöste Messungen und Simulationen notwendig sind. Gerade solche Simulationen auf hoch aufgelösten Geometrien sind extrem Rechenintensiv und können deshalb von den in ML-MORE entwickelten Rechenverfahren profitieren.



**Abbildung 7:** Das berechnete Strömungsfeld innerhalb der Wand eines mit SCR-Katalysator beschichteten Filters. Eintrittsgeschwindigkeit 0,079 m/s. (a) Die Stromlinien in der 3D-Geometrie. Grün: Katalysator an, grau: Substratkörper. (b) Schnitte der Strömungsverteilung senkrecht zur Strömungsrichtung. Grau und grün kennzeichnen den Substratfestkörper bzw. den Katalysator. Das Gas strömt nur durch die freien Porenräume. (c) Die 3D-Ansicht des Strömungsfeldes. (d) Stromlinien und Schnittansicht mit transparenten Poren. (e) XY-Schichtansicht der Geschwindigkeitsverteilung und Geometrie. (f) vergrößerte Schichtansicht der XY-Schicht in (e). Man erkennt, dass auch in den feinen Poren innerhalb der Katalysatoromäne eine signifikante Strömungsgeschwindigkeit berechnet wird.



**Abbildung 8: Konzentrationsprofil des Reaktanden.**  $k_{wc} = 5666,6 \text{ s}^{-1}$ ,  $D_{\text{pore}} = 6,5 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $D_{wc} = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ . (a) Konzentrationsverteilungsprofil der Reaktanden in der YZ-Schichtansicht. (b) Konzentrationsverteilungsprofil der Reaktanden in der XY-Schichtansicht.

*Validierung der vom Projektpartner ITWM zur Verfügung gestellten Software PORECHEM.*

Eine wichtige Aufgabe der TU Darmstadt im Konsortium bestand darin die Anwendbarkeit der vom Projektpartner Fraunhofer ITWM bereitgestellten Software PORECHEM zu demonstrieren.

PORECHEM wurde schon in einer gemeinsamen Vorstudie zu ML-MORE von der TU Darmstadt und dem ITWM genutzt. Innerhalb von ML-MORE wurde der Umfang der Software so erweitert, dass nach Erstellen der entsprechenden Schnittstellen in Zukunft die Ergebnisse der mathematischen Partner Uni Stuttgart und Uni Münster in die Software einfließen können.

Neben der im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Studie zur Simulation eines Filters mit aufgelöster Porenstruktur innerhalb der Katalysatordomäne (diese Studie verwendete noch eine lineare Modellreaktion) wurden weitere Studien durchgeführt, um die Anwendbarkeit von PORECHEM auf nichtlineare Reaktionen zu demonstrieren. Die Fähigkeit zur Simulation instationärer Reaktionen wurde durch die Modellierung der instationären  $\text{NH}_3$ -Adsorption in einem mit SCR Katalysator beschichteten Filter demonstriert.

Insgesamt belegen die durchgeführten Validierungsstudien, dass die Software PORECHEM bereit ist, die Reaktion einer einzelnen Spezies auf komplexen Geometrien zu berechnen. Es bestehen damit beste Voraussetzungen in Zukunft Simulationen mit praktisch relevanten vollständigen Reaktionsmodellen durchzuführen. Solche Simulation werden immens von den in Münster und Stuttgart entwickelten maschinellen Lernverfahren zur Beschleunigung der Simulation profitieren.

#### **AP 4.3 Entwicklung und Validierung eines stationären Modells für einen mit SCR Katalysator beschichteten Filter**

*Beschreibung der Diffusionseffekte in katalytisch beschichteten Partikelfiltern durch Effektivitätsfaktoren: Masterplot für verschiedene Beschichtungen*

