

数据驱动的化学链燃烧铁矿石氧载体性能预测

李璐璐¹, 郑朝和¹, 刘先宇¹, 赵海波¹, 叶 骥²

(1. 华中科技大学能源与动力工程学院煤燃烧与低碳利用全国重点实验室, 武汉 430074;

2. 广东能源集团科学技术研究院有限公司, 广州 510630)

摘要: 针对可应用于实际化学链燃烧过程中铁矿石氧载体的筛选, 提出了一种数据驱动的铁矿石氧载体性能预测策略, 分别构建了 10 种机器学习分类模型, 实现了氧载体数据集的主动匹配, 针对煤/煤焦碳转化率 95% 所需时间及燃烧效率的预测均实现了较高的准确率 (94.66% 和 93.07%)。通过基于 SHAP 的模型解释方法, 辨识出煤种特性、Fe₂O₃ 含量、粒径、温度和氧燃比为制约铁矿石氧载体性能的关键因素。针对实际化学链燃烧复杂因素的单一/综合影响, 实现了多工况下氧载体自身的物化性质、反应条件和煤种匹配的协调统一。

关键词: 化学链燃烧; 氧载体; 性能预测; 机器学习; 模型解释

中图分类号: TK11

文献标志码: A

文章编号: 1006-8740(2026)01-0049-10

Data-Driven Performance Prediction of Iron Ore Oxygen Carriers in Chemical Looping Combustion

Li Lulu¹, Zheng Chaohe¹, Liu Xianyu¹, Zhao Haibo¹, Ye Ji²

(1. State Key Laboratory of Coal Combustion, School of Energy and Power Engineering,

Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China;

2. Institute of Science and Technology, Guangzhong Province Energy Group Co. Ltd., Guangzhou 510630, China)

Abstract: To facilitate the selection of iron ore oxygen carriers for practical chemical looping combustion (CLC) processes, a data-driven strategy for predicting the performance of these carriers is proposed. Ten machine learning classification models are developed to actively match the oxygen carrier dataset. The predictions for both the time required to achieve 95% carbon conversion of coal/char and the combustion efficiency achieve high accuracy of 94.66% and 93.07%, respectively. Using a SHAP-based model interpretation method, the research identifies key factors that constrain the performance of iron ore oxygen carriers, including coal type characteristics, Fe₂O₃ content, particle size, temperature, and oxygen-to-fuel ratio. The study addresses the individual and combined effects of complex factors in practical CLC processes, achieving a harmonized integration of the physicochemical properties of the oxygen carrier, reaction conditions, and coal type matching under multiple operating conditions.

Keywords: chemical looping combustion; oxygen carrier; performance prediction; machine learning; model interpretation

收稿日期: 2025-01-10.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (52536008); 湖北省自然科学基金资助项目 (2022CFD035).

作者简介: 李璐璐 (1996—), 男, 博士研究生, d202380505@hust.edu.cn.

通信作者: 赵海波, 男, 博士, 教授, hzhao@mail.hust.edu.cn.

面对日益严峻的能源与环境问题,高效率、低污染的低碳燃烧方式已成为重要的研究内容. 化学链燃烧(chemical looping combustion, CLC)是一种具有 CO_2 内分离特性的新型清洁高效的燃烧方式,它借助循环于空气反应器和燃料反应器之间的固体氧载体颗粒传递的晶格氧进行燃料的间接燃烧,避免了燃料与空气的直接接触,从而实现近零能耗条件下的 CO_2 分离与捕集. 然而,CLC 技术发展的关键环节之一是根据成本、氧传递能力和循环稳定性选择合适的氧载体材料以增强燃烧过程,低成本、高活性的氧载体是决定化学链技术能否规模化应用的关键因素之一.

