

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Schlussbericht

Verbund: 05M2020 - ML-MORE

Zuwendungsempfänger: Universität Stuttgart
Projektleitung: Prof. Dr. Bernard Haasdonk
E-Mail: haasdonk@mathematik.uni-stuttgart.de
Förderkennzeichen: 05M20VSA
Förderzeitraum: 01.04.2020 - 31.12.2023
Zuwendung: 289.428,02 €
Projektträger: Projektträger DESY

Zusätzlicher Kontakt: brit.steiner@mathematik.uni-stuttgart.de
Zusätzlicher Name: Brit Steiner

Genutzte Großgeräte:	Labor	Gerät	Experiment
Diplomarbeiten:	0		
Dissertationen:	1		
Habilitationen:	0		
Referierte Publikationen:	14		
Andere Veröffentlichungen:	8		
Patente:	0		
Bachelorarbeiten:	0		
Masterarbeiten:	0		
Staatsexamen:	0		

Dieser Bericht wurde beim Projektträger über einen individuellen Online-Zugang vom Projektleiter eingereicht und am 30.06.2024 10:32 für eine Veröffentlichung freigegeben.

Schlussbericht

Zuwendungsempfänger: Universität Stuttgart (Förderkennzeichen: 05M20VSA)

Projektleitung: Prof. Dr. Bernard Haasdonk

Verbund:

Wissenschaftliche Projektpartner

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

Industriepartner

- Umicore AG & Co. KG, Dr. Jürgen Gieshoff, 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, wie beispielsweise katalytische Filter für Abgase, die in diesem Projekt durch die Kooperation mit Umicore im Fokus standen. Weitere Beispiele sind Brennstoffzellen oder photovoltaische Zellen. Solche Simulationen können große Datenmengen generieren, wodurch ein effizientes Design optimiert werden kann, aber gleichzeitig sind solche Simulationen 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 von klassischen 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 fokuzierten 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, das Unternehmen bei der Entwicklung neuartiger katalytischer Filter unterstützt und 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).

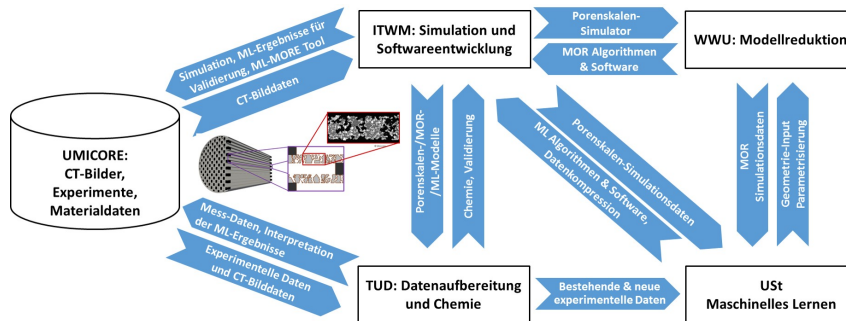


Abbildung 1: Verbundstruktur.

Als Verbundpartner USt haben wir Algorithmen des Maschinellen Lernens (ML) beigesteuert. Dies umfasste einerseits Methodenentwicklung, deren Analysis und andererseits auch softwaretechnische Realisierung. Die Arbeitsgruppe hat open-source Python Pakete der entwickelten Lernverfahren erstellt, welche in der Lage sind, große Trainingsmengen zu verarbeiten. Die Trainingsdaten bestehen im Rahmen des Projektes im Wesentlichen aus hochdimensionalen und reduzierten Simulationsergebnissen der Projektpartner. In Kooperation mit UMS wurde zudem ein integrativer Ansatz (RB-ML-ROM) entwickelt, der es ermöglicht klassische Simulationsverfahren mit Modellordnungsreduktion und maschinellem Lernen in einem effizienten hierarchischen und zertifizierten Modell zu verbinden. Dieser Ansatz ist innovativ, da er durch die hierarchische Integration auch für das maschinelle Lernen eine rigorose a posteriori Fehlerkontrolle erlaubt. Das gesamte resultierende RB-ML-ROM Framework wurde in einer Open-Source-Softwareentwicklung umgesetzt und in numerischen Experimenten validiert.

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 Voxelvektoren 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 UMS wurden 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 wurden von USt entwickelt, um die heterogenen Daten zu kalibrieren und nichtlineare prädiktive Modelle zur Effizienzvorschau 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 Porenskalengeome-

trie 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.

Im Bereich des Maschinellen Lernens und der Approximationstheorie stellen Kernmethoden eine sehr effiziente und elegante Klasse von Methoden dar [9, 10, 11]. Aufgrund der Verwendung von Kernen sind diese Verfahren mathematisch in entsprechenden Reproduzierenden Kern-Hilberträumen interpretierbar und analysierbar. Mittels geeigneter Trainingsverfahren ist die Modellerstellung sehr effizient und schnell möglich. Angesichts neuester Einsichten zur Lösungsdarstellung von mehrschichtigen, d.h. "tiefen" Kernmodellen, sind diese Verfahren sehr vielversprechend [1], indem konkret tiefe Kern-Netzwerke als flache Netze mit speziellem tiefen Kern interpretiert werden können. Insbesondere gegenüber Neuronalen Netzen stellen diese Aspekte wesentliche Vorteile dar. Dank Dünnbesetztheit (sparsity) der Koeffizientenvektoren/Matrizen sind die Kernmodelle sehr schnell auswertbar. Dies macht sie sehr interessant für den Einsatz in der Surrogatmodellierung im Kontext von zeitkritischen Anwendungen [7]. Für den Fall von vektoriiellen Ausgabegrößen (multi-output, multi-target), haben wir den sogenannten *Vectorial Kernel Orthogonal Greedy Algorithm* (VKOGA) entwickelt und analysiert [12]. Insbesondere lässt sich für die "P-Greedy" Variante Quasi-Optimalität durch entsprechende Konvergenzraten beweisen [6]. Neben mathematischer Zugänglichkeit sprechen hervorragende numerische Ergebnisse in Anwendungen für diese Klasse von Verfahren. Ein hervorragendes Abschneiden anhand eines 1D-Modells der Zweiphasenströmung in porösen Medien mit Vergleich zu Dünngittern und stochastischem Galerkin findet sich in unserer Arbeit [4]. Im Kontext der Simulation von instationären Strömungen wird im Vergleich zu Neuronalen Netzen, Random Forests, etc. die beste Effizienz durch Kernmethoden (VKOGA, SVM) beobachtet [2]. In Anwendungen der Biomechanik konnten wir Beschleunigungen um enorme Fakto-

ren bis zu 10^6 gegenüber herkömmlichen finite Volumen Diskretisierungsverfahren erreichen [5, 13]. Im vorliegenden Projekt konnten wir auf unserer Software zu VKOGA¹ aufbauen.

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 basiert auf Maschinelles Lernen, wobei auf simulierte Trainingsdaten zurückgegriffen wird. Um ausreichend viele Trainingspunkte für das ML zu erhalten wurden neue Modellreduktionsverfahren entwickelt und angewandt, welche wesentlich schneller sind und damit mehr Samples produzieren können, als das volle Porenkalen-Modell. Das Arbeitsprogramm wurde in fünf Arbeitspaketen gegliedert, die eng ineinander greifen:

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	UMICORE (Gieshoff)

Als Verbundpartner **USt** sollten wir Algorithmen des Maschinellen Lernens (ML) beisteuern. Dies umfasste einerseits Methodenentwicklung, andererseits auch softwaretechnische Realisierung. Die Arbeitsgruppe sollte open-source Python Pakete der entwickelten Lernverfahren erstellen, welche mittels Parallelisierung in der Lage sind, große Trainingsmengen zu verarbeiten. Die Trainingsdaten bestehen aus hochdimensionalen und reduzierten Simulationsergebnissen der Projektpartner.

Für das AP 2: Maschinelles Lernen waren 3 Arbeitspakete geplant, deren Planung und Ablauf im folgenden erläutert werden.

Arbeitspaket AP 2.1 (USt.1):

In diesem Paket wurde die Entwicklung und Analyse von grundlegenden vektorwertigen Lernmethoden durchgeführt. Der Ausgangspunkt solcher Lernverfahren ist das Vorliegen eines Trainingsdatensatzes $\{x_i\}_{i=1}^N \subset \Omega$, Zielwerte $\{y_i\}_{i=1}^N \subset \mathbb{R}^q$. Hieraus werden Kernmodelle der Form

$$s_n(x) = \sum_{i=1}^n \alpha_i k(x, x_i)$$

erzeugt. Hierbei ist $k : \Omega \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}$ eine sogenannte Kernfunktion, $\alpha_i \in \mathbb{R}^q$ sind die Koeffizientenvektoren und x_i die Zentren. Als grundlegende Methode wurden β -Greedy Methoden entwickelt. Hierbei werden die Zentren inkrementell gewählt basierend auf einem Auswahlkriterium, welches in diesem Fall von der Form

$$x_{n+1} = \operatorname{argmax}_{x \in X_n} |(f - s_n)(x)|^\beta \cdot P_n(x)^{1-\beta}$$

¹<https://gitlab.mathematik.uni-stuttgart.de/santinge/VKOGA>

ist: Diese Verfahren verallgemeinern durch diese Parametrisierung bekannte Ansätze, z.B. das P -greedy ($\beta = 0$), oder das f -greedy Verfahren ($\beta = 1$). In [WSH23] haben wir das Konvergenzverhalten in Abhängigkeit des Parameters β untersucht. Die hierbei gezeigten Konvergenzraten für zieldatenabhängige Verfahren ($\beta \neq 0$) sind besser als die für zieldatenunabhängige, was mit der experimentellen Evidenz übereinstimmt. Im Weiteren lieferten wir analytische Ergebnisse zur Stabilität von Konvergenzraten. Wir zeigen, dass Konvergenzraten auf Teilgebiete übertragen werden können, auch wenn das Teilgebiet kein Lipschitzgebiet ist [WSH24]. Im Bereich der Analyse liefern wir zudem ein Ergebnis zum Schließen der sogenannten $d/2$ -Gap von [8]. In [WEN23] haben wir dazu ein Maß für die Glattheit in Form von Interpolationsräumen eingeführt. Darauf aufbauend zeigen wir für eine Klasse von endlich glatten Radialbasisfunktionskernen (z.B. Matern- oder Wendland-Kerne), dass eine Funktion, die mit einer gegebenen Rate approximiert werden kann, eine entsprechende Glattheit besitzt und umgekehrt.