In gemeinsamen Vorarbeiten mit dem Projektpartner Fraunhofer ITWM aus Kaiserslautern wurde gezeigt, dass Diffusionshemmungen innerhalb der Katalysatordomäne einen erstaunlich großen Einfluss auf die katalytische Aktivität beschichteter Partikelfilter ausüben. Innerhalb von ML-MORE wurden Simulationen durchgeführt, die zeigen, dass die Diffusionseffekte verschiedener Katalysatorverteilungen und -beladungen durch einen gemeinsamen Masterplot beschrieben werden können. Dabei wird

der Effektivitätsfaktor in Abhängigkeit eines generalisierten Thielemoduls aufgetragen. Die Arbeiten zum Masterplot wurden in [Belot2021] veröffentlicht. Aus dem Masterplot für den Effektivitätsfaktor wurde im nächsten Schritt ein entsprechender Masterplot für den internen Massentransferkoeffizienten als Funktion des generalisierten Thiele-Moduls konstruiert.

#### *Entwicklung eines transienten Modells für den mit SCR Katalysator beschichteten Filter*

Es wurde ein 1D Modell für ein Paar Auslass-/Einlasskanälen eines mit SCR Katalysator beschichteten Filters entwickelt. Das neue Modell beschreibt den Massentransfer innerhalb der Katalysatordomänen basierend auf dem im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Masterplot des Katalysatornutzungsgrads als Funktion eines aus Katalysatoroberfläche und Volumen berechneten generalisierten Thielemoduls. Dabei musste berücksichtigt werden, dass der Masterplot in der ursprünglichen Form nur den Katalysatorwirkungsgrad für eine Reaktion erster Ordnung liefert. Deshalb wurde aus dem bekannten Masterplot für den Katalysatorwirkungsgrad ein neuer Masterplot berechnet, der für gegebenes Thielemodul einen sogenannten internen Übergangskoeffizienten liefert. Diese Größe erlaubt die Berücksichtigung der internen Massentransferlimitierungen auch für nichtlineare Kinetiken. Weil zusammen mit dem Industriepartner Umicore beschlossen wurde, die Arbeiten im Projekt auf Dieselpartikelfilter für LKW zu konzentrieren, wurde das zunächst als stationäres Modell geplante Modell zu einem vollständigen transienten Modell ausgebaut. Dies bedeutet, dass das Modell jetzt auch die Ein- und Ausspeicherung von  $\text{NH}_3$  erfasst, und somit zur Simulation von realen Fahrzyklen verwendet werden kann. In dem erstellten Filtermodell wurde die selbe Kinetik implementiert, die zuvor dem Projektpartner ITWM zur Verfügung gestellt wurde. Auf diese Weise kann die Funktionsfähigkeit des vereinfachten Modells durch Abgleich mit detaillierten Porenskalensimulationen validiert werden.

#### **AP 4.4 Entwicklung eines transienten Modells für einen Benzin-Partikelfilter**

Benzinpartikelfilter werden allein in Personenkraftwagen eingesetzt. Durch die beschleunigte Einführung von Batteriefahrzeugen hat das Interesse des Industriepartners Umicore an der Entwicklung von Benzinpartikelfiltern für PKW stark abgenommen. Es wurde deshalb in Abstimmung mit dem Industriepartner beschlossen, die Arbeiten in ML-MORE ganz auf die auch in Zukunft für LKWs wichtigen Dieselpartikelfilter zu konzentrieren. Die wesentliche methodische Erweiterung im AP 4.4 war das Erstellen eines transienten Modells. Deshalb wurde das in AP 4.3 entwickelte stationäre Modell für Diesel-Partikelfilter entgegen dem ursprünglichen Plan auch als transientes Modell ausgeführt. Das erstellte transiente 1D Modell wurde gemeinsam mit dem Industriepartner Umicore zur Optimierung der Auslegung von Dieselpartikelfiltern angewendet.

#### **4 Verwendung der Zuwendung (wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises, z. B. Investitionen, Personalmittel)**

Personalmittel für Herrn Liu Tao und Herrn Dr. Felix Döppel. Zeitweilig waren studentische Hilfswissenschaftler auf dem Projekt beschäftigt.