目前文献中已报道了 2 000 余种氧载体^[1],筛选空间从负载型单金属氧化物扩展到了各种混合金属氧化物家族. 其中,铁矿石氧载体因其成本低廉、易获得,可在长周期运行中表现出良好的稳定性,应用于固体燃料时具有足够的反应性而得到了广泛关注^[2-5]. 然而,寻求氧载体、燃料特性、反应条件三者间合适的作用关系一直是一项挑战. Chen 等^[6]在流化床反应器上比较了赤铁矿等 5 种 Fe 基氧载体与美国东肯塔基煤和西肯塔基煤为原料制备的煤焦的 CLC 反应性能,获得了具有较高煤焦转化率的 Fe 基氧载体. Ge 等^[7]测试了赤铁矿氧载体与 4 种煤的 CLC 性能,结果发现,在相同温度下,高钠准东煤作为燃料表现出最高的碳捕集效率和碳转化效率. Ma 等^[8]继而以不同 Fe_2O_3 含量的铁矿石(65.9% ~ 91.6%)与不同品位的褐煤进行了 CLC 性能比较,探究了铁矿石-燃料的匹配关系. 另外, Fang 等^[9]还在固定床反应器上以赤铁矿为氧载体研究了氧载体床料量、反应温度、流化气速和氧载体类型对燃料反应器中氮平衡的影响,探究最小化氮排放下的化学链燃烧运行条件. 然而,无论从效率还是经济方面考虑,对于高品质 Fe 基氧载体的裁剪和筛选,传统耗时耗力的“实验试错法”已远远无法满足需求,快速准确地预测氧载体的材料特性及其反应条件、燃料的匹配,对于推进 CLC 领域发展具有重要意义,亟需高效的筛选方法来缩小性能优异且经济可行的新型铁矿石氧载体的材料设计空间.

机器学习(machine learning, ML)作为人工智能领域的一个重要分支,已被证明在进行材料筛选^[10-11]和辅助过程分析^[12-14]时特别有效. 其中,基于机器学习进行氧载体性能预测与筛选的基本流程可概括为图 1. 目前,根据已有实验数据进行的 ML 方法,在氧载体材料的设计中已经展现出了不俗的预测能力. Yan 等^[15]设计了一种使用机器学习算法,预测锰矿石作为氧载体在化学链过程中反应性的方法,经过

训练的人工神经网络模型可以对化学链过程中非均质、多组分的锰矿石氧载体提供较好的性能预测. Song 等^[16]提出了一种利用反向传播神经网络和支持向量机算法来比较天然矿石氧载体的反应性(包括 CO 转化率、 CH_4 转化率和晶格氧释放特性)的 ML 模型,并将其应用于天然矿石氧载体的筛选. 另外,ML 辅助的基于密度泛函理论的高通量计算也在一定程度上加速了氧载体的分子性质预测和筛选^[17-19]. 然而,氧载体的性能预测与筛选是个复杂的工程,且实际的氧载体材料设计空间复杂多样,对于实际 CLC 运行所需的氧载体自身特性、匹配燃料及反应条件间的复杂非线性映射关系尚且没有有效的处置策略.

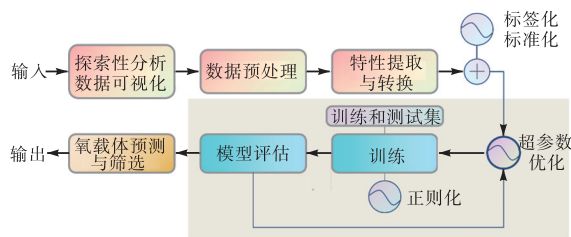


图 1 应用于氧载体性能预测与筛选的机器学习基本流程

Fig.1 Machine learning process for performance prediction and screening of oxygen carriers

因此,为加速可应用于实际 CLC 过程的新型铁矿石氧载体,本工作通过实验数据结合主流的 10 种 ML 算法,构建了铁矿石氧载体性能与特征匹配关系的最优预测模型,阐明了铁矿石氧载体的主要性能制约因素,为高性能铁矿石氧载体的筛选奠定基础. 由于铁矿石氧载体的实际活性是由其自身特定性质及其相互作用环境决定的,单一条件很难反映整个氧化还原过程的特征-性能关系,因此构建数据驱动的氧载体性能预测 ML 模型,可有效地预测复杂条件下铁矿石氧载体的反应活性,加速“氧载体组分-反应条件-CLC 性能”映射关系的构建. 为辨识制约铁矿石氧载体实际反应活性的关键因素,本文引入基于 SHAP(SHapley Additive exPlanations)的可解释机器学习算法,实现各特征的贡献度分析. 最终通过敏感性分析,揭示多种性能制约因素的内在相关性及其反应调变区间.

