Sachbericht zum Verwendungsnachweis — Teil II: Eingehende Darstellung

Fördermaßnahme:	Neue Methoden und Technologien für das Exascale-Höchstleistungsrechnen (SCALEXA)
Förderkennzeichen:	16ME0659
Zuwendungsempfänger:	Helmholtz-Zentrum Hereon GmbH
Bearbeitungszeitraum:	01.09.2022 – 31.12.2025

1 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die von Hereon erhaltenen Fördermittel wurden hauptsächlich zur Finanzierung der wissenschaftlichen Arbeit von Dr. Farshid Mossaiby im Zeitraum vom 1. Januar 2023 bis 31. Januar 2025 verwendet. Dr. Mossaiby entwickelte den Code DCAT (Diblock Copolymer Analysis Tool), der die EISA-Simulation erfolgreich durchführte (Meilenstein M2.1), und integrierte die Coordinator-Bibliothek für die Kopplung mit der Teilchensimulation auf der Modularen Supercomputer-Architektur (MSA).

Nach dem Ausscheiden von Dr. Mossaiby aus Hereon Ende 2024 aus persönlichen (nicht projektbezogenen) Gründen wurde eine kostenneutrale Übertragung der verbleibenden Mittel an die Universität Göttingen veranlasst. Dr. Gregor Häfner (UGOE) übernahm nahtlos diesen Teil des Projekts. Diese Lösung wurde dem Projektträger (Dr. Baki) am 12. September 2024 mitgeteilt, und der formale Antrag wurde am 10. Oktober 2024 über easy-Online eingereicht.

Alle übrigen Ausgaben waren geringfügige Posten (Reisen, Material) innerhalb des genehmigten Budgets.

2 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Dieser Abschnitt beschreibt detailliert die in den einzelnen Arbeitspaketen durchgeführten Arbeiten und zeigt auf, wie jeder Meilenstein erreicht wurde und warum die durchgeführte Forschung zur Erreichung der Projektziele unerlässlich war. Sämtliche Meilensteinziele (M2.1, M2.2, M3.2, M3.3) wurden vollständig und plangemäß erreicht. Entsprechend der Rolle von Hereon im Verbund liegt der Schwerpunkt auf den Arbeitspaketen 2 (Kontinuumsmodellierung) und 3 (Skalenüberbrückung durch maschinelles Lernen).

Das Projekt MExMeMo adressiert eine fundamentale Herausforderung in der computergestützten Materialwissenschaft: die Überbrückung der Kluft zwischen molekular detaillierten Teilchensimulationen und effizienten Kontinuumsmodellen für die Simulation der Membranherstellung mittels des SNIPS-Verfahrens (Self-assembly and Non-solvent Induced Phase Separation). Der SNIPS-Prozess kombiniert zwei verschiedene physikalische Phänomene – verdampfungsinduzierte Selbstorganisation (EISA), die eine geordnete isoporöse Oberflächenschicht bildet, und nichtlösemittelinduzierte Phasenseparation (NIPS), die die makroporöse Stützstruktur erzeugt. Die Simulation des vollständigen Prozesses erfordert die Auflösung sowohl der molekularen Selbstorganisation als auch des makroskopischen Transports, was einen Mehrskalenansatz unerlässlich macht.

2.1 Arbeitspaket 2: Kontinuumsmodellierung auf der Makroskala

2.1.1 Ziel und Ansatz

Ziel von AP2 war die Entwicklung eines Phasenfeldmodells für den Membranherstellungsprozess – umfassend sowohl verdampfungsinduzierte Selbstorganisation (EISA) als auch nichtlösemittelinduzierte Phasenseparation (NIPS) – und dessen Implementierung in einem HPC-fähigen Code, der Daten mit dem Teilchensimulationscode SOMA austauschen kann.

Grundlegende Änderung des numerischen Ansatzes: Der ursprüngliche Plan sah die Implementierung des Kontinuumsmodells mittels der Finite-Elemente-Methode (FEM) mit der deal.II-Bibliothek vor, basierend auf einer peridynamischen Operatorformulierung. Ein erheblicher Aufwand im ersten Projektjahr wurde in diese Richtung investiert. Der nichtlokale Faltungsterm im Uneyama-Doi-Modell (UDM), der die Konnektivität der beiden Blöcke des Diblockcopolymers über

einen Helmholtz-Kern $G(r - r')$ beschreibt, erwies sich als das entscheidende Hindernis: Eine effiziente FEM-Implementierung hätte die Auswertung von Doppelintegralen über überlappende Elementbereiche für den nichtlokalen Term erfordert, was rechnerisch nicht tragbar ist. Versuche, einen Hintergrund-Elementbereich für Faltungsberechnungen zu nutzen, sowie der anschließende Wechsel zu expliziten Zeitschrittverfahren waren aus zwei Gründen erfolglos: (i) Der vom FEM-Modell vorhergesagte Ordnungs-Unordnungs-Übergang wich signifikant von den Ergebnissen der Teilchensimulation ab, und (ii) CFL-artige Stabilitätsbedingungen erzwangen starke Zeitschrittbeschränkungen ($\Delta t \sim \Delta x^4$), die großskalige Simulationen unpraktikabel machten.

Dies stellte eine grundlegende Änderung des numerischen Ansatzes für AP2 dar und erforderte einen vollständigen Neustart der Code-Entwicklung.

Dr. Mossaiby (Hereon) übernahm daraufhin den pseudo-spektralen Ansatz in Kombination mit einem semi-impliziten Zeitintegrationsverfahren und entwickelte den Code DCAT (Diblock Copolymer Analysis Tool), aufbauend auf den Arbeiten von Dr. Gregor Häfner an der UGOE. Dieser Ansatz nutzt die schnelle Fourier-Transformation (FFT) zur effizienten Behandlung der nichtlokalen Faltungsterme: Im Fourier-Raum wird der Helmholtz-Kern $G(r - r')$ zu einem einfachen algebraischen Faktor $\hat{G}(k) = 1/(k^2 + \xi_{cut}^{-2})$, wodurch die aufwendige Realraum-Faltung vollständig entfällt. Die implizite Behandlung der steifen ∇^4-Terme im Fourier-Raum beseitigt die strenge CFL-Beschränkung und erlaubt Zeitschritte, die um Größenordnungen größer sind als beim expliziten FEM-Verfahren. DCAT (C++20, MPI, OpenMP) konnte die EISA-Simulation erfolgreich durchführen (Meilenstein M2.1) und integrierte die Coordinator-Bibliothek für die MSA-Kopplung mit SOMA.