#### **5 Erzielte Ergebnisse mit Gegenüberstellung der vereinbarten Ziele**

Im Rahmen unseres Teilprojektes (AP 4, TUDa) haben wir die folgenden wichtigsten Ergebnisse erzielt:

- Wir haben neue Methoden entwickelt um physikalisch informierte Neuronale Netze als Surrogatmodelle für die Simulation von chemischen Reaktionen einzusetzen.

- Zusammen mit der Uni Stuttgart wurden erstmals tiefe Kernel Modelle als Surogatmodelle für chemische Reaktionsmodelle eingesetzt.
- Es wurde ein neues verbessertes 1D Modell zur Beschreibung der Strömung in den Kanälen eines Filters entwickelt.
- Zur Parametrierung des 1D Modells wurden neue Verfahren zur Vermessung der lokalen Permeabilität der Filterwand entwickelt.
- Es wurde ein verbessertes Filtrationsmodell für katalytisch beschichtete Partikelfilter entwickelt.
- Durch die Anwendung von hochauflösender Nano-Tomographie konnten erstmals Simulationen durchgeführt werden, die die Porenstruktur innerhalb der Katalysator-domänen in der Filterwand auflösen.
- Dem Industriepartner Umicore wurde ein transientes 1D-Modell für einen mit SCR Katalysator beschichteten Partikelfilter zur Verfügung gestellt.
- Das Modell wurde gemeinsam mit dem Industriepartner validiert und zur Weiterentwicklung der Partikelfilter angewendet.

Für das Arbeitspaket AP 4 (TUDa) konnten damit die vereinbarten Ziele und Meilensteine erreicht werden.

## 6 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Eine Finanzierung des Vorhabens aus Landes- oder Eigenmitteln der beteiligten Forschungseinrichtungen war aufgrund der Zusammensetzung des Konsortiums und der Größe des Vorhabens nicht möglich. Aus Sicht der Industrie sind die mit dem Vorhaben verbundenen Ziele notwendig, um die Entwicklung von effizienten katalytischen Filtern weiter voranzutreiben. Jedoch waren die Aufwendungen aufgrund der noch zu legenden wissenschaftlichen Grundlagen im Bereich des Maschinellen Lernens, der Modellreduktion und der Strömungssimulation zu hoch, um diese Entwicklungen selbst tragen zu können. Der Anspruch an das Projekt ML-MORE und dessen Konsortium war es, die verschiedenen Daten aus dem Experiment, der voll aufgelösten Porenskalensimulation auf CT-Bildern und von Simulationsergebnissen reduzierter Modelle zusammenzuführen und sie in der Trainingsphase von Algorithmen des Maschinellen Lernens (ML) zu verschmelzen, mit dem Ziel, ein Werkzeug zur Vorhersage der Konversionsrate für die kritischen Spezies in Abhängigkeit von Mikrostruktur, Prozessparametern und Katalysatorzusammensetzung zu entwickeln. Voll aufgelöste Simulationen sind zu teuer, um einen umfangreichen Satz an Trainingsdaten zu generieren. Daher ist die Modellordnungsreduktion entscheidend, um ausreichend viele Trainingsdaten zu erzeugen. MOR-Modelle sind bereits prädiktiv, erfordern jedoch immer noch Zeitintegration und erst mit ML-Modellen sind schnelle Vorhersagen zu erwarten, wie sie in einem interaktiven Analyse-Werkzeug erforderlich sind. Im Hinblick auf die Entwicklung eines prädiktiven ML-Analyse-Werkzeugs stellt dies einen wichtigen Baustein dar, der die Industrie bei der Entwicklung neuer katalytischer Filter unterstützt und der auf viele andere vergleichbare Prozesse übertragbar ist.