Diese β -Greedy Methoden wurden auf verschiedene Weisen weiterentwickelt. Motiviert durch die partiellen Differentialgleichungen, die die dem Projekt zugrundeliegende poröse Medien Modelle beschreiben, wurden die β -greedy Verfahren für Approximation von elliptischen partiellen Differentialgleichungen erweitert. Eine PDE der Form

$$\begin{aligned} Lu &= f \text{ in } \Omega \subset \mathbb{R}^d \\ Bu &= g \text{ auf } \partial\Omega, \end{aligned} \tag{1}$$

wird dabei als Approximationsproblem aufgefasst, wodurch sich verallgemeinerte β -greedy Methoden anwenden lassen und mit einem greedy Algorithmus Kollokationszentren auf dem Rand und im Inneren des Gebietes ausgewählt werden. Hierzu werden die β -greedy Methoden auf PDE- β -greedy Methoden erweitert. Mit Kern-Kollokation und Greedy-Methoden können so PDEs ohne Generierung von Gittern gelöst werden. Die Konvergenzraten der präsentierten Algorithmen PDE- P -greedy und PDE- f -greedy wurden analysiert und Fehlerschranken in Abhängigkeit von der Anzahl der von den greedy-Methoden ausgewählten Punkte bewiesen. Auch die Verteilung der Punkte für verschiedene Greedy-Varianten wurde untersucht. Wie in Abbildung 2 dargestellt führt die P -greedy- Auswahl zu gleichmäßig verteilten Zentren über das gesamte Gebiet während die f -greedy-Wahl zu einer Ansammlung von Zentren in der Nähe des Gebietsrandes führt. Diese datenabhängige und problemangepasste Wahl der f -greedy Zentren resultierte auch in einer exakteren Approximation der Lösung u von Gleichung 1.

Zur Analyse der Konvergenz der PDE-greedy Verfahren wurde die Powerfunktion (welche eine worst-case Fehlerschranke ist) sowohl theoretisch als auch numerisch untersucht. Einige Ergebnisse sind für verschiedene Wahlen der Kernfunktion in Abbildung 3 dargestellt. Die theoretischen Abfallraten (schwarz gestrichelt) und die tatsächlichen Raten (blau) stimmen asymptotisch überein. Desweiteren ist in Abbildung 4 die Zieldatenabhängigkeit der Konvergenzrate visualisiert. Man erkennt, dass ein zieldatenabhängiges Auswahlkriterium ($\beta > 0$) zu einer schnelleren Konvergenz führt. Diese Arbeit wurde in einem entsprechender Preprint veröffentlicht [WWSH22].

Um die bisher flachen Kernmodelle ausdrucksstärker zu machen, wurden diese zu zweischichtigen Kernen erweitert. Das entsprechende Verfahren haben wir 2L-VKOGA genannt [WMP24, WHKOF]. Hierbei werden die Formparameter von radialen Kernen zu allgemeinen linearen Abbildungen verallgemeinert. Diese linearen Abbildungen können dann als erste Schicht eines zweischichtigen Kernmodells interpretiert werden, welche verschiedene Richtungen des Eingaberaums entsprechend ihrer Wichtigkeit skalieren. Durch effiziente ML-Optimierung wird eine geeignete lineare Abbildung für den zu approximierenden Datensatz gefunden. Dies entspricht der Optimierung des zugrunde liegenden Kerns. Die

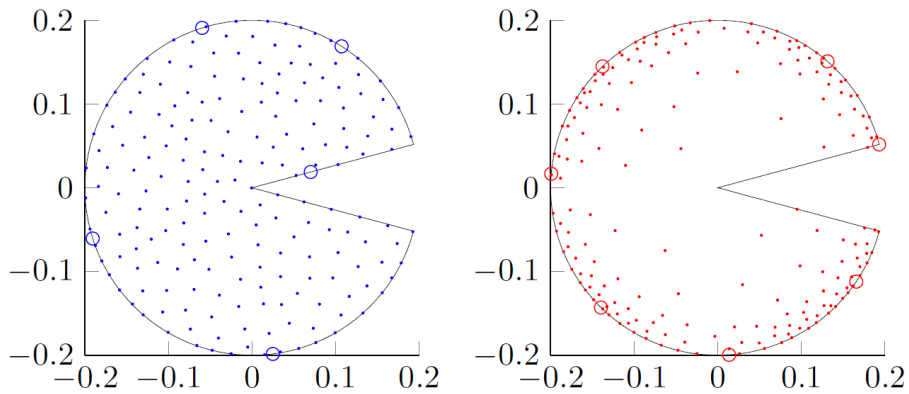


Abbildung 2: Vergleich der Verteilung der gewählten Kollokationspunkte von PDE- P -greedy (blau) und PDE- f -greedy (rot). Kollokationspunkte im Inneren sind durch Punkte dargestellt, während Kollokationspunkte auf dem Rand durch kleine Kreise visualisiert sind. Während die PDE- P -greedy Punkte gleichmäßig verteilt sind, sind die PDE- f -greedy Punkte adaptiv zur betrachteten PDE gewählt.

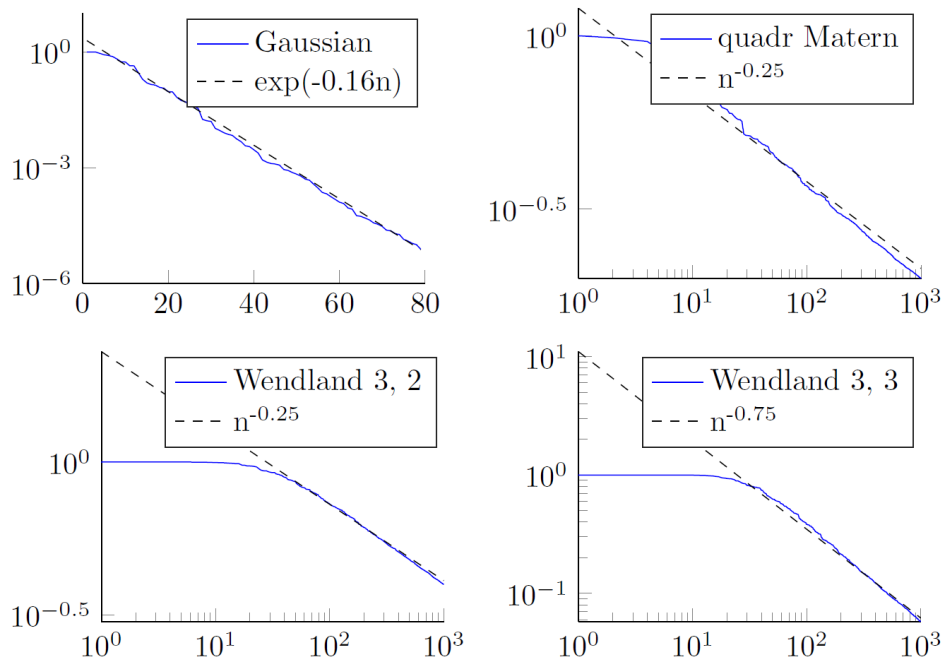


Abbildung 3: Abfall der Powerfunktion (blau) (y -Achse) über der Anzahl der gewählten Kollokationspunkte (x -Achse) für verschiedene Kerne (Gauß, Matérn, Wendland). Die schwarz gestrichelten Linien zeigen die theoretisch zu erwartende Konvergenz an.

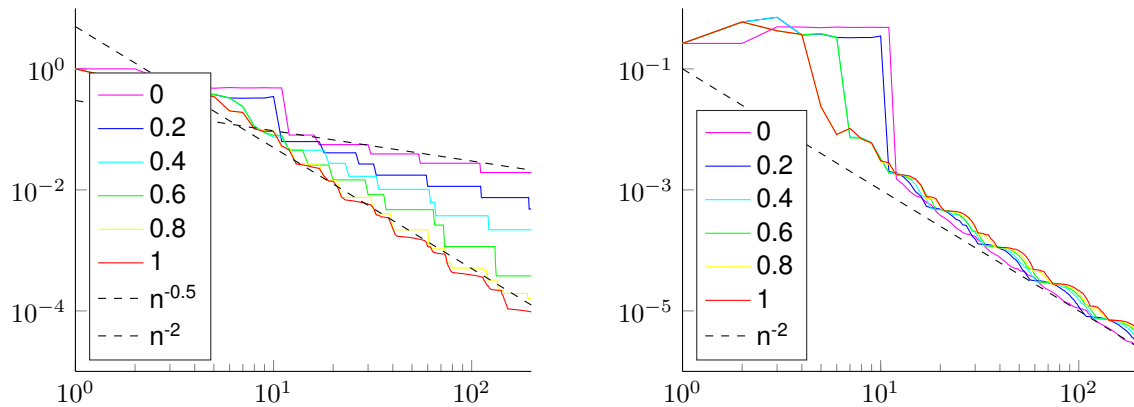


Abbildung 4: Illustration der Konvergenz verschiedener PDE- β -greedy Algorithmen: Visualisierung von $\sup_{\lambda \in \Lambda} |\lambda(u - s_n^\beta)|$ (links) und $\|u - s_n^\beta\|_{L^\infty(\Omega)}$ (rechts) für $\beta \in \{0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1\}$ über die Zahl n der gewählten Funktonale (x -Achse). Im linken Plot ist die Zielfunktionsabhängigkeit der Konvergenzrate klar ersichtlich. Der rechte Plot zeigt nicht mehr eine Zielfunktionsabhängigkeit der Konvergenzrate. Grund hierfür sind die unterschiedlichen Normen, die verwendet wurden.

erste Schicht dieser so konstruierten Kernmodelle wurde mathematisch analysiert sowie Konvergenzresultate für resultierende Kernsurrogate bewiesen.