Nach dem Personalwechsel von Dr. Mossaiby (Hereon) zu Dr. Häfner (UGOE) übernahm dieser die Weiterentwicklung des Kontinuumscodes und realisierte die vollständige SNIPS-Simulation einschließlich NIPS und Vitrifikation. Der pseudo-spektrale Ansatz erreicht spektrale Genauigkeit (exponentielle Konvergenz bei Gitterverfeinerung) für die glatten Dichtefelder $\phi_\alpha(r)$ und benötigt relativ wenige Freiheitsgrade im Vergleich zu einer FEM-Diskretisierung vergleichbarer Genauigkeit.

2.1.2 Mathematisches Modell: Uneyama-Doi-Freie-Energie-Funktional

Das Kontinuumsmodell basiert auf dem Uneyama-Doi-Freie-Energie-Funktional:

$$\frac{F[\{\phi_\alpha\}]}{\sqrt{\bar{N}} k_B T} = \frac{1}{R_e^3} \int dr \left[\sum_{\alpha,\beta} A_{\alpha\beta} \int dr' G(r - r') \sqrt{\phi_\alpha(r)\phi_\beta(r')} + \text{local terms} \right] \tag{1}$$

wobei $\phi_\alpha(r)$ das normierte Dichtefeld der Komponente α bezeichnet (Polymerblöcke A, B; Lösemittel S, C; Gas G; Nichtlösemittel N), R_e der End-zu-End-Abstand des Copolymers und $\bar{N}$ der invariante Polymerisationsgrad ist. Der Helmholtz-Kern $G(r-r')$ erfüllt $(-\nabla^2 + \xi_{cut}^{-2})G = \delta(r-r')$ mit der Abschneidlänge $\xi_{cut} = 2R_e$.

Die Zeitentwicklung folgt einer Modell-B-Dynamik:

$$\frac{\partial \phi_\alpha(r,t)}{\partial t} = \frac{R_e^5}{\sqrt{\bar{N}} k_B T} \nabla \cdot [\Lambda_\alpha(r,t)\phi_\alpha(r,t)\nabla\mu_\alpha] \tag{2}$$

mit einem Onsager-Koeffizienten Λ_α, der von allen lokalen Dichten abhängen kann. Dichteabhängige Mobilitäten sind für die Modellierung der Vitrifikation essenziell:

$$\lambda_\alpha(\{\phi\}) = \frac{1}{2} \left[\delta_\alpha - \tanh\left(1 - \sum_\beta a_{\alpha\beta}\phi_\beta \right) \right] \tag{3}$$

wobei die Mobilitätskoeffizientenmatrix $a_{\alpha\beta}$ das Einfrieren der Polymermobilität beim Verlassen der plastifizierenden Lösemittel steuert.

Um verschwindende Dichten ohne numerische Singularitäten zu behandeln, führen wir $\psi_\alpha = \sqrt{\phi_\alpha}$ und reformulierte chemische Potentiale $\tilde{\mu}_\alpha = 2\psi_\alpha\mu_\alpha$ ein.

2.1.3 Numerische Implementierung

Das pseudo-spektrale Verfahren läuft für jeden Zeitschritt wie folgt ab:

1. Berechnung der chemischen Potentiale $\{\tilde{\mu}_\alpha\}$ aus den Dichtefeldern
2. Aktualisierung der dichteabhängigen Mobilitäten $\{\lambda_\alpha\}$
3. Berechnung der Flussterme $\xi_\alpha = \psi_\alpha \nabla \tilde{\mu}_\alpha - \tilde{\mu}_\alpha \nabla \psi_\alpha$
4. Propagation der Dichtefelder mittels semi-impliziter Euler-Zeitschrittmethode, wobei die steifen ∇^4-Terme implizit via FFT behandelt werden
5. Regularisierung negativer Dichten mittels eines atomaren Compare-and-Swap-Algorithmus für OpenMP-Parallelisierung

Die Domäne verwendet periodische Randbedingungen. Um reflektierende Ränder (für die Filmoberfläche) nachzubilden, wird die Domäne in z-Richtung verdoppelt. Die Verdampfung wird modelliert, indem flüchtiges Lösemittel S in Gas G umgewandelt wird, in einer Konversionszone, die der zurückweichenden Filmoberfläche folgt.

2.1.4 Meilenstein 2.1: Erste Phasenfeld-Berechnung (Monat 18)

Meilenstein 2.1 wurde mit der erfolgreichen Simulation des EISA-Prozesses mit einem und zwei Lösemitteln erreicht. Wesentliche Ergebnisse:

- Implementierung dichteabhängiger Mobilitäten nach Blagojevic & Müller (2023)
- Erfolgreiche Reproduktion der Mikrophasenseparation: senkrechte Zylinder auf einem hexagonalen Gitter
- Zwei-Lösemittel-EISA: flüchtiges Lösemittel S und nichtflüchtiges Lösemittel C
- Identifikation von Parametersensitivitäten, die umfangreiche Parameterstudien erforderten

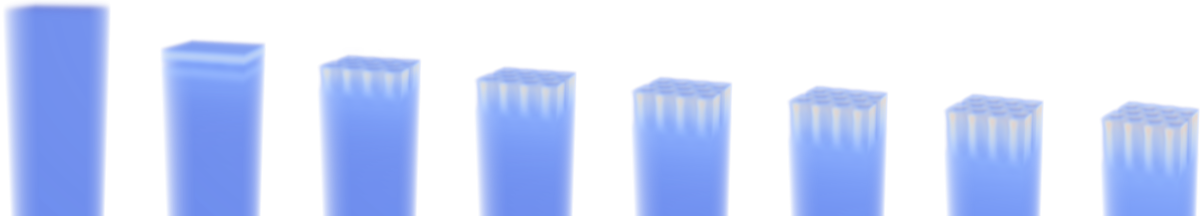

Abbildung 1: Zeitentwicklung der Majoritätsblock-B-Konzentration $\phi_B(r)$ während des EISA-Prozesses, berechnet mit dem Kontinuumsmodell (UDM). Von links nach rechts: fortschreitende Verdampfung des flüchtigen Lösemittels führt zur Selbstorganisation senkrechter Zylinder auf einem hexagonalen Gitter an der Filmoberfläche. Das Zurückweichen der Filmoberfläche ist als Abwärtsbewegung der oberen Grenze sichtbar.