## 7 Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit der Ergebnisse

### 7.1 Wissenschaftliche Erfolgsaussichten der Verwertung

Das vorgeschlagene Projekt wird wesentlich zur Entwicklung, Erprobung und Validierung kombinierter modellbasierter und datengetriebener Ansätze zur Lösung einer wichtigen Problemklasse beitragen, nämlich den reaktiven Strömungen in 3D-Porengeometrien. Nicht nur die Algorithmen und die resultierende Software, die alle Beiträge der Partner integrieren, sondern auch die Forschungsergebnisse zu den einzelnen Themen, werden dazu beitragen, den Stand der Technik in den jeweiligen Bereichen voranzutreiben. Die Erweiterung der Modellreduktionsalgorithmen für Konvektions-Diffusionsprobleme

auf die hier betrachteten gekoppelten Systeme von Konvektions-Diffusions-Reaktionsgleichungen sowie die Erweiterung und Analyse moderner mehrschichtiger kernbasierter ML-Methoden, die auf das hier betrachtete herausfordernde Problem angewendet werden, wird einen eigenen signifikanten Forschungswert haben. Die Erweiterung des 3D-Simulators PoreChem um komplexe chemische Reaktionen sowie seine zukünftige Ausstattung mit einem effizienten Algorithmus zur Datenkompression und einem fortschrittlichen Modellreduktionsansatz wird ein wichtiger Beitrag zur Entwicklung numerischer Algorithmen und Software zur Porenskalensimulation von reaktiven Strömungen auf großen 3D-CT-Bildern sein. Die im Rahmen der Projektarbeit gewonnenen Erkenntnisse über die Porenskalierungsprozesse in katalytischen Filtern werden insbesondere zum Know-how in der Verfahrenstechnik in diesem Bereich beitragen.

## 7.2 Wirtschaftliche Erfolgsaussichten, Nutzen für die Industriepartner

### 7.2.1 Beim Anwendungspartner Umicore

Mit den Ergebnissen des Projekts wird Umicore in die Lage versetzt, die Entwicklung katalytischer Filter zur Abgasbehandlung wesentlich zu beschleunigen. Die im Projekt ML-MORE bezüglich ihrer Validität und ihrer Schnelligkeit um Größenordnung verbesserten Berechnungsmethoden erlauben Umicore den Einsatz von Simulationsmethoden für ein systematisches Screening von neuen chemischen Katalysatoren wie auch der Entwicklung einer geeigneten Prozesstechnik zur Herstellung abgasspezifischer katalytischer Filter.

### 7.2.2 Weiterer industrieller Transfer

Die primär methodenorientierte Forschung und Entwicklung bei den universitären Partnern in Stuttgart und Münster lässt sich auf viele andere industrielle Transportprobleme übertragen, die durch Advektions-Diffusions-Reaktionsgleichungen beschrieben werden, wie beispielsweise die Auslegung von Brennstoffzellen oder auch bei der CO<sub>2</sub>-Sequestrierung. Weiterer wirtschaftlicher Nutzen ergibt sich aus der Anwendung der entwickelten ML- und Simulationsmethoden in industriellen Transferprojekten am Fraunhofer ITWM, beispielsweise zur gezielten Auslegung funktionalisierter Membranen in der Biologie, Chemie und Verfahrenstechnik.

## 7.3 Öffentlichkeitsarbeit, Nachwuchsförderung, Dissemination

Die entstandene ML- und MOR-Software wurde unter Open-Source-Lizenzen zur Verfügung gestellt. Alle wissenschaftlichen Ergebnisse wurden in Fachpublikationen veröffentlicht und auf internationalen Konferenzen vorgestellt. Junge Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler wurden maßgeblich in das Projekt eingebunden. Die im Rahmen des Projekts geschaffenen Mitarbeiterstellen wurden bevorzugt mit jungen Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftlern besetzt. Durch die Anfertigung von Abschlussarbeiten oder die Tätigkeit als wissenschaftliche Hilfskraft wurden Studierende im Rahmen des Projekts an wissenschaftliches Arbeiten herangeführt. Zur Stärkung der Vernetzung der beteiligten Nachwuchswissenschaftlerinnen und Wissenschaftler wurden Verbundseminare durchgeführt.