In Zusammenarbeit mit TUD wurden diese Kernmethoden dann zum Erlernen eines Anwendungssatzes eingesetzt [DWHHV24]. Bei diesem wurden logarithmierte Bildungs- und Verbrauchsraten in Abhängigkeit von chemischen Eingabegrößen wie Partialdrücken und Temperatur modelliert. Zum Erlernen des Datensatzes wurden sowohl standard flache Kernmethoden (VKOGA) als auch tiefe Kernmethoden, insbesondere zweischichtige Kernmethoden (2L-VKOGA) verwendet. Im Weiteren wurde die Klasse der Greedy-Auswahlkriterien um ein zielorientiertes Auswahlkriterium (goal-oriented-greedy) erweitert. Hier wird, im Gegensatz zum f -greedy, welches den Fehler in den logarithmisierten Bildungs- und Verbrauchsraten minimiert, die eigentliche Zielgröße, der Fehler in der Nettobildungsrate minimiert. Wie in den Abbildungen 5 und 6 gezeigt führt sowohl die Verwendung von zweischichtigen Kernmodellen als auch die neuen problemangepassten greedy Auswahlkriterien zu verbesserten Konvergenzraten. Beim Training werden mit dem goal-oriented-greedy f -greedy Datenpunkte nahe des chemischen Gleichgewichts (PEI = 0.5) ausgewählt (siehe Abbildung 7). Die genaue Approximation der Raten nahe des chemischen Gleichgewichts wurde in [3] als entscheidend für eine gute Modellvorhersage durch Neuronale Netze erkannt. Durch Auswahl von Zentren mit dazugehörigen Raten in der Nähe des chemischen Gleichgewichts kann so eine verbesserte Vorhersage erreicht werden. Nach unserem Verständnis liegt das daran, dass damit Auslöschungseffekte vermieden werden, die beim Vorhersagen von Nettobildungsraten nahe des chemischen Gleichgewichts auftreten. Mit den Erkenntnissen aus Abbildung 7 erhält das Training mit den problemangepassten greedy Auswahlkriterien so eine chemische Interpretation.

Die so erzeugten Kernmodelle können Reaktorsimulationen mit detaillierter Oberflächenkinetik akkurat reproduzieren (siehe Abbildung 8 und reduzieren gegenüber dem vollen Modell die Rechenzeit um mehr als zwei Größenordnungen.

Desweiteren wurden adaptiven Kernmethoden entwickelt. Diesen liegt ein Fehlerschätzer zugrunde mithilfe dessen entschieden wird, ob bei einer Abfrage die Genauigkeit des Kern Modells ausreichend ist. Wir betrachten hierzu zwei Verfahren:

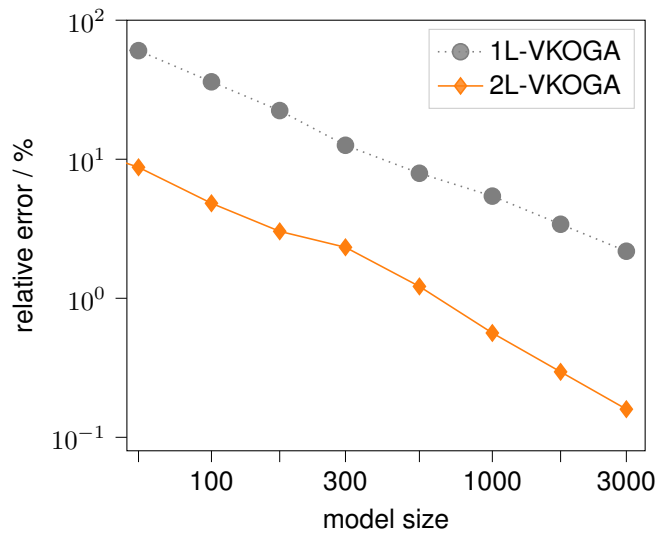


Abbildung 5: Relativer Testdatensatz-Vorhersagefehler über die Anzahl der ausgewählten Datenpunkte (Modellgröße) aus den 25000 Trainingsdatenpunkten sowohl für einschichtige (1L) als auch zweischichtige (2L) Kerne, die O₂-Quellterme approximieren.

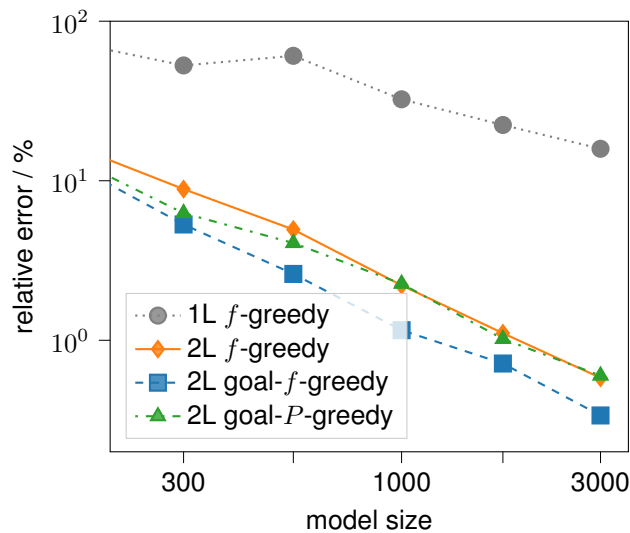


Abbildung 6: Relativer Testdatensatz-Vorhersagefehler über die Anzahl der ausgewählten Datenpunkte (Modellgröße) aus den 25000 Trainingsdatenpunkten sowohl für einschichtige (1L) als auch zweischichtige (2L) Kerne, die CO-Quellterme approximieren. Die zweischichtigen Kerne schneiden durchweg besser ab als die einschichtigen Standard-Kerne.

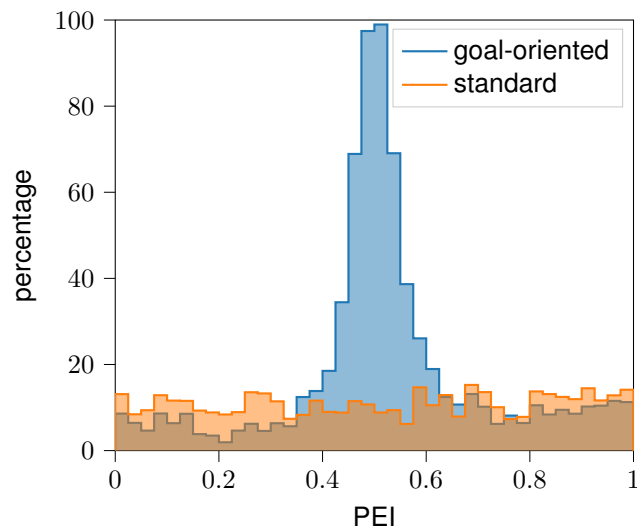


Abbildung 7: Visualisierung des Prozentsatzes der Trainingsdatenpunkte, die als Zentren (aus dem jeweiligen Histogramm-Bin) ausgewählt wurden, in Abhängigkeit vom partiellen Equilibriumsindex $PEI = r_{fwd}/r_{fwd} + r_{rev}$ für Standard- und zielorientierte Kern-Modelle.

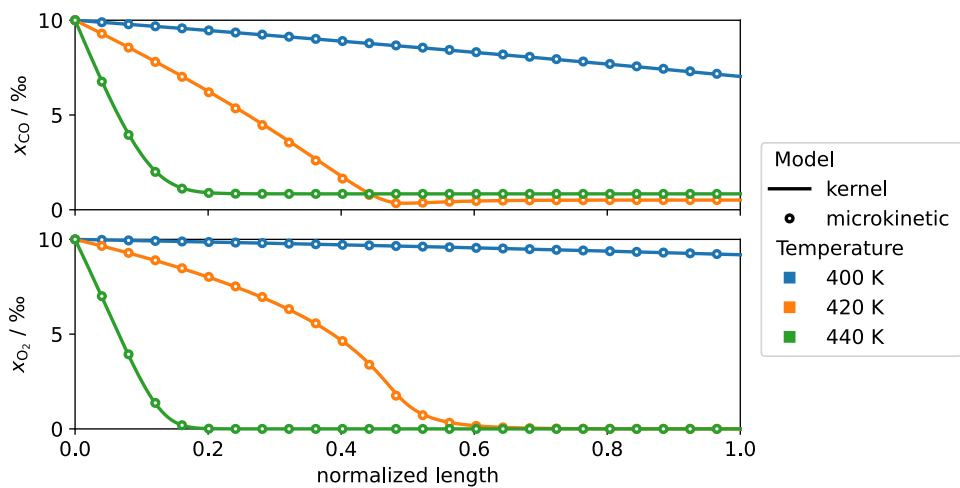


Abbildung 8: Die vorhergesagten Konzentrationsprofile über die Länge eines plug-flow-reaktors (Linien) stimmen mit der exakten Lösung mit dem mikrokinetischen Modell (Symbole) überein, wie für drei verschiedene Temperaturen gezeigt.

1. „Static“: Nach der Trainingsphase wird das Modell nicht mehr verändert. Es wird lediglich zur Vorhersage von Quelltermen verwendet. Dies entspricht dem Standardverfahren.
2. „Online-adaptiv“: Während des Einsatzes, zusätzlich zur Vorhersage der Quellterme, wird der Vorhersagefehler geschätzt. Wenn er einen Schwellenwert von 5% überschreitet, wird die volle Modelllösung berechnet, der neue Datenpunkt wird dem Modell als Zentrum hinzugefügt, und der lokale Fehler sinkt auf Null.

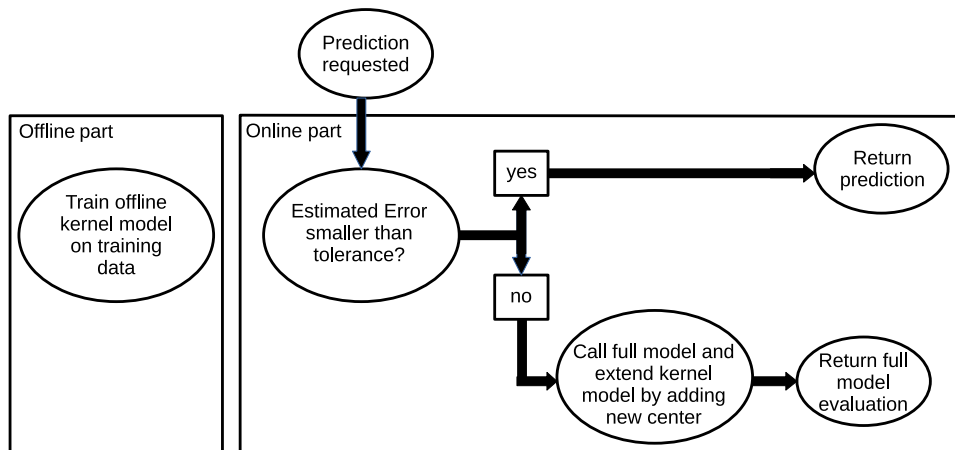


Abbildung 9: Schematischer Workflow für ein online-adaptives Kern Modell.