Zum Zeitpunkt von M2.1 war die NIPS-Simulation aufgrund der extremen Sensitivität der zugrunde liegenden PDEs gegenüber Parametervariationen noch nicht stabil. Insbesondere erzeugt der Beginn der Makrophasenseparation steile Konzentrationsgradienten, die numerische Instabilitäten auslösen können, wenn Zeitschritt oder räumliche Auflösung nicht sorgfältig gewählt werden. Dies wurde in den folgenden Monaten durch adaptive Zeitschrittsteuerung und verbesserte Regularisierung der Dichtefelder bei verschwindenden Konzentrationen behoben.

2.1.5 Meilenstein 2.2: Vollständige SNIPS-Simulation (Monat 24)

Meilenstein 2.2 erweiterte die Fähigkeiten auf den vollständigen Membranherstellungsprozess:

- **Vollständige EISA-Simulation** mit zwei Lösemitteln (flüchtiges S, nichtflüchtiges C) und Péclet-Zahl-gesteuerter Hautbildung
- **NIPS-Simulation** mit Nichtlösemittel N, das durch A-reiche Poren eintritt und Makrophasenseparation induziert
- **Vitrifikationsmodellierung**: glasartiger Arrest beim Verlassen der plastifizierenden Lösemittel aus polymerreichen Domänen, wodurch die Morphologie eingefroren wird
- **Quantitativer Vergleich mit Teilchensimulation**: Konzentrationsabweichungsanalyse, Zeitskalenabgleich

Leistung: Das Kontinuumsmodell erreicht eine signifikante Reduktion des Rechenzeitbedarfs gegenüber Teilchensimulationen für äquivalente Systemgrößen, da die pseudo-spektrale Diskretisierung deutlich weniger Freiheitsgrade benötigt.

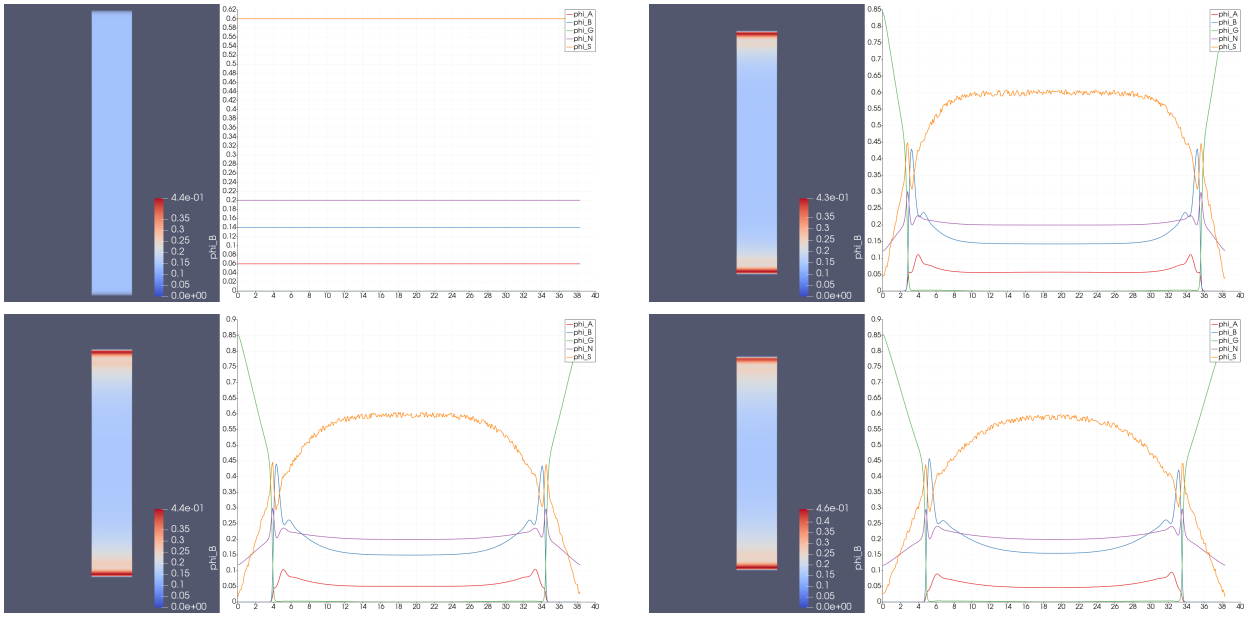

Abbildung 2: Zeitentwicklung einer Zwei-Lösemittel-EISA-Simulation: Das flüchtige Lösemittel S verdampft von der Filmoberfläche, während das nichtflüchtige Lösemittel C verbleibt, was zu einem abgestuften Konzentrationsprofil führt. Die Selbstorganisation senkrechter Zylinder schreitet von der Filmoberseite nach unten fort.

Ein detaillierterer Vergleich der Teilchen- und Kontinuumssimulation für den NIPS-Prozess zeigt drei quantitative Unterschiede (Meilensteinbericht M2.2): (i) In den späten Phasen der NIPS (bzw. näher an der Filmoberfläche) ist die Grenzfläche zwischen dem matrixbildenden Block B und dem Nichtlösemittel N eingefroren, da die plastifizierenden Lösemittel S und C mit dem Nichtlösemittel kompatibel sind und über die BN-Grenzfläche diffundieren. In der Teilchensimulation erfolgt diese Vitrifikation schnell und friert B-reiche Domänen abrupt in einer rauen Form ein. In der Kontinuumssimulation verläuft die Vitrifikation gradueller, d. h. während die großskalige Morphologie erhalten bleibt, ist eine gewisse krümmungsgetriebene Vergröberung noch eine Weile möglich. Dieser Mechanismus reduziert die Rauheit der BN-Grenzfläche und würde potenziell zu einer etwas größeren lateralen Längenskala der makroporösen Substruktur führen. (ii) Die größten Abweichungen zwischen Teilchen- und Kontinuumsmodell treten in der Region auf, in der die Strukturbildung zum Zeitpunkt der Initialisierung t_0 noch nicht stattgefunden hat. In der Teilchensimulation wird dieser Prozess durch Fluktuationen getrieben, während thermische Fluktuationen im Kontinuumsmodell fehlen oder viel kleiner sind. Daher sind Abweichungen zwischen einzelnen Trajektorien zu erwarten, da die Strukturbildung ein stochastischer Prozess ist. In diesem räumlichen Bereich ist die Kopplung der beiden qualitativ verschiedenen Modelle am anspruchsvollsten. (iii) Im Kontinuumsmodell wird die Bildung von A-Kern-Mizellen beobachtet. Ihre Kerne sind leicht durch Nichtlösemittel gequollen, und der Kerndurchmesser beträgt etwa $1{,}5R_e$. Der Wert des invarianten Polymerisationsgrads $\sqrt{N} = 100\,000$ im Kontinuumsmodell ist sehr groß. Daher werden Mizellen vermutlich nicht durch thermische Fluktuationen nukleiert, sondern signalisieren eine lokale Instabilität zur Mikrophasenseparation. Diese Beobachtung illustriert die allgemeine Erkenntnis, dass das instabile Verhalten an der Strukturbildungsfront empfindlich von (1) der genauen Parameterabbildung zwischen den Modellen sowie (2) thermischen (oder numerischen) Fluktuationen abhängt. Daher kann keine quantitative Übereinstimmung einzelner Realisierungen des stochastischen Strukturbildungsprozesses erwartet werden; nur Mittelwerte über Realisierungen (z. B. Längenskala und Euler-Charakteristik der Morphologie) können quantitativ verglichen werden.