## 8 Während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordenen Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Weltweit arbeiten verschiedene Forschergruppen an der Simulation von katalytischen Partikelfiltern. Diese Arbeiten weisen teilweise Gemeinsamkeiten mit den im ML-MORE Projekt betrachteten Problemen auf. Die Arbeitsgruppe Votsmeier steht durch regelmäßige Teilnahme an internationalen Konferenzen zum Thema Reaktionstechnik und durch direkten Austausch in engem Kontakt mit diesen

Gruppen. Bislang sind hierbei keine Ergebnisse bekannt geworden, die von unmittelbarer Relevanz für das Projekt ML-MORE sind. Die Entwicklung wird jedoch stetig beobachtet, um neue Erkenntnisse ggf. berücksichtigen zu können.

## 9 Erfolgte und geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse

### 9.1 Referierte Publikationen (z. B. in Fachzeitschriften oder -büchern und referierte Konferenzproceedings)

**[Belot2021]** I. BELOT, D. VIDAL, R. GREINER, M. VOTSMEIER, R. E. HAYES, F. BERTRAND, Impact of washcoat distribution on the catalytic performance of gasoline particulate filters as predicted by lattice Boltzmann simulations. *Chemical Engineering Journal*, 2021, 406, 127040.

**[Bonarens2022]** M. BONARENS, R. GREINER, M. VOTSMEIER, D. VIDAL, Towards a polydisperse packed bed filtration model as a surrogate model for particulate filters. *Journal of Aerosol Science*, 2022, 160, 105900.

**[Doepfel2022]** F. DÖPPEL, M. VOTSMEIER, Efficient machine learning based surrogate models for surface kinetics by approximating the rates of the rate-determining steps. *Chemical Engineering Science*, 2022, 262, 117964.

**[Doepfel2023]** F. DÖPPEL, M. VOTSMEIER, Efficient neural network models of chemical kinetics using a latent asinh rate transformation. *Reaction Chemistry & Engineering*, 2023, 8, 2620-2631.

**[Doepfel2024]** F. DÖPPEL, T. WENZEL, R. HERKERT, B. HAASDONK, M. VOTSMEIER, Goal-Oriented Two-Layered Kernel Models as Automated Surrogates for Surface Kinetics in Reactor Simulations. *Chemie Ingenieur Technik*, 2024, , 96, No. 5, 1–11.

**[Kircher2024]** T. KIRCHER, F. DÖPPEL, M. VOTSMEIER, Global reaction neural networks with embedded stoichiometry and thermodynamics for learning kinetics from reactor data. *Chemical Engineering Journal*, 2024, 485, 149863.

**[Kircher2024a]** T. KIRCHER, F. DÖPPEL, M. VOTSMEIER, Embedding Physics into Neural ODEs to learn Kinetics from Integral Reactors. *Comput. Aided Chem. Eng.*, 2024, 53, 817-822.

**[Doepfel2024a]** F. DÖPPEL, M. VOTSMEIER, Robust Mechanism Discovery with Atom Conserving Chemical Reaction Neural Networks. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2024, accepted.

### 9.2 Andere Veröffentlichungen (z. B. Konferenzbeiträge wie Vorträge und Poster, unreferierte Proceedings, Conference Notes)

Vorträge:

1. F. Döppel and M. Votsmeier. Efficient Implementation of Detailed Surface Kinetics by Neural Network Representations of the Rate-determining Step, 27th International Symposium for Chemical Reaction Engineering, Quebec City, Canada, 2023
2. F. Döppel, T. Kircher and M. Votsmeier, Physics-Embedded Neural Networks for Chemical Kinetics, 28th North American Catalysis Society Meeting, Providence, USA, 2023
3. F. Döppel and M. Votsmeier, Efficient Implementation of Detailed Surface Kinetics by Neural Network Representations of the Rate-determining Step, GDCh Science Forum Chemistry, Leipzig, 2023
4. F. Döppel, T. Kircher and M. Votsmeier, Neural Networks for Detailed Surface Kinetics, 14th European Congress of Chemical Engineering and 7th European Congress of Applied Biotechnology, Berlin, 2023

5. T. Kircher, F. Döppel, K. Wilhelm, M. Votsmeier, Learning Kinetics from Reactor Data with Physics informed Neural Networks. Annual Meeting on Reaction Engineering, Frankfurt, 2023.