Wir beobachten, dass obwohl das statische Modell außerhalb seines Trainingsbereichs betrieben wird, es plausible Ergebnisse liefert: Es zeigt eine geringe Aktivität unterhalb von 600 Kelvin, einen maximalen Umsatz um 750 Kelvin und einen leicht abnehmenden Umsatz aufgrund der Equilibriumsbegrenzung bei höheren Temperaturen (Abb. 10). Allerdings weichen diese Ergebnisse von der korrekten Lösung um fast 20% ab und erreichen den korrekten Gleichgewichtszustand nicht. Im Gegensatz dazu ist das online-adaptive Modell exakt und sagt die Umwandlung bei jeder Temperatur exakt voraus (Abb. 10). Jedoch erfordert es 70-mal weniger Funktionsaufrufe des kostenintensiven mikrokinetischen Modells als die volle Lösung, was zu einer entsprechenden Verringerung der Datengenerierungskosten führt (Abb. 11). Künftige Anwendungen des Kernmodells in diesem Temperaturbereich werden keine zusätzlichen Aufrufe des vollen Modells mehr erfordern. Daher wächst der rechnerische Vorteil bei wiederholter Verwendung.

Dabei ist es wichtig, den lokalen Charakter der Kern-Modelle zu beachten. Gängige Methoden des Maschinellen Lernens wie neuronale Netze neigen dazu, alte Informationen zu vergessen, wenn neue Informationen hinzukommen. Wenn ein solches Modell schrittweise trainiert wird, ist es wahrscheinlich, dass es bei der Aufgabe, für die es ursprünglich trainiert wurde, an Genauigkeit verliert. Kern-Modelle hingegen bestehen aus lokalen Funktionen, wie z. B. Gauß-Funktionen. Das Hinzufügen eines neuen Zentrums bei Wasser-Gas-Verschiebungs-Reaktionsbedingungen beeinflusst das Verhalten des Modells im ursprünglichen Trainingsbereich kaum.

Arbeitspaket AP 2.2 (USt.2):

In diesem Arbeitspaket wurden strukturierte tiefe Kernnetzwerke entwickelt und analysiert (structured deep kernel network, SDKN) [WSH21] sowie in einer Anwendung validiert [WKBSH22]. Abbildung 12

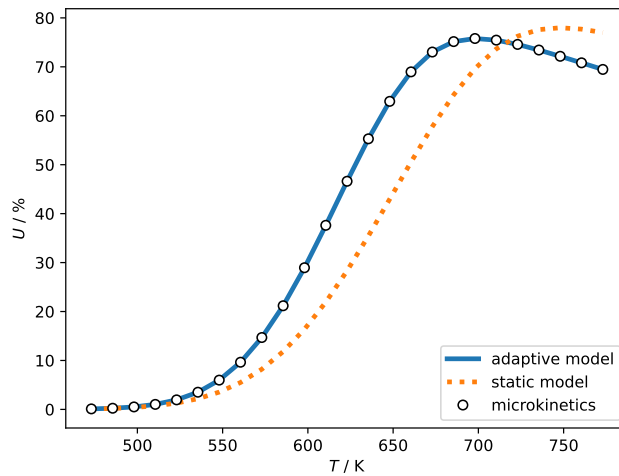


Abbildung 10: CO-Umsetzung U in einem Wasser-Gas-Shift-Reaktor nach dem online-adaptiven Kern-Modell (durchgezogene Linie), dem statischen Kern-Modell (gepunktete Linie) und dem vollen kinetischen Modell (Symbole) für verschiedene Temperaturen T .

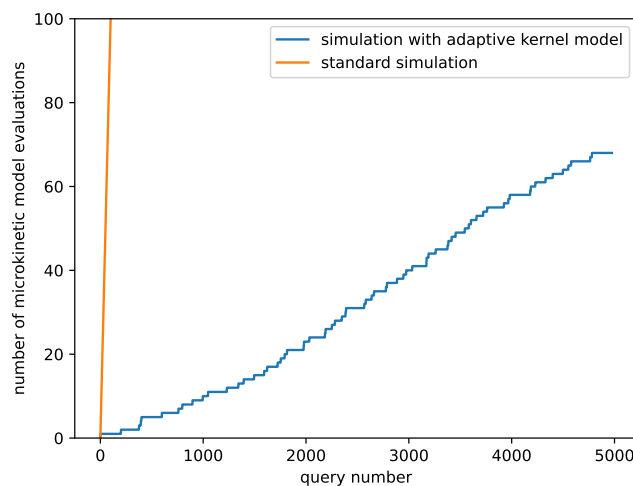


Abbildung 11: Anzahl der Auswertungen des mikrokinetischen Modells einer Standardsimulation eines Pfropfenströmungsreaktors im Vergleich zu einer Simulation, die das online-adaptive Kern-Modell als Ersatz für die Oberflächenkinetik verwendet. Bei der Standardsimulation wird das mikrokinetische Modell für alle 5000 Abfragen ausgewertet. Das adaptive Kern-Modell fordert nur dann Auswertungen an, wenn der geschätzte Vorhersagefehler über 5% liegt.

zeigt die beispielhafte Struktur eines SDKNs, welches Ähnlichkeiten mit einem neuronalen Netz aufweist. Diese wurden mit Hilfe des open-source Frameworks PyTorch implementiert und stehen in einer Programm-bibliothek für zukünftige Projektanwendungen zur Verfügung.

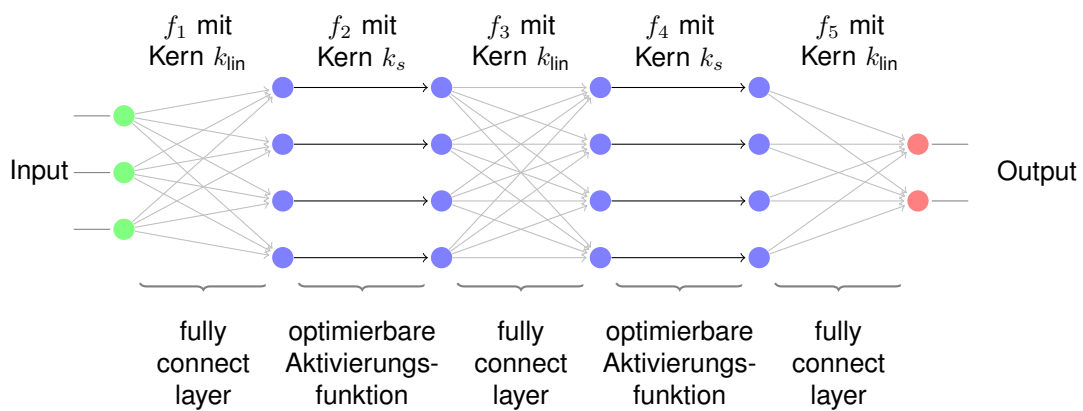


Abbildung 12: Visualisierung eines strukturierten tiefen Kernnetzwerkes (SDKN). Es werden zwei Arten von Kernen verwendet, nämlich lineare Kerne k_{lin} sowie Kerne k_s , die jede Input-Dimension einzeln betrachten. Für Details wird auf [WSH21, WKBSH22] verwiesen. Die Unterschweifungen zeigen die Ähnlichkeiten zu neuronalen Netzen auf.

In Zusammenarbeit mit ITWM und UMS wurde ein hierarchisches RB-ML-ROM-Modell, welches ein volles Modell, ein reduziertes Modell und ML Modelle kombiniert, entwickelt [GHIOSTWY22]. Dieses Projekt demonstrierte einen ersten gemeinsamen Workflow von ITWM, USt und UMS (insbesondere das Zusammenspiel der jeweiligen Software-Pakete). In weiterer Zusammenarbeit mit UMS wurde das hierarchische Modell verfeinert, so dass nun rigorose Fehlerschranken, d.h. Zertifizierung der Vorhersagen möglich war, und damit Steuerung der Modellhierarchie möglich wurde [HKOSW23]. Initial wurde hierzu die Anwendbarkeit verschiedener ML Modelle auf dem sogenannten GOR1 Modell untersucht. Dabei schnitten flache Kernmodelle mit geeignet gewählten Hyperparametern am besten ab, aber auch neuronale Netze und tiefe Kernmodelle lieferten gute Ergebnisse, wenn auch mit höherem Trainingsaufwand. Dies wurde in einem erweiterten Abstract für die Mathmod 2022 aufbereitet [HOS22]. Darauf aufbauend wurde die Anwendung des adaptiven RB-ML-ROM Modells auf das GOR1 Modellproblem untersucht. Dieses Modell kann adaptiv Ausgabegrößen aus verschiedenen aggregierten Datenquellen — FOM, ROM und ML — erlernen. Dazu wurden schließlich zwei Problemstellungen entworfen: Einerseits ein Optimierungsbeispiel und andererseits ein von USt und UMS entworfenes Monte-Carlo Beispiel, welches auf den Fall von vielen erforderlichen Auswertungen abzielt. Nach dem Festlegen eines geeigneten Beispiels wurden verschiedene Untersuchungen zum geeigneten Auffinden von Hyperparametern durchgeführt (Skalierung von Input und Output, Gewichtung von Daten, Hyperparameter der Lernalgorithmen, Nutzen zusätzlicher logarithmisch skalierten Input-Werte). Darauf aufbauend wurden verschiedene Experimente gestartet. Zum Einsatz kamen dabei flache sowie tiefe Kernmodelle aber auch neuronale Netze. Das Optimierungsproblem war gegeben durch eine PDE-bedingte Minimierung für eine Strömung durch ein Gebiet:

$$\min_{\mu \in \mathcal{P}} \mathcal{J}(\mu) := \|\hat{f}_h - f_{\text{adapt}}(\mu)\|_{L^\infty([0,T])},$$

wobei \mathcal{P} die Parametermenge von Damköhler- und Peclet-Zahlen darstellt und \hat{f}_h eine gegebene Ziel-

funktion ist. Für die Optimierung wurde ein Nelder-Mead Simplex Algorithmus genutzt, wobei prinzipiell auch andere Optimierungsmethoden genutzt werden können. Als FOM kam ein Finite Elemente Modell zum Einsatz und für das ML-Modell ein VKOGA Modell, welches durch die explizite Berechenbarkeit hier von Vorteil ist – insbesondere da das Modell iterativ geupdated werden kann, wodurch ein teurer Neustart des Trainings vermieden wird, der beispielsweise bei neuronalen Netzen erforderlich wäre. Entsprechende Ergebnisse sind in Abbildung 13 dargestellt, wo zu erkennen ist, dass nach nur wenigen FOM und ROM Evaluationen das VKOGA Modell bereits ausreichend genaue Vorhersagen macht.