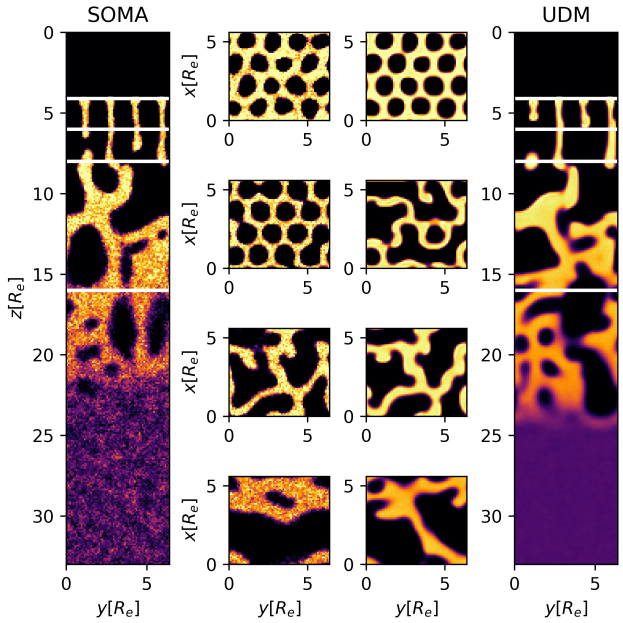

Abbildung 3: Vergleich der B-Konzentrationen zwischen beiden Simulationen bei $t + t_0 = 6{,}4\,\tau_R$. Äußere Felder zeigen 2D-Schnitte der yz-Ebene; innere Felder zeigen xy-Ebenen-Querschnitte bei verschiedenen Tiefen z. Links: Teilchensimulation; rechts: Kontinuumssimulation. Die Tiefen sind durch weiße horizontale Linien markiert. Die erste Schicht ($z = 4{,}1\,R_e$) befindet sich an der vitrifizierten Filmoberfläche; die zweite ($z = 6{,}0\,R_e$) in der selbstorganisierten oberen Schicht; die dritte ($z = 8{,}0\,R_e$) am Übergang zur makroporösen Substruktur; die vierte ($z = 16{,}0\,R_e$) an der Strukturbildungsfront zum Initialisierungszeitpunkt.

Abbildung 3 zeigt verschiedene xy-Querschnitte parallel zur Filmoberfläche bei unterschiedlichen Tiefen. An der Filmoberfläche ($z = 4{,}1\,R_e$) ist die hexagonale selbstorganisierte Struktur in der Teilchensimulation vollständig vitrifiziert, während die internen BN-Grenzflächen in der Kontinuumssimulation glatter geworden sind. Die Gesamtstruktur (Längenskala, Topologie und Domänenplatzierung) stimmt jedoch überein. In der Mitte der selbstorganisierten oberen Schicht ($z = 6{,}0\,R_e$) ist die hexagonale Struktur in der Teilchensimulation während der NIPS erhalten (abgesehen von der Fusion eines Zylinderpaares), aber in der Kontinuumssimulation sind aufgrund der verzögerten Vitrifikation deutlich mehr Zylinder fusioniert. Daher ist der hexagonale selbstorganisierte obere Abschnitt des Films in der Kontinuumssimulation stärker geschrumpft. Am Übergang ($z = 8{,}0\,R_e$) bleibt die Domänenstruktur der beiden Simulationen recht ähnlich. An der Strukturbildungsfront ($z = 16{,}0\,R_e$) unterscheiden sich die resultierenden Domänenstrukturen stark zwischen den beiden Simulationen, da die Makrophasenseparation durch anfängliche Fluktuationen im thermodynamisch instabilen System getrieben wird; die Gesamtlängenskala der Makrophasenseparation ist jedoch vergleichbar.

2.1.6 Erstes Kopplungsschema von Kontinuums- und Teilchensimulationen

Es gibt eine Drei-Schichten-Partitionierung der späten NIPS-Phasen: (1) arretierte EISA-NIPS, (2) NIPS-Formationszone und (3) homogene Gießlösung (Meilensteinbericht M2.2). In letzterer ist die Lösung lateral homogen (d. h. keine Makro- oder Mikrophasenseparation), und es gibt nur flache Konzentrationsgradienten. Die Dynamik besteht aus dem Austausch zwischen Nichtlösemittel N und Lösemitteln S und C, der als eindimensionaler (1D) Transport durch ein unstrukturiertes, homogenes Medium aufgefasst werden kann.

In der ersten gekoppelten Kontinuums-Teilchen-Simulation wird der NIPS-Prozess in der arretierten EISA-NIPS-Schicht und der NIPS-Formationszone durch Teilchensimulationen untersucht, während die lateral homogene Gießlösung an ein 1D-Kontinuumsdiffusionsmodell gekoppelt wird. Dieses Modell verwendet ein lokales Freie-Energie-Funktional (das nur Translationsentropie und paarweise Wechselwirkungen berücksichtigt, ohne die nichtlokale Faltung des UDM), das eine analytische Lösung durch Linearisierung um die mittlere Zusammensetzung ermöglicht. Die Konzen-

trationsabweichungen $\epsilon_\alpha(z,t)$ erfüllen:

$$\frac{\partial \epsilon_\alpha}{\partial(\lambda_0 t)} = \sum_\beta \tilde{D}_{\alpha\beta} \frac{\partial^2 \epsilon_\beta}{\partial(z/R_e)^2} \tag{4}$$

mit einer konstanten kollektiven Diffusionsmatrix $\tilde{D}_{\alpha\beta}$, deren Eigenwerte Γ_i alle nicht-negativ sein müssen, damit die Gießlösung bezüglich kleiner Dichtefluktuationen stabil ist.