Poster:

1. F. Döppel, M. Votsmeier. Representing detailed surface kinetics by Neural Networks, 7th International Symposium on Modeling of Exhaust-Gas After-Treatment, Bad Herrenalb, 2022.
2. F. Döppel, M. Votsmeier. Representing detailed surface kinetics by Neural Networks, Annual Meeting on Reaction Engineering, Würzburg, 2022.
3. F. Döppel, M. Votsmeier. Efficient Implementation of Detailed Surface Kinetics by Neural Network Representations of the Rate-determining Steps, Annual Meeting on Reaction Engineering, Frankfurt, 2023.
4. F. Döppel, T. Wenzel, R. Herkert, B. Haasdonk, M. Votsmeier. Two-Layered Vectorial Kernel Models for Detailed Surface Kinetics using a Goal-Oriented Approach, Annual Meeting on Reaction Engineering, Frankfurt, 2023.

### 9.3 Abschlussarbeiten (Bachelor, Master, Diplom, Staatsexamen, Promotion, Habilitation)

**[Masterthesis Doeppel 2020]:** Effiziente Implementierung der massentransferlimitierten Kinetik in Reaktorsimulationen für die industrielle Ammoniakoxidation, Felix Döppel, Technische Universität Darmstadt, 2020.

**[Masterthesis Kircher 2022]:** Entwicklung Neuronaler Netzwerke unter Berücksichtigung chemischer Zusammenhänge zur effizienten Modellierung von Reaktionskinetik, Tim Kircher, Technische Universität Darmstadt, 2022.

**[Promotion Doeppel 2024]:** Physics-Enhanced Machine Learning for Chemical Kinetics, Felix Döppel, Technische Universität Darmstadt, 2024.



Prof. Dr. Martin Votsmeier

Darmstadt, den 8. Juli 2024

## Kurzbericht

- öffentlich -

**Zuwendungsempfänger:** Technische Universität Darmstadt (Förderkennzeichen: 05M20RDA)

**Projektleitung:** Prof. Dr. Martin Votsmeier

### Verbund:

#### *Wissenschaftliche Projektpartner:*

- Universität Münster, Prof. Dr. Mario Ohlberger, Institut für Analysis und Numerik, Einsteinstraße 62, 48149 Münster
- Universität Stuttgart, Prof. Dr. Bernard Haasdonk, Institut für Angewandte Analysis und Numerische Simulation, Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart
- Fraunhofer-Institut für Techno- und Wirtschaftsmathematik, Prof. Dr. Oleg Iliev und Dr. Konrad Steiner, Abteilung Strömungs- und Materialsimulation, Fraunhofer-Platz 1, 67663 Kaiserslautern
- TU Darmstadt und Umicore AG & Co. KG, Prof. Dr. Martin Votsmeier, Peter-Grünberg-Straße 8, 64287 Darmstadt

#### *Industriepartner:*

- Umicore AG & Co. KG, Dr. Manuel Gensch, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau

**Thema:** ML-MORE: Maschinelles Lernen und Modellordnungsreduktion zur Vorhersage der Effizienz katalytischer Filter.

## 1. Ziel und Inhalt des Projektes

Das Verbundprojekt ML-MORE adressierte die Herausforderungen der Modellierung und Simulation reaktiven Stofftransports in porösen Medien, welche die Basis vieler industrieller Prozesse bilden. Dazu gehören beispielsweise katalytische Filter für Abgase, die in diesem Projekt durch die Kooperation mit Umicore im Fokus standen, sowie Brennstoffzellen und photovoltaische Zellen. Solche Simulationen können große Datenmengen generieren, wodurch ein effizientes Design optimiert werden kann. Gleichzeitig sind diese Simulationen jedoch auch zeitintensiv und können von einer Vielzahl von Parametern abhängen. Darüber hinaus bleibt das Potenzial, vorhandene Experimentaldaten wiederzuverwerten, in bisherigen Herangehensweisen ungenutzt.