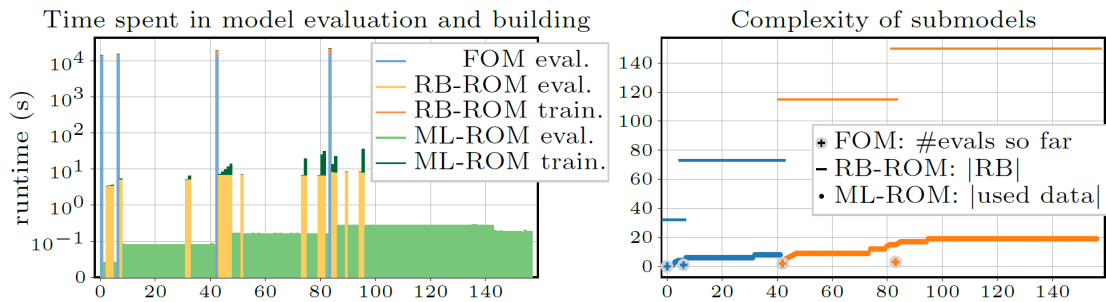


Abbildung 13: Ergebnisse der Anwendung von VKOGA für den ML Teil des adaptiven RB-ML-ROM Modells. Links sind die Auswertungszeiten zur Berechnung des Zielfunktional $J(\mu)$ während der Optimierung dargestellt. Rechts ist die Komplexität des adaptiven Modells sowie die Anzahl genutzter Datenpunkte für das VKOGA Modell dargestellt.

Ein beispielhaftes Ergebnis des adaptiven Algorithmus bzgl. des Monte-Carlo Beispiels ist in Abbildung 14 zu sehen: Im linken Bild ist die Dauer der Vorhersage (y-Achse) für die angefragten Input-Werte (x-Achse) dargestellt: Zunächst werden teure FOM-Auswertungen genutzt (blau), daraufhin günstigere ROM-Auswertungen. Nach 1000 ROM-Auswertungen wird ein ML-Modell trainiert, welches noch günstiger auswertbar ist. In Abhängigkeit der Genauigkeit nutzt das adaptive Modell fortan entweder die ML-Auswertung oder die ROM-Auswertung. Die vereinzelt grünen Punkte mit hohem Zeitaufwand spiegeln die benötigte Trainingszeit für das ML-Modell wieder. Im rechten Plot ist der Anteil der ML-Auswertungen an den angefragten Inputs zu sehen: Für die ersten 1000 Werte ist der Anteil bei null, da noch kein Modell trainiert wurde. Danach steigt der Anteil jedoch auf knapp 80% und verweilt dann dort. Da die ML-Auswertungen schneller sind als die ROM Auswertungen, ist das adaptive Modell bei vielen Auswertungen schneller.

In [WHKOF] wurden die neu entwickelten SDKN und 2L VKOGA Methoden auch auf das Monte Carlo Modellproblem aus [HKOSW23, Section 4.2] angewendet und mit den Standardmethoden VKOGA und mit neuronalen Netzen verglichen. Tabelle 1 fasst die wichtigsten Ergebnisse für die verschiedenen maschinellen Lernmodelle zusammen: In der Spalte „Training ML-ROM“ sind die Größe der Trainingsmenge und die Trainingsdauer für die ML-ROMs aufgeführt: Man erkennt, dass die VKOGA-Modelle besonders schnell sind. Besonders interessant ist die Spalte „ML-ROM-Verhältnis“, die das Verhältnis von ML- ROM im Vergleich zu den ROM-Auswertungen zeigt: Für das Basis-NN steigt dieses Verhältnis von 0% (vor dem Training) auf bis zu 87% nach 3 Trainingsstufen. Das flache VKOGA Modell scheint zu keinem Zeitpunkt genau zu sein, sein ML-ROM-Verhältnis übersteigt nie 25% - und wird daher nach 2000 abgefragten Parametern abgebrochen. Beim SDKN liegt das ML-ROM-Verhältnis bereits nach dem ersten Training bei 60,3%, und übertrifft damit die Leistung des NN nach zwei Trainings. Das

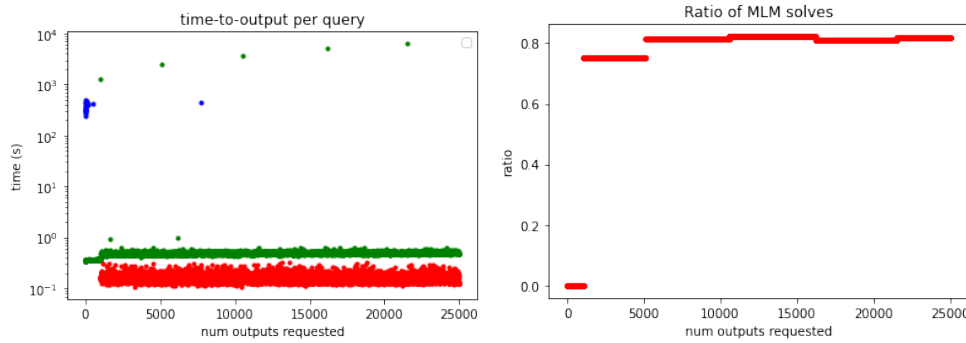


Abbildung 14: Illustration des adaptiven RB-ML-ROM Modells im Monte-Carlo Anwendungsbeispiel. Links: Auswertungszeit pro angefragtem Input. Rechts: Anteil der ML-Auswertungen.

ML-Model	Trainings of ML-ROM		ML-ROM ratio	Num. of model evaluations		
	Param. at which training started	Training time (s)		Model	Num. evals.	Average time (s)
NN	200	536.3	0.0%	FOM	12	234.9
	516	3919.1	36.8%	RB-ROM	876	6.7
	908	6515.1	49.1%	ML-ROM	4112	3.2
			92.9%			
VKOGA	40	97.8	0.0%	FOM	12	235.9
	...		≤ 25%	RB-ROM	1789	8.6
	1999	3572.3	...	ML-ROM	199	4.2
			≤ 25%			
SDKN	200	3350.2	0.0%	FOM	12	233.0
	703	8272.9	60.4%	RB-ROM	613	6.7
			94.7%	ML-ROM	4375	3.3
2L-VKOGA	40	110.3	0.0%	FOM	12	235.9
			86.7%	RB-ROM	685	8.7
				ML-ROM	4303	4.1

Tabelle 1: Überblick über die Ergebnisse der Verwendung des adaptiven Modells für verschiedene Arten von maschinellen Lernmodellen

endgültige Verhältnis von 94,7% ist so hoch, dass kein weiteres Lernen mehr erforderlich ist. Das 2L-VKOGA-Modell erreicht bereits nach dem ersten Training, das nur 40 bewertete Parameter enthielt, ein ML-ROM-Verhältnis von 86,7% Training, das nur 40 evaluierte Parameterwerte umfasste. Der Grund für diese hervorragende Leistung (insbesondere im Vergleich zum flachen VKOGA-Modell) ist im optimierten Kern zu sehen.

Arbeitspaket AP 2.3 (USt.3):

In diesem Arbeitspaket lag der Schwerpunkt auf Implementation und Software. Hier fanden über den Projektzeitraum verteilt verschiedene Arbeiten statt:

Die Entwicklung der 2L-VKOGA Modelle war begleitet von vielfältigen Implementierungsarbeiten, welche schließlich in einer entsprechenden Programmbibliothek resultierten, welche auf der VKOGA Bibliothek aufbaut und die gleiche Syntax nutzt. <https://gitlab.mathematik.uni-stuttgart.de/pub/ians-anm/2l-vkoga>

Auch für die strukturierten, tiefen Kernnetzwerke wurde eine entsprechende Programm-Bibliothek erstellt und veröffentlicht: <https://gitlab.mathematik.uni-stuttgart.de/pub/ians-anm/sdkn>).

Weiterhin wurde ein weiteres Git-Repository für das Paper-Projekt [HKOSW23] genutzt, Docker eingesetzt sowie verschiedene Jupyternotebook Probleme adressiert. Der Code ist öffentlich unter <https://github.com/ftschindler/paper-2022-certified-adaptive-RB-ML-ROM-hierarchy> verfügbar. Die erweiterten Ergebnisse mit tiefen Kernmodellen (SKDN und 2L-VKOGA) [WHKOF] sind unter <https://gitlab.mathematik.uni-stuttgart.de/wenzeltn/paper-2023-deep-kernel-for-rb-ml-rom> zu finden.

Für die Publikation [HKOSW23] wurden bestehende ML-Algorithmen teilweise softwareseitig erweitert, so dass sie sich zum Weitertrainieren anwenden lassen. Bei neuronalen Netzen sowie tiefen Kernmodellen kann es hierbei jedoch sinnvoll sein, von Grund auf neu zu trainieren. Das ist für die theoretisch sehr detailliert untersuchten flachen Kernmodelle nicht der Fall. Hier kann das bisherige Training ausgenutzt werden und direkt weiteroptimiert werden. Diese Neuerungen wurden in den offiziellen VKOGA Code (<https://github.com/GabrieleSantin/VKOGA>) implementiert.

Basierend auf dem verbesserten VKOGA Code wurde auch die Implementierung des PDE-VKOGA — also der Approximation von Lösungen von PDE Problemen — vorgenommen. Neben dem Einführen von zwei Mengen an Funktionalen (für das Innere des Gebietes sowie den Rand) wurde insbesondere Arbeit für die Implementation der entsprechenden Kernausswertungen aufgebracht: Neben der Auswertungen $k(x, y)$ sind nun auch die Auswertungen $L^{(2)}k(x, y)$ sowie $L^{(1)}L^{(2)}k(x, y)$ nötig, wobei L der Differentialoperator der PDE angewandt auf das erste oder zweite Argument des Kernes k ist.