Die erste Pilotkopplung (Meilensteinbericht M2.2) demonstrierte einen Speedup-Faktor von 1,5 selbst für eine moderate Filmdicke von $L_z = 80\,R_e$, wobei größere Vorteile für dickere, experimentell relevante Filme erwartet werden. Diese Kopplungsstrategie ist robust, da die Struktur, Thermodynamik und Lösemittel-Nichtlösemittel-Austauschdynamik in der lateral homogenen Gießlösung vergleichsweise einfach sind.

Diese Beobachtungen motivieren die in AP3 entwickelte ML-basierte Parameteridentifikation und Kopplung.

2.2 Arbeitspaket 3: Skalenüberbrückung durch maschinelles Lernen

2.2.1 Zielsetzung

AP3 zielte auf die Entwicklung von Methoden des maschinellen Lernens (ML) zur Kopplung von Teilchen- und Kontinuumssimulationen. Die Kernidee besteht darin, ein ML-Modell zu verwenden, das basierend auf dem aktuellen Systemzustand vorhersagt, wo die Abweichung zwischen den beiden Modellen am größten wäre. Diese Information leitet die Entscheidung, wo die rechenintensive Teilchensimulation eingesetzt werden muss und wo das schnellere Kontinuumsmodell ausreicht.

2.2.2 Meilenstein 3.2: Erste ML-Pipeline mit CNN (Monat 18)

Das erste ML-Entscheidungsmodell verwendete eine Convolutional-Neural-Network (CNN)-Architektur. Ein Datensatz von 6.240 Trainingsbeispielen wurde aus 1.248 Teilchensimulations-Schnappschüssen der Größe (64^3) zu 10 Zeitpunkten generiert. Für jeden Schnappschuss wurde eine entsprechende Kontinuumssimulation über $25\,\tau_R$ durchgeführt, und der RMSE zwischen beiden Modellen am Ende diente als Vorhersageziel. Das CNN bestand aus 4 Faltungsblöcken (4→8→16→32 Kanäle, Kerngröße 7^3), gefolgt von 2 dichten Schichten (440.000 Parameter), und erreichte nach 30 Epochen einen durchschnittlichen Validierungsfehler von etwa 0,5% (Abbildung 4).

Es zeigten sich jedoch mehrere grundlegende Einschränkungen: (i) Das CNN arbeitete auf vollständigen 3D-Dichtefeldern, was die Anwendbarkeit auf verschiedene Gittergrößen beschränkte; (ii) das Training stützte sich auf absolute Zeit t und räumliche Position z, was die Generalisierungsfähigkeit stark einschränkte; (iii) eine Subdomänen-Strategie (Aufteilung in (32^3)-Fenster, 440.000 Proben) lieferte keine aussagekräftigen Ergebnisse aufgrund von Schwierigkeiten mit Zero-Padding und der Modellkorrespondenz zwischen Teilchen- und Kontinuumssimulation. Diese Einschränkungen motivierten ein grundlegendes Redesign für M3.3.

2.2.3 Meilenstein 3.3: Optimierte Kopplung mit MLP-Architektur (Monat 35)

Der letzte Meilenstein von AP3 lieferte ein grundlegend neu gestaltetes ML-Entscheidungsmodell, das die 3D-CNN-Architektur vollständig durch ein Multi-Layer Perceptron (MLP) auf sorgfältig entwickelten schichtweisen Deskriptoren ersetzte. Dies war keine inkrementelle Verbesserung, sondern ein vollständiger Architekturwechsel, motiviert durch die bei M3.2 entdeckten Einschränkungen: Der MLP-Ansatz reduziert die Eingabedimensionalität um Größenordnungen (von $64^3 = 262.144$ Voxeln auf $5 \times 11 = 55$ Deskriptorwerte), beseitigt die Abhängigkeit von absoluten Koordinaten und ermöglicht eine einfache Verallgemeinerung auf beliebige Domänengrößen. Abbildung 5 zeigt den vollständigen Ablauf der MLP-basierten Entscheidungspipeline.

1. Optimierte Deskriptoren: Anstatt rohe 3D-Dichtefelder an das Netzwerk zu übergeben, wurden 63 Kandidaten-Schichtdeskriptoren aus jeder 2D-Horizontalschicht des Dichtefelds berechnet. Mittels gieriger Vorwärtsselektion (Maximierung von McFaddens adjustiertem Pseudo-R^2) wurde