Um diesen Engpass zu beseitigen, wurde in diesem Projekt eine integrative Plattform entwickelt, die auf modernen datenbasierten Methoden des maschinellen Lernens (ML) basiert. Das Ziel war es, zuverlässige und schnelle prädiktive Modelle für die Vorhersage chemischer Konversionsraten bereitzustellen. Hierfür waren mehrere methodische Komponenten erforderlich, darunter klassische Simulationsverfahren auf der Porenskala, Modellordnungsreduktion sowie maschinelles Lernen. Aufgrund der hohen Kosten

klassischer Simulationsverfahren wurden zunächst Modellordnungsreduktionsmethoden entwickelt, um reduzierte Modelle für den betrachteten instationären reaktiven Transport zu erstellen. Damit lassen sich große Mengen an Trainingsdaten generieren, die dann im Training für Methoden des maschinellen Lernens verwendet werden können. Hierbei fokussierten wir uns vor allem auf mehrschichtige Kernel-basierte Lernverfahren. Insgesamt gelang es in diesem Forschungsprojekt, sämtliche dieser Methoden in einem prädiktiven hierarchischen ML-Werkzeug (RB-ML-ROM Framework) zu integrieren. Dieses Werkzeug unterstützt Unternehmen bei der Entwicklung neuartiger katalytischer Filter und kann auf viele weitere ähnliche Prozesse übertragen werden kann.

Nachfolgend ist die Verbundstruktur der beteiligten Projektpartner im Projekt ML-MORE sowie deren Interaktion dargestellt (Abb. 1). Die Projektkoordination erfolgte durch die UMS (Ohlberger).

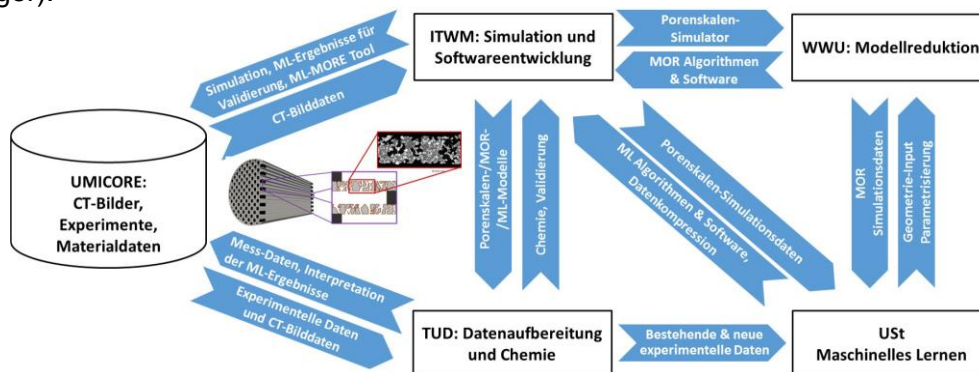


Abbildung 1 Verbundstruktur.

## 2. Ablauf und Ergebnisse des Vorhabens

Das Gesamtvorhaben war in fünf Arbeitspakete strukturiert, die den jeweiligen Projektpartnern zugeordnet waren. Diese sind [AP 1] Modellreduktion, UMS (Ohlberger); [AP 2] Maschinelles Lernen, USt (Haasdonk); [AP 3] Numerische Simulation und Softwareintegration, ITWM (Iliev/Steiner); [AP 4] Datenaufbereitung und Modellierung chemischer Reaktionen, TUD (Votsmeier); [AP 5] CT-Bilder und Materialdaten, Industriepartner UMICORE (Gieshoff).