Auch hier wurde eine entsprechende Bibliothek erstellt und veröffentlicht (<https://gitlab.mathematik.uni-stuttgart.de/pub/ians-anm/pde-vkoga>). Weiterhin wurden flache sowie tiefe Kernmodelle softwaretechnisch geeignet angepasst, um sie zusammen mit dem adaptiven Modell (siehe oben) einsetzen zu können. Für die Arbeiten zusammen mit TUD wurde ein git Repository aufgesetzt, in dem die verschiedenen benötigten Softwarepakete ausgetauscht und weiterentwickelt werden sowie für die numerischen Experimente genutzt werden.

Basierend auf diesen gemeinsamen Software-Sammlungen, konnte für realistische 3D Voxelgeometrien die Vorhersage von Durchbruchkurven unter variierenden Geometrien realisiert werden [HBWHT124]. Wir befassen uns hier mit der anspruchsvollen Anwendung der reaktiven Strömungen durch 3 dimensionale poröse Medien unter variierenden Geometrieparametern. Die Aufgabe besteht darin, zeitabhängige integrale Größen, d.h. Durchbruchkurven, aus den gegebenen Geometrien vorherzusagen. Da die 3D-Simulation reaktiver Strömungen sehr komplex und rechenintensiv ist, sind wir an datenbasierten Ersatzmodelle interessiert, die eine schnelle Vorhersage der interessierenden Zielgrößen ermöglichen. Wir haben gezeigt, dass das VKOGA-Verfahren kombiniert mit daten-basierten zweischichtigen Kernen hervorragende Prädiktoren für das Lernen aus 3D-Geometrie-Voxeldaten sowohl über morphologische Deskriptoren als auch über die Hauptkomponentenanalyse liefert. Ein Beispiel eines porösen Medium-Samples ist in Abbildung 15 veranschaulicht. Abhängig von der Geometrie des porösen Mediums, also der Verteilung von Washcoat, Bindemittel und freien Poren verändert sich die Durchbruchrate.

Im Folgenden vergleichen wir zwei verschiedene kernbasierte Modelle zum Erlernen der Durchbruchkurven (siehe Abbildung 16): (MF) verwendet morphologische Features, die durch Expertenwissen vorgegeben sind (wie zum Beispiel die Porösität oder den Anteil des Washcoats am Gesamtvolumen), und (PCA) basiert auf Merkmalen, die mit der Hauptkomponentenanalyse gelernt wurden und eine Kompression der hochdimensionalen Geomeriedaten darstellen. Die Kern-Funktion k wird entweder als flacher

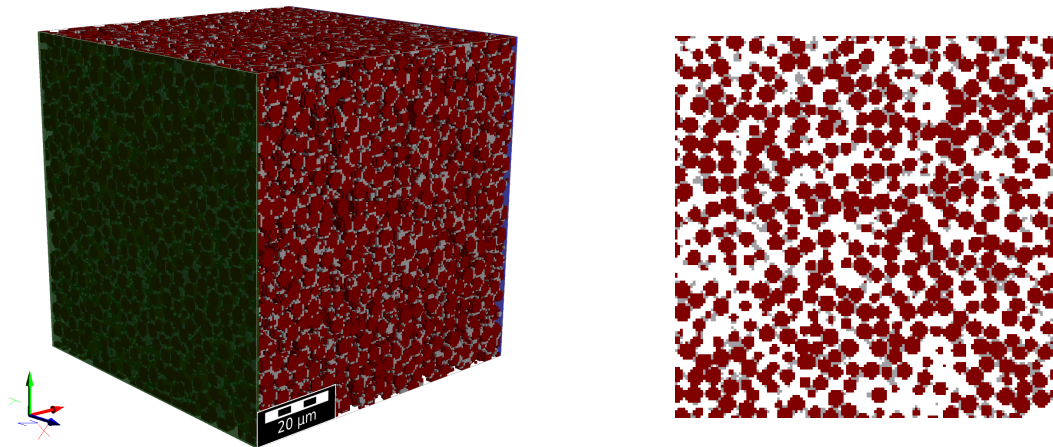


Abbildung 15: Isometrische Ansicht (links) und Mittelebenenansicht (rechts) eines typischen porösen Medium-Samples; Farben: braun - Washcoat (Ω_w), grau - Feststoff (Bindemittel, Ω_s), weiß (transparent) - freie Poren (Ω_f), grün - Einlassbereich, gegenüberliegend der (nicht sichtbare) - Auslassbereich.

einschichtiger oder als zweischichtiger Kern gewählt. Wir bezeichnen diese Modelle im Rahmen unserer Arbeit als MF-1L-Kern und MF-2L-Kern oder PCA-1L-Kern und PCA-2L-Kern, je nachdem, wie tief der Kern ist (einschichtig/zweischichtig) und ob wir morphologische Features (MF) oder PCA-Features extrahieren.

Die vorhergesagten und die exakten Durchbruchkurven werden für das PCA-2L-Kern Modell in Abbildung 17 präsentiert. Das PCA-2L-Kern Modell basiert auf $n_f = 6$ Merkmalen die mithilfe der Hauptkomponentenanalyse bestimmt werden. Man erkennt im linken Teil der Abbildung, dass die vorhergesagten Kurven sehr gut mit den Kurven aus der Simulation übereinstimmen. Im rechten Teil wird die Wahl $n_f = 6$ begründet, da es sich hierbei um das Modell mit dem niedrigsten Testfehler handelt.

Im Weiteren vergleichen wir die mittleren Fehler, gemittelt über die drei verschiedenen Trainings-/Testsplits, in Tabelle 2. Wir stellen fest, dass die auf morphologischer Feature-Extraktion basierenden Modelle sowohl in Kombination mit ein- als auch mit zweischichtigen Kernen sehr gut funktionieren. Im Gegensatz dazu führt die rein daten-basierte Kombination von einschichtigen Kernen mit der PCA-Merkmalsextraktion zu einem durchschnittlichen Fehler, der fast um eine Größenordnung größer ist. Dieser Fehler wird durch die Anwendung zweischichtiger Kerne erheblich verbessert, und es wird fast die gleiche Genauigkeit wie bei der morphologischen Merkmalsextraktion erreicht.

	1L	2L
MF	$1.51 \cdot 10^{-3}$	$1.46 \cdot 10^{-3}$
PCA	$9.26 \cdot 10^{-3}$	$2.98 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 2: Mittlere relative Testfehler, gemittelt über die drei Trainings-/Testsplits

Im weiteren Vergleichen wir die Laufzeiten der verschiedenen Modelle in Tabelle 3. Wir vergleichen die Zeit, die für die Berechnung der Feature Map benötigt wird summiert zur Feature-Extraktionszeit auf der Testmenge (erste Spalte), die für LOOCV benötigte Zeit, die Trainingszeit des finalen Modells und die Evaluierungszeit auf der Testmenge. Wir stellen fest, dass die LOOCV für die zweischichtigen

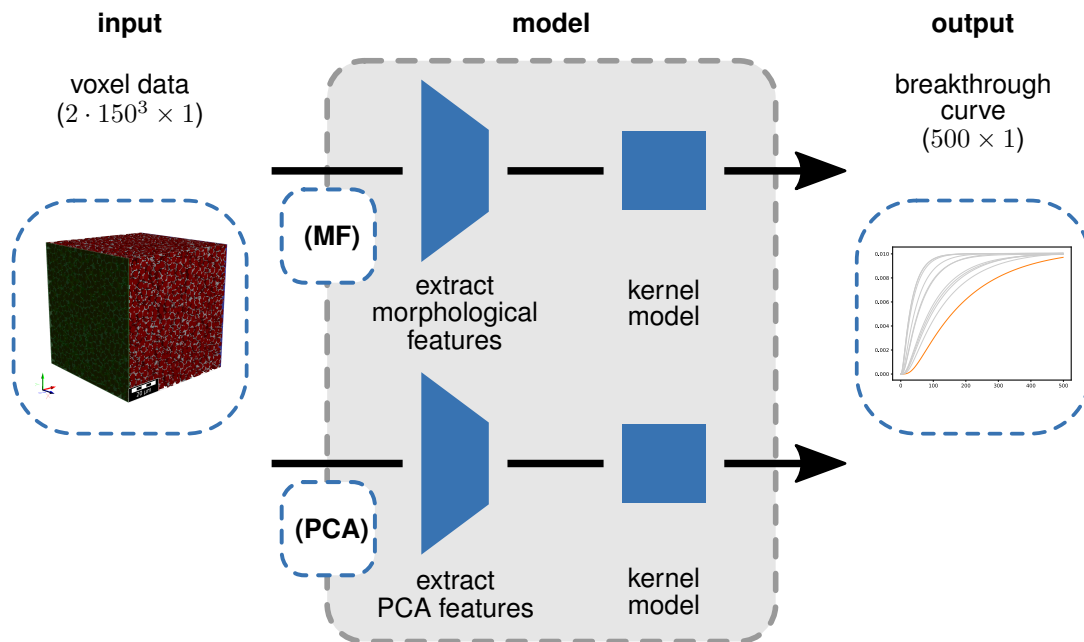
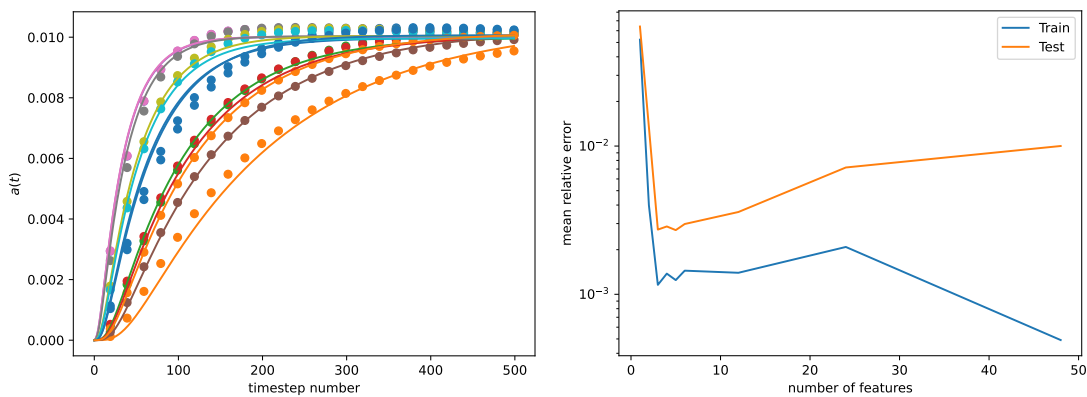


Abbildung 16: Zwei Kompressionsstrategien zur Approximation von Durchbruchkurven aus Voxeldaten: Modell mit morphologischen Features (MF) und Modell mit PCA-Features (PCA).