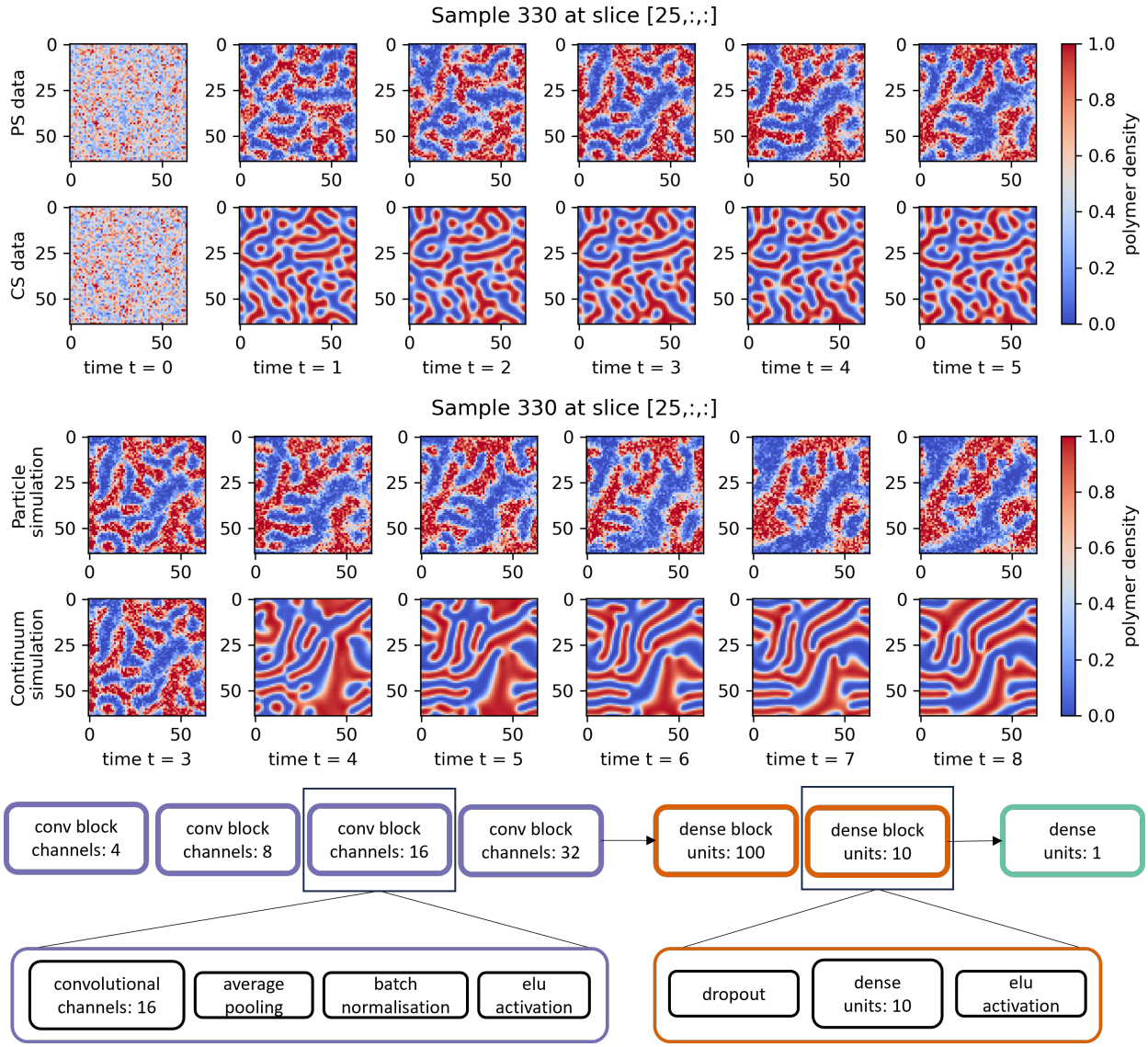

Abbildung 4: Vorläufiger CNN-Ansatz (M3.2), später ersetzt durch die MLP-Architektur (Abschnitt 2.2.3). Die gezeigten Daten sind Platzhalter-Simulationen zur Entwicklung und Validierung der ML-Pipeline, nicht die finalen Projektdaten. Erste und zweite Reihe: Teilchen- und Kontinuumssimulations-Morphologien zu zwei Zeitpunkten während eines Test-NIPS-Laufs, die die Divergenz illustrieren, die das CNN vorhersagen sollte. Dritte Reihe: CNN-Architekturdiagramm.

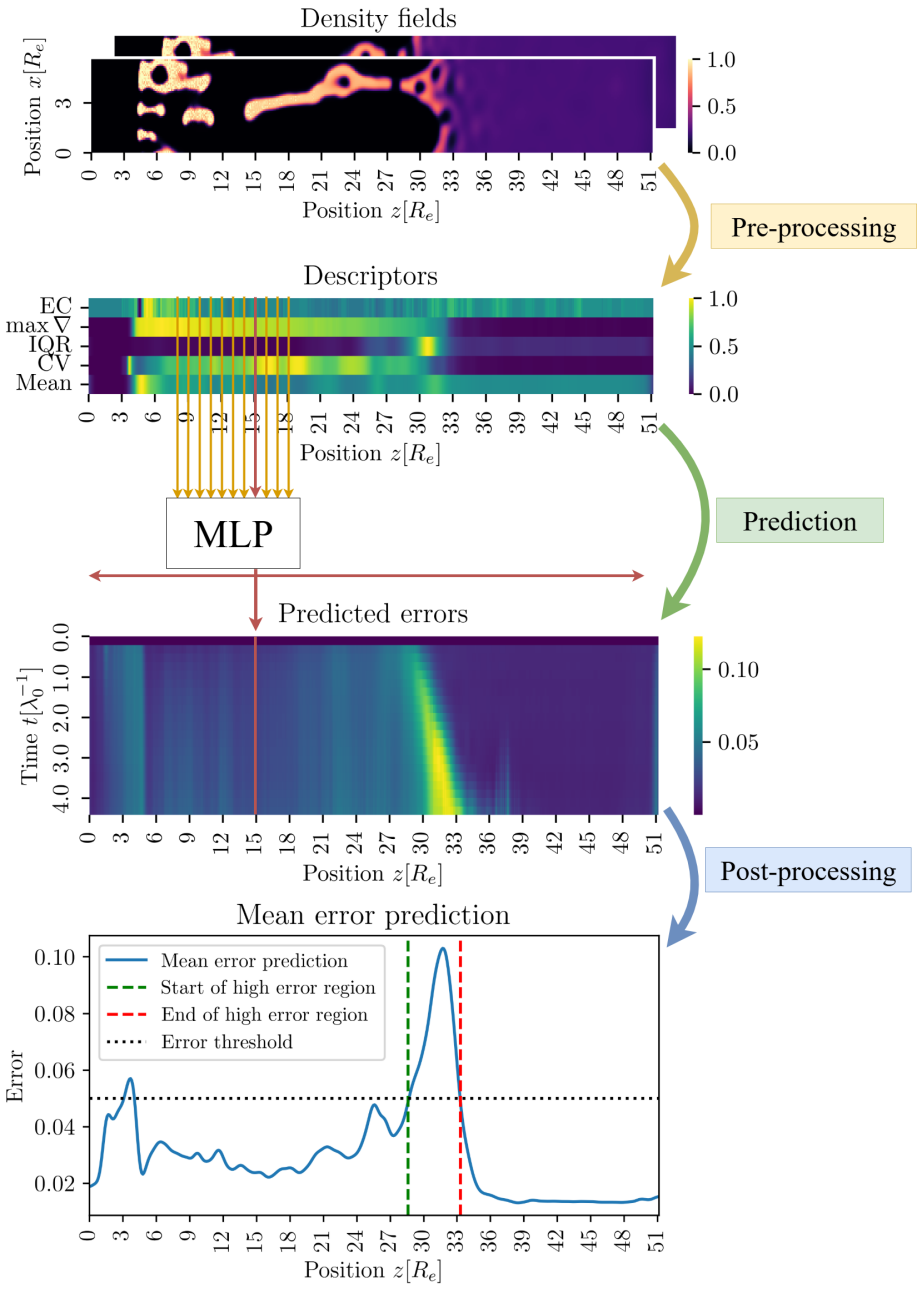

Abbildung 5: Übersicht der MLP-basierten Entscheidungspipeline (aus Busch et al., arXiv:2510.19051). Von oben nach unten: Das Dichtefeld wird zu schichtweisen Deskriptoren (EC, max∇, IQR, CV, Mittelwert) vorverarbeitet. Das MLP bewertet 11 benachbarte Schichten und erzeugt eine Fehlervorhersage über die gesamte Domäne. Durch Nachverarbeitung wird die zusammenhängende Subdomäne bestimmt, in der die Teilchensimulation erforderlich ist.