Im Teilprojekt „Datenaufbereitung und Modellierung chemischer Reaktionen“ (AP4, TUDa (Votsmeier)) wurde der in ML-MORE von den mathematischen Partnern entwickelte Simulationscode auf die Optimierung von katalytisch beschichtete Filter angewendet. Dazu wurden Modelle für den Gesamfilter entwickelt, die es erlauben, aus dem von den Verbundpartnern bereitgestellten Modellen für die Strömung in der Filterwand auf das Verhalten des gesamten Filters zu schließen. Mithilfe des in ML-MORE entwickelten Simulators wurden erstmals Simulationen durchgeführt, die auch die  $\mu$ -Poren innerhalb der Katalysatordomänen eines beschichteten Filters auflösen. Diese Simulationen bieten dem Industriepartner Umicore wichtige Erkenntnisse zur Optimierung der beschichteten Filter. Zusammen mit dem Projektpartner Uni Stuttgart wurde eine neue Maschinenlernmethode zur effizienten Abbildung komplexer Reaktionssysteme entwickelt. Schließlich wurde basierend auf den Ergebnissen des Projekts ein vereinfachtes Simulationstool für katalytisch beschichtete Partikelfilter erstellt und zusammen mit dem Industriepartnerpartner Umicore zur Optimierung des Filterdesigns angewendet.

### 3. Darstellung der wesentlichen Ergebnisse und deren konkreter Nutzen sowie ggf. die Zusammenarbeit mit anderen Forschungseinrichtungen

Im Rahmen unseres Teilprojektes (AP 4, TUDa) haben wir die folgenden wichtigsten Ergebnisse erzielt:

- Wir haben neue Methoden entwickelt um physikalisch informierte Neuronale Netze als Surrogatmodelle für die Simulation von chemischen Reaktionen einzusetzen.
- Zusammen mit der Uni Stuttgart wurden erstmals tiefe Kernel Modelle als Surrogatmodelle für chemische Reaktionsmodelle eingesetzt.
- Es wurde ein neues verbessertes 1D Modell zur Beschreibung der Strömung in den Kanälen eines Filters entwickelt.
- Zur Parametrierung des 1D Modells wurden neue Verfahren zur Vermessung der lokalen Permeabilität der Filterwand entwickelt.
- Es wurde ein verbessertes Filtrationsmodell für katalytisch beschichtete Partikelfilter entwickelt.
- Durch die Anwendung von hochauflösender Nano-Tomographie konnten erstmals Simulationen durchgeführt werden, die die Porenstruktur innerhalb der Katalysatoromänen in der Filterwand auflösen.
- Dem Industriepartner Umicore wurde ein transientes 1D-Modell für einen mit SCR Katalysator beschichteten Partikelfilter zur Verfügung gestellt.
- Das Modell wurde gemeinsam mit dem Industriepartner validiert und zur Weiterentwicklung der Partikelfilter angewendet.

Für das Arbeitspaket AP 4 (TUDa) konnten damit die vereinbarten Ziele und Meilensteine erreicht werden.

Mit den Ergebnissen des Projekts wird Umicore in die Lage versetzt, die Entwicklung katalytischer Filter zur Abgasbehandlung wesentlich zu beschleunigen. Die im Projekt ML-MORE bezüglich ihrer Validität und ihrer Schnelligkeit um Größenordnung verbesserten Berechnungsmethoden erlauben Umicore den Einsatz von Simulationsmethoden für ein systematisches Screening von neuen chemischen Katalysatoren wie auch der Entwicklung einer geeigneten Prozesstechnik zur Herstellung abgasspezifischer katalytischer Filter.

Die primär methodenorientierte Forschung und Entwicklung bei den universitären Partnern in Stuttgart und Munster lässt sich auf viele andere industrielle Transportprobleme die durch Advektions-Diffusions-Reaktionsgleichungen beschrieben werden, übertragen, wie beispielsweise die Auslegung von Brennstoffzellen oder auch bei der CO<sub>2</sub>-Sequestrierung. Weiterer wirtschaftlicher Nutzen ergibt sich aus der Anwendung der entwickelten ML und Simulationsmethoden in industriellen Transferprojekten am Fraunhofer ITWM beispielsweise zur gezielten Auslegung funktionalisierter Membranen in der Biologie, Chemie und Verfahrenstechnik.

Prof. Dr. Martin Votsmeier

Darmstadt, den 8. Juli 2024