(a) Vorhergesagte und exakte Durchbruchkurven

(b) Relative Test und Trainings fehler über n_f

Abbildung 17: **(a)**: Links: Vorhergesagte Durchbruchkurven auf der Testmenge X_{test} für $n_f = 6$ und drei verschiedene Trainings-/Testsplits. Durchgehend: Durchbruchkurven, gepunktet: Vorhersagen. Die unterschiedlichen Farben entsprechen den verschiedenen Durchbruchkurven. **(b)**: Relative Test und Trainingsfehler über n_f .

Modelle wesentlich teurer ist als für die flachen Modelle, was auf die Optimierung der ersten Schicht zurückzuführen ist. Sie ist jedoch immer noch beträchtlich niedriger (etwa 30-mal für MF-2L-Kern und 7-mal für PCA-2L-Kern) als die Erzeugung eines einzigen Trainings-sample (7514 Sekunden). Darüber hinaus ist die LOOCV-Zeit und das finale Trainieren der MF-Kern-Modelle weniger kostspielig als das Training anhand der morphologischen Merkmale. Allerdings ist die Berechnung der PCA-Featuremap jedoch weniger kostspielig als die Berechnung der morphologischen Features. Außerdem ist die Auswertungszeit der PCA-Kernmodelle größer als die der MF-Kernmodelle. Da die Berechnung der morphologischen Merkmale, d.h. die Auswertung von Φ_{MF} , etwa 2 Sekunden pro Probe benötigt, haben die MF-Ansätze eine größere Gesamtauswertungszeit (Summe der Auswertungszeiten von MF-Extraktion und MF-1L-Kern/MF-2L-Kern). Dennoch sind die Auswertungszeiten in beiden Fällen deutlich geringer als die Berechnung der Trainings-samples.

model	feat. map	LOOCV time	final model train time	eval. time
Full order model	-	-	-	$9.02 \cdot 10^4$
MF extraction	$9.40 \cdot 10^1$	-	-	$2.40 \cdot 10^1$
MF-1L-Kern	-	$5.90 \cdot 10^0$	$9.95 \cdot 10^{-4}$	$2.91 \cdot 10^{-4}$
MF-2L-Kern	-	$2.01 \cdot 10^2$	$2.12 \cdot 10^{-1}$	$2.67 \cdot 10^{-4}$
PCA feat. map comp.	$1.28 \cdot 10^1$	-	-	-
PCA-1L-Kern	-	$2.29 \cdot 10^1$	$1.36 \cdot 10^{-3}$	$1.83 \cdot 10^{-1}$
PCA-2L-Kern	-	$9.18 \cdot 10^3$	$8.63 \cdot 10^{-1}$	$2.13 \cdot 10^{-1}$

Tabelle 3: Laufzeitvergleich der ML-Methoden in Sekunden.

Der Code ist öffentlich unter <https://doi.org/10.18419/darus-4227> verfügbar.

In Zusammenarbeit mit ITWM wurden außerdem ML-Modelle angewendet um Durchbruchkurven für feste Geometrien und variierende Peclet-Zahl (Pe) und der Damkhöler-Zahl vorherzusagen und im Bezug auf ihre Laufzeit und Genauigkeit untersucht. Also ML-Modelle wurden Gauß-Prozesse, die neuronalen Netze, die Crossapproximation und VKOGA betrachtet. Wir beobachten dabei die hohe Leistungsfähigkeit verschiedener maschineller Lernmethoden zur Vorhersage von Durchbruchkurven innerhalb der spezifischen Parameterintervalle, die bestimmten Regimen (z.B. reaktionsdominiert oder diffusionsdominiert) entsprechen. In Bezug auf das volle Simulationsmodell erreichen alle betrachteten ML-Methoden hervorragende Beschleunigungen von 10^5 Größenordnungen [FTHWHI24].

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

Personalmittel für Herrn Dr. Tizian Wenzel, Frau Dr. Maha Youssef, Herrn Dr. Patrick Buchfink und Herrn M.Sc. Robin Herkert. Weiter waren zeitweise 2 studentische Hilfskräfte eingestellt.

5 Erzielte Ergebnisse mit Gegenüberstellung der vereinbarten Ziele

Im Rahmen unseres Teilprojektes (**AP 2, USt**) haben wir die folgenden wichtigsten Ergebnisse erzielt:

Seite 19 von 25

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt der Veröffentlichung liegt beim Autor.

- Neue Methodenentwicklung für Kernmethoden: Es wurden Mehrschichtige Kern-Netzwerke (SDKN) und insbesondere zweischichtige (2L-VKOGA) Modelle entwickelt. Auch wurde eine Zielorientierte ("goal-oriented") Variante des VKOGA Algorithmus entworfen.
- Neue Analysis für Kernmethoden: Wir konnten für die Kernapproximationsmethoden garantierte Konvergenzraten beweisen. Für die SDKN konnten universelle Approximationseigenschaften nachgewiesen werden.
- RB-ML-ROM: Es fand eine Kopplung der kernbasierten ML-Modelle mit ROM und FOM zu einem hierarchischen Modell statt, welches in Optimierung und statistische Untersuchungen eingesetzt werden kann.
- Software-Pakete: Die entwickelten Methoden wurden in entsprechenden öffentlichen Repositories wiederverwendbar für den Industriepartner, die Verbundpartner und die Öffentlichkeit bereitgestellt. Dies dient der Reproduzierbarkeit und der Weiterentwicklung der Methodik.
- Anwendung 3D Geometriedaten: Wir haben für detaillierte hochdimensionale 3D Geometrien von porösen Medien geeignete Kompressionsansätze identifiziert und umgesetzt, welche Lernen der chemisch relevanten Durchbruchkurven mittels Kernmethoden ermöglicht.
- Anwendung Reaktive Filter: Das goal-oriented VKOGA Verfahren ist erfolgreich auf simulierte reaktive Filter angewandt worden.
- Publikation/Verbreitung: Die genannten Ergebnisse wurde alle entsprechend veröffentlicht in Form von zahlreichen Zeitschriften-Artikeln, Preprints oder Konferenzbeiträgen.

Insbesondere für unser Arbeitspaket AP 2 (**USt**) 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 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 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 die durch Advektions-Diffusions-Reaktionsgleichungen beschrieben werden, übertragen, wie beispielsweise die Auslegung von Brennstoffzellen oder auch bei der CO_2 -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. Aufgrund der Coronona-Pandemie hatte sich jedoch von März 2020 bis Mitte 2022 das Angebot an internationalen Konferenzen drastisch reduziert. Junge Wissenschaftler und Wissenschaftlerinnen wurden maßgeblich in das Projekt eingebunden. Durch die Tätigkeit als wissenschaftliche Hilfskraft wurden Studierende im Rahmen des Projekts an wissenschaftliches Arbeiten herangeführt. Zur Stärkung der Vernetzung der beteiligten Nachwuchswissenschaftler und Nachwuchswissenschaftlerinnen 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 Machine Learning Verfahren für Transport-Diffusions-Reaktions-Probleme, die teilweise Gemeinsamkeiten mit den im ML-MORE-Projekt betrachteten Problemen aufweisen. Die Arbeitsgruppe Haasdonk steht durch regelmäßige Teilnahme an internationalen Konferenzen und durch direkten Austausch in engem Kontakt mit diesen Gruppen. Bislang sind hierbei keine Ergebnisse bekannt geworden, die von unmittelbarer Relevanz für (AP 2) sind. Die Entwicklung verwandter Verfahren 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)

[DWHHV24] Felix Döppel, Tizian Wenzel, Robin Herkert, Bernard Haasdonk, and Martin Votsmeier. Goal-oriented two-layered kernel models as automated surrogates for surface kinetics in reactor simulations. *Chemie Ingenieur Technik*, 2024.

[FTHWHI24] Daria Fokina, Pavel Toktaliev, Robin Herkert, Tizian Wenzel, Bernard Haasdonk, and Oleg Iliev. Machine learning methods based prediction of breakthrough curves in reactive porous media from Peclet and Damköhler numbers. In *Annual Meeting of the Bulgarian Section of SIAM*. Springer Singapur, 2023. submitted.

[GHIOSTWY22] Pavel Gavrilenko, Bernard Haasdonk, Oleg Iliev, Mario Ohlberger, Felix Schindler, Pavel Toktaliev, Tizian Wenzel, and Maha Youssef. A full order, reduced order and machine learning model pipeline for efficient prediction of reactive flows. In Ivan Lirkov and Svetozar Margenov, editors, *International Conference on Large-Scale Scientific Computing*, pages 378–386. Springer International Publishing, 2022.

- [HKOSW23] Bernard Haasdonk, Hendrik Kleikamp, Mario Ohlberger, Felix Schindler, and Tizian Wenzel. A new certified hierarchical and adaptive RB-ML-ROM surrogate model for parametrized PDEs. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 45(3):A1039–A1065, 2023.
- [HBWHTI24] Robin Herkert, Patrick Buchfink, Tizian Wenzel, Bernard Haasdonk, Pavel Toktaliev, and Oleg Iliev. Greedy kernel methods for approximating breakthrough curves for reactive flow from 3d porous geometry data. *Mathematics, MDPI*, 2024. *arXiv preprint arXiv:2405.19170*. submitted.
- [WHKOF] Tizian Wenzel, Bernard Haasdonk, Hendrik Kleikamp, Mario Ohlberger, and Felix Schindler. Application of deep kernel models for certified and adaptive RB-ML-ROM surrogate modeling. In *International Conference on Large-Scale Scientific Computing*, pages 117–125. Springer International Publishing, 2024.
- [WKBSH22] Tizian Wenzel, Marius Kurz, Andrea Beck, Gabriele Santin, and Bernard Haasdonk. Structured deep kernel networks for data-driven closure terms of turbulent flows. In Ivan Lirkov and Svetozar Margenov, editors, *International Conference on Large-Scale Scientific Computing*, pages 410–418. Springer International Publishing, 2022.
- [WMP24] Tizian Wenzel, Francesco Marchetti, and Emma Perracchione. Data-driven kernel designs for optimized greedy schemes: A machine learning perspective. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 46(1):C101–C126, 2024.
- [WSH23] Tizian Wenzel, Gabriele Santin, and Bernard Haasdonk. Analysis of Target Data-Dependent Greedy Kernel Algorithms: Convergence Rates for f -, $f \cdot P$ - and f/P -Greedy. *Constructive Approximation*, 57:45–74, 2023.
- [WSH24] Tizian Wenzel, Gabriele Santin, and Bernard Haasdonk. Stability of convergence rates: Kernel interpolation on non-Lipschitz domains. *IMA Journal of Numerical Analysis*, 44(3):1-22, 2024.