der optimale Satz von 5 Deskriptoren identifiziert: der *Schichtmittelwert* $\bar{\rho}$ (markiert Strukturbeginn/-ende), die *Euler-Charakteristik* χ_E (Topologie: zusammenhängende Komponenten minus Löcher), der *Variationskoeffizient* $\mathrm{CV} = \sigma/\bar{\rho}$ und *Interquartilbereich* $\mathrm{IQR} = Q_3 - Q_1$ (Form der Dichteverteilung) sowie die *maximale Gradientenmagnitude* $\max|\nabla\rho|$ (Position innerhalb der Strukturen).

2. SHAP-Analyse: Um zu verstehen, welche Merkmale die Modellvorhersagen treiben, wurde eine SHapley-Additive-exPlanation-(SHAP)-Analyse durchgeführt. Abbildung 6 zeigt die kombinierte SHAP-Merkmalswichtigkeit und bestätigt, dass die Euler-Charakteristik und die mittlere Dichte der zentralen Schicht die dominanten Prädiktoren sind, konsistent mit der physikalischen Erwartung, dass das Modell zwischen strukturierten (SOMA erforderlich) und unstrukturierten (UDM ausreichend) Regionen unterscheiden sollte. Die Analyse der SHAP-Werte pro Schicht zeigt, dass die beiden zentralen Schichten um die Klassifikationsposition am meisten zur MLP-Ausgabe beitragen, während die äußersten Schichten am wenigsten beitragen. Die asymmetrische Ausbreitung zu Schichten hinter der aktuellen Schicht spiegelt die zusätzliche Information aus der bereits gebildeten Morphologie wider. Dies validiert die Wahl von 11 Schichten als angemessenes Eingabefenster.

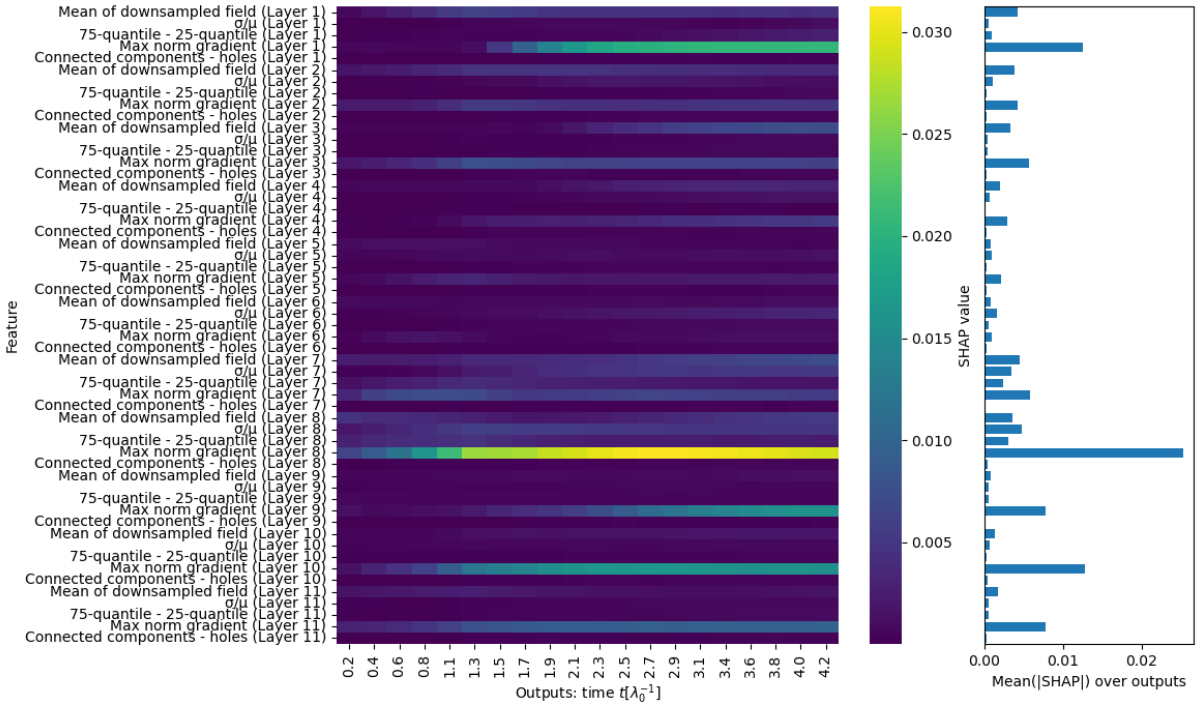

Abbildung 6: SHAP-Merkmalswichtigkeit für das MLP-Entscheidungsmodell. Die Euler-Charakteristik und der Schichtmittelwert dominieren und spiegeln die Fähigkeit des Modells wider, zwischen strukturierten Regionen (Teilchensimulation erforderlich) und der homogenen Gießlösung (adäquat durch das Kontinuumsmodell beschrieben) zu unterscheiden.

3. MLP-Architektur: Das MLP nimmt Deskriptoren von 11 Schichten (5 vor der aktuellen Schicht, die aktuelle Schicht und 5 dahinter) als Eingabe und bietet so räumlichen Kontext bei Unabhängigkeit von der absoluten Domänengröße. Wesentliche Designentscheidungen:

- **2 versteckte Schichten** mit 64 und 32 Neuronen, ReLU-Aktivierungen
- **Binäre Ausgabe**: Vorhersage, ob Teilchen- und Kontinuumssimulation an einer gegebenen Schichtposition in der zukünftigen Morphologie übereinstimmen werden
- **Training**: auf eigenständigen SOMA- und UDM-Simulationen zu 10 gleichmäßig verteilten Zeitpunkten aus 10 unabhängigen Läufen

- **Kreuzvalidierung**: Leave-one-simulation-out-Strategie zur Sicherstellung der Generalisierung über verschiedene stochastische Realisierungen

4. Wandeffekt-Korrektur für Trainingsdaten: An den Domänenrändern treten numerische Artefakte auf, die charakteristische Signaturen in den Deskriptoren erzeugen. Diese Artefakte würden dem Klassifikator erlauben, die beiden Modelle trivial anhand von Randsignaturen statt echter physikalischer Unterschiede zu unterscheiden. Um dies zu adressieren, schließt der Trainingsdatensatz Schichten innerhalb von $5R_e$ von den Box-Rändern aus, wodurch sichergestellt wird, dass sich das MLP auf physikalisch bedeutsame Diskrepanzen konzentriert.

5. Nachverarbeitung und Subdomänenselektion: Der vorhergesagte Fehler wird zeitlich über die SOMA-Startperiode ΔT gemittelt, an einem Wert zwischen dem maximalen und dem domänengemittelten Fehler thresholdiert und zur Auswahl einer zusammenhängenden Subdomäne um das Maximum verwendet. Die Subdomänengrenze darf sich pro Schritt höchstens um $5R_e$ bewegen, um Sprünge zu vermeiden. Ein zusätzlicher Rand von $5R_e$ stellt sicher, dass der Polymerfluss an den Grenzen verschwindet, wodurch die Notwendigkeit semi-grandkanonischer Polymererzeugung oder -zerstörung vermieden wird.

Das MLP-Modell identifiziert korrekt, dass der maximal vorhergesagte Fehler durch das System propagiert und die Strukturbildungsfront verfolgt, an der die Makrophasenseparation aktiv stattfindet.

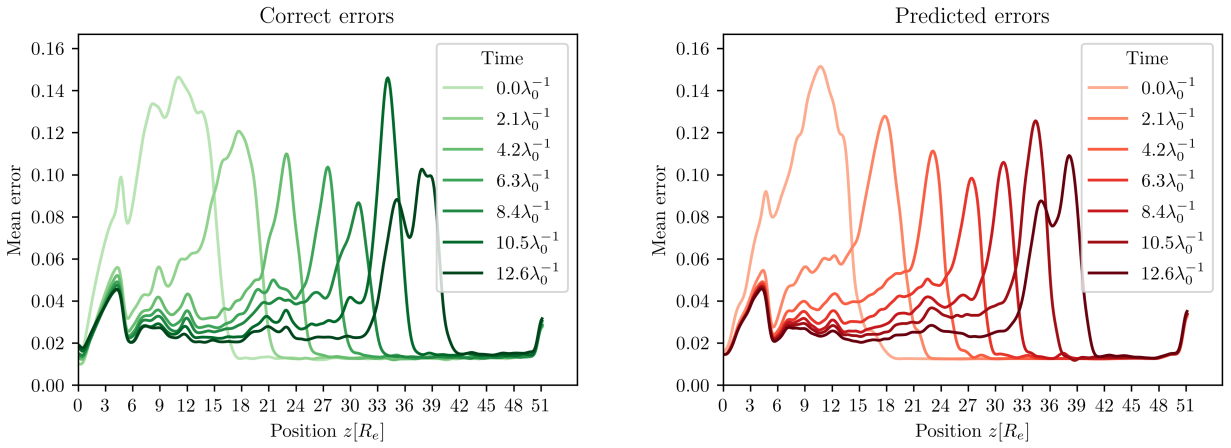

Abbildung 7: Verlauf der Fehlervorhersagen des MLP-Modells im Vergleich zum tatsächlichen Fehler (Label) für eine Beispielsimulation (Simulation 19). Links: tatsächlicher mittlerer Fehler zwischen Teilchen- und Kontinuumssimulation; rechts: vom MLP vorhergesagter Fehler. Das Modell verfolgt zuverlässig die Strukturbildungsfront und identifiziert Regionen hoher Diskrepanz (siehe auch Busch et al., arXiv:2510.19051).

Die Subdomänengrenzen folgen den ML-basierten Vorhersagen eng. Ein zusätzlicher Rand von $5R_e$ wird zur ML-Empfehlung hinzugefügt, und die Subdomäne wird auf eine maximale Größe von $18R_e$ beschränkt. Der Polymerfluss – maximal an der Strukturbildungsfront – verschwindet stets an den Subdomänengrenzen, was die physikalische Konsistenz der Randbedingungen sicherstellt.

3 Voraussichtlicher Nutzen und Verwertungsplan

Das entwickelte Mehrskalensimulations-Framework ermöglicht die systematische Untersuchung des Parameterraums (Polymerarchitektur, Lösemittelauswahl, Prozessbedingungen) und trägt zu einem besseren Verständnis von Struktur-Prozess-Eigenschafts-Beziehungen bei.

Aufbauend auf MExMeMo könnte zukünftige Arbeit die KI/ML-Komponente stärken, z. B. durch Reinforcement Learning für Prozessparameteroptimierung, generative Modelle für inverses Design und Integration mit experimentellem Screening.

4 Fortschritte Dritter auf dem Gebiet

Während der Durchführung des Vorhabens wurden dem Zuwendungsempfänger keine unmittelbar konkurrierenden Arbeiten Dritter auf dem Gebiet der ML-basierten Kopplung von Teilchen- und Kontinuumssimulationen für die Membranherstellung bekannt.

5 Veröffentlichungen und Verbreitung

1. F. Mossaiby, G. Häfner, A. Shojaei, A. Hermann, C. Cyron, M. Müller, S. A. Silling: "On efficient simulation of self-assembling diblock copolymers using a peridynamic-enhanced Fourier spectral method", *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* **439**, 117878 (2025)
2. M. Busch, G. Häfner, J. Xie, M. Tacke, M. Müller, C. J. Cyron, R. C. Aydin: "Machine-learned domain partitioning for computationally efficient coupling of continuum and particle simulations of membrane fabrication", eingereicht (arXiv:2510.19051)
3. G. Häfner, M. Busch, A. Dabah, J. Xie, N. Blagojevic, S. Das, S. Happ, S. Pickartz, L. Großmann, M. Radjabian, V. Abetz, C. J. Cyron, A. Herten, R. C. Aydin, M. Müller: "Concurrently coupling particle and continuum simulation to study block copolymer membrane fabrication", eingereicht (Preprint auf chemRxiv)

Der entwickelte Simulationscode und das trainierte ML-Modell sind öffentlich verfügbar:

- DCAT: `gitlab.jsc.fz-juelich.de/mexmemo/dcat`
- Trainiertes ML-Modell und Trainingsdaten: `https://doi.org/10.5281/zenodo.17396869`