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

- [HOS22] Bernard Haasdonk, Mario Ohlberger, and Felix Schindler. An adaptive model hierarchy for data-augmented training of kernel models for reactive flow. In *MATHMOD 2022 Discussion Contribution Volume, ARGESIM Report 17*, pages 67–68. ARGESIM, 2022.
- [WEN23] Tizian Wenzel. Sharp inverse estimates for radial basis function interpolation: One-to-one correspondence between smoothness and approximation rates. *arXiv preprint arXiv:2306.14618*, 2023.
- [WSH21] Tizian Wenzel, Gabriele Santin, and Bernard Haasdonk. Universality and Optimality of Structured Deep Kernel Networks. *ArXiv*, (2105.07228), 2021. Submitted.
- [WWSH22] Tizian Wenzel, Daniel Winkle, Gabriele Santin, and Bernard Haasdonk. Adaptive meshfree solution of linear partial differential equations with PDE-greedy kernel methods. *arXiv preprint arXiv:2207.13971*, 2022.

Konferenzbeiträge:

- SIAM CSE 2023 Amsterdam, Niederlande (Februar 2023) von T. Wenzel und B. Haasdonk,
- International Conference on Multivariate Approximation 2023 Rauischholzhausen, Deutschland (März 2023) von T. Wenzel
- LSSC 2023 Sozopol, Bulgarien (Mai 2023) von T. Wenzel und R. Herkert,
- DRWAA 2023 San Vito di Cadore, Italien (September 2023) von T. Wenzel und B. Haasdonk
- Posterpräsentation auf der FoCM 2023 Paris, Frankreich (Juni 2023) von T. Wenzel

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

Die Promotion von Tizian Wenzel mit dem Thema „Deep and greedy kernel methods: Algorithms, analysis and applications“ erfolgte 2023.

Weitere Literatur

- [1] B. Bohn, M. Griebel, and C. Rieger. A representer theorem for deep kernel learning. ArXiv preprint 1709.10441, 2017.
- [2] K.T. Carlberg, A. Jameson, M.J. Kochendörfer, J. Morton, L. Peng, and F.D. Witherden. Recovering missing cfd data for high-order discretizations using deep neural networks and dynamics learning. arXiv preprint 1812.01177, 2018.
- [3] Felix A Döppel and Martin Votsmeier. Efficient machine learning based surrogate models for surface kinetics by approximating the rates of the rate-determining steps. *Chemical Engineering Science*, 262:117964, 2022.
- [4] M. Köppel, F. Franzelin, I. Kröker, S. Oladyshkin, G. Santin, D. Wittwar, A. Barth, B. Haasdonk, W. Nowak, D. Pflüger, and C. Rohde. Comparison of data-driven uncertainty quantification methods for a carbon dioxide storage benchmark scenario. *Computational Geosciences* 23, 339-354, Nov 2018.
- [5] T. Köppl, G. Santin, B. Haasdonk, and R. Helmig. Numerical modelling of a peripheral arterial stenosis using dimensionally reduced models and kernel methods. *International Journal for Numerical Methods in Biomedical Engineering*, 34(8):e3095, 2018.
- [6] G. Santin and B. Haasdonk. Convergence rate of the data-independent P-greedy algorithm in kernel-based approximation. *Dolomites Res. Notes Approx.*, 10:68–78, 2017.
- [7] Gabriele Santin and Bernard Haasdonk. Kernel methods for surrogate modeling. In *System-and Data-Driven Methods and Algorithms*, volume 1, pages 311–353. De Gruyter, 2021.
- [8] Robert Schaback and Holger Wendland. Inverse and saturation theorems for radial basis function interpolation. *Mathematics of Computation*, 71(238):669–681, 2002.

- [9] B. Schölkopf and A.J. Smola. *Learning with Kernels*. The MIT Press, 2002.
- [10] J. Shawe-Taylor and N. Cristianini. *Kernel Methods for Pattern Analysis*. Cambridge University Press, 2004.
- [11] H. Wendland. *Scattered Data Approximation*, volume 17 of *Cambridge Monographs on Applied and Computational Mathematics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2005.
- [12] D. Wirtz and B. Haasdonk. A vectorial kernel orthogonal greedy algorithm. *Dolomites Res. Notes Approx.*, 6:83–100, 2013.
- [13] D. Wirtz, N. Karajan, and B. Haasdonk. Surrogate modelling of multiscale models using kernel methods. *International Journal of Numerical Methods in Engineering*, 101(1):1–28, 2015.

Prof. Dr. Bernard Haasdonk

Stuttgart, den 5. August 2024

Kurzbericht

- öffentlich -

Zuwendungsempfänger: Universität Stuttgart (Förderkennzeichen: 05M20VSA)

Projektleitung: Prof. Dr. Bernard Haasdonk

Verbund:

Wissenschaftliche Projektpartner

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

Industriepartner

- Umicore AG & Co. KG, Dr. Jürgen Gieshoff, 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, wie beispielsweise katalytische Filter für Abgase, die in diesem Projekt durch die Kooperation mit Umicore im Fokus standen. Weitere Beispiele sind Brennstoffzellen oder photovoltaische Zellen. Solche Simulationen können große Datenmengen generieren, wodurch ein effizientes Design optimiert werden kann, aber gleichzeitig sind solche Simulationen 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 von klassischen 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 fokuzierten 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, das Unternehmen bei der Entwicklung neuartiger katalytischer Filter unterstützt und 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).

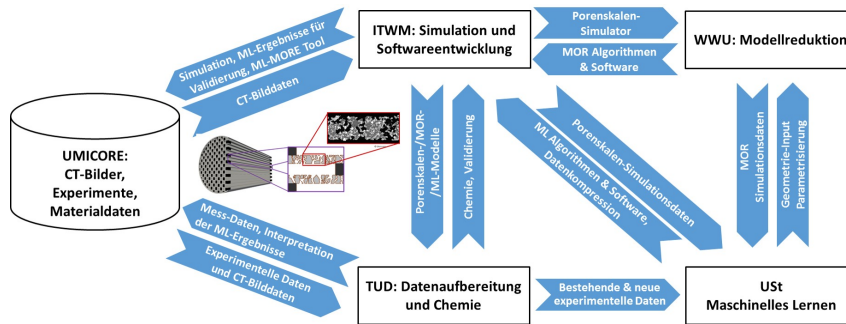


Abbildung 1: Verbundstruktur.

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).

Als Verbundpartner USt haben wir Algorithmen des Maschinellen Lernens (ML) beigesteuert. Dies umfasste einerseits Methodenentwicklung, deren Analysis und andererseits auch softwaretechnische Realisierung. Die Arbeitsgruppe hat open-source Python Pakete der entwickelten Lernverfahren erstellt, welche in der Lage sind, große Trainingsmengen zu verarbeiten. Die Trainingsdaten bestehen im Rahmen des Projektes im Wesentlichen aus hochdimensionalen und reduzierten Simulationsergebnissen der Projektpartner. In Kooperation mit UMS wurde zudem ein integrativer Ansatz (RB-ML-ROM) entwickelt, der es ermöglicht klassische Simulationsverfahren mit Modellordnungsreduktion und maschinellem Lernen in einem effizienten hierarchischen und zertifizierten Modell zu verbinden. Dieser Ansatz ist innovativ, da er durch die hierarchische Integration auch für das maschinelle Lernen eine rigorose a posteriori Fehlerkontrolle erlaubt. Das gesamte resultierende RB-ML-ROM Framework wurde in einer Open-Source-Softwareentwicklung umgesetzt und in numerischen Experimenten validiert.

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

Im Rahmen unseres Teilprojektes (AP 2, USt) haben wir die folgenden wichtigsten Ergebnisse erzielt:

- Neue Methodenentwicklung für Kernmethoden: Es wurden Mehrschichtige Kern-Netzwerke (SD-KN) und insbesondere zweischichtige (2L-VKOGA) Modelle entwickelt. Auch wurde eine Zielorientierte ("goal-oriented") Variante des VKOGA Algorithmus entworfen.
- Neue Analysis für Kernmethoden: Wir konnten für die Kernapproximationsmethoden garantierte Konvergenzraten beweisen. Für die SDKN konnten universelle Approximationseigenschaften nachgewiesen werden.
- RB-ML-ROM: Es fand in Zusammenarbeit mit UMS eine Kopplung der kernbasierten ML-Modelle mit ROM und FOM zu einem hierarchischen Modell statt, welches in Optimierung und statistische Untersuchungen eingesetzt werden kann.
- Software-Pakete: Die entwickelten Methoden wurden in entsprechenden öffentlichen Repositories wiederverwendbar für den Industriepartner, die Verbundpartner und die Öffentlichkeit bereitgestellt. Dies dient der Reproduzierbarkeit und der Weiterentwicklung der Methodik.
- Anwendung 3D Geometriedaten: Wir haben für detaillierte hochdimensionale 3D Geometrien von porösen Medien mit dem ITWM geeignete Kompressionsansätze identifiziert und umgesetzt, welche Lernen der chemisch relevanten Durchbruchkurven mittels Kernmethoden ermöglicht.
- Anwendung Reaktive Filter: Das goal-oriented VKOGA Verfahren ist in Zusammenarbeit mit TUD erfolgreich auf simulierte reaktive Filter angewandt worden.
- Publikation/Verbreitung: Die genannten Ergebnisse wurde alle entsprechend veröffentlicht in Form von zahlreichen Zeitschriften-Artikeln, Preprints oder Konferenzbeiträgen.

Für unser Arbeitspaket AP 2 (**USt**) 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 Münster 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_2 -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. Bernard Haasdonk

Stuttgart, den 5. August 2024