1 材料和方法

1.1 氧载体数据集

本工作重点关注了 900 °C、950 °C 和 1 000 °C 共 3 种温度下的 16 种具有不同 Fe_2O_3 含量的铁矿石氧载

体及其与不同品位煤/煤焦的实际反应性能,并以煤/煤焦碳转化率达到 95% 所需时间, $t_{Xc=0.95}$ (记为 Label1) 以及煤/煤焦碳转化率达到 95% 期间的燃烧效率, η_{comb} (记为 Label2) 两个指标对 Fe 基氧载体针对煤/煤焦的反应性能进行定量评估. 为尽可能减少反应器构型的不同对氧载体实际性能造成的影响,所有用于 ML 模型训练的数据均来自于相同构型的批次流化床反应器中进行的煤的原位气化学链燃烧实验研究^[8]. 另外,铁矿石的预氧化有助于防止脱流化^[20],且经过煅烧可提高天然矿物的机械强度和初始反应速率,因此,本研究中选取的铁矿石类氧载体均经过了热处理.

同时,为更好地定量研究不同品位煤种对铁矿石氧载体性能的影响及不同煤种与铁矿石氧载体的匹配关系,数据集选取了 11 种以不同品位的煤/煤焦作为燃料的实验数据,并以煤化程度,即煤的固定碳与挥发分之比,来描述煤种特性(记为 C/V),以训练包含煤种信息的 ML 模型. 对于氧载体特性,活性组分含量和粒径为氧载体反应性能主要的影响因素,因此将铁矿石氧载体的活性组分含量和粒径作为模型训练的输入特征. 对于反应条件,首先不同的反应温度对 CLC 过程中 Fe 基氧载体的反应活性有着显著的

影响,通常反应温度提升,可有效降低氧载体的反应活化能并可在还原阶段促进反应向吸热的方向进行,提高氧载体实际反应性能. 另外,合适的流化气速、床料量和氧燃比对氧载体的实际反应也有着重要的影响. 流化气速过高,则氧载体停留时间较短,无法保证与燃料充分接触而导致燃烧效率降低. 另外,合适的氧燃比对氧载体的实际反应也有着重要的影响. 一般地,氧燃比较低,晶格氧迁移速率增加,但燃料转化率较低,燃料燃尽困难,燃烧效率降低;氧燃比过高,则增加了氧载体用量而提高了成本. 因此,将反应温度、流化气速、床料量和氧燃比作为模型训练的输入特征. 最终,构建了包含煤种、氧载体特性和反应条件的 101 组仅以 Fe_2O_3 为活性组分的铁矿石氧载体的批次流化床实验数据集,如表 1 所示(数据来源可参考已发表的报道^[2, 8, 21-25]).

其中,完整的用于铁矿石氧载体性能预测模型训练的数据集可以划分为训练集(80%)和测试集(20%). 训练集负责铁矿石氧载体性能预测模型的训练,而测试集则用于测试模型对未见铁矿石氧载体数据的预测性能. 根据铁矿石氧载体的性能优劣为数据集输出创建的分类标注如表 2 所示.

表 1 用于机器学习训练的铁矿石氧载体实验数据集

Tab.1 Experimental dataset of iron ore oxygen carriers for machine learning training

输入特征								输出指标	
煤种	氧载体性质		反应条件				氧载体性能		
$C/V(-)$	Fe_2O_3 质量分数/%	粒径/ μm	反应温度/ $^{\circ}C$	流化气速/(L/min)	H_2O 和 N_2 体积分数/%	氧载体床料量/g	氧燃比	$t_{Xc=0.95}$	η_{comb}
[0.8, 10.6]	[42.0, 92.0]	[150.0, 250.0]	[900.0, 1 000.0]	[0.8, 2.0]	[20.0, 80.0]	[15.0, 100.0]	[0.9, 3.0]	[C -, A +]	[C -, A +]

表 2 铁矿石氧载体的性能标注

Tab.2 Performance labeling of iron ore oxygen carriers for machine learning training

$t_{Xc=95\%}/s$		$\eta_{comb}/\%$	
范围	标注	范围	标注
<50	A+	>95	A+
[50, 100)	A	[90, 95)	A
[100, 300)	A-	[85, 90)	A-
[300, 500)	B+	[80, 85)	B+
[500, 700)	B	[75, 80)	B
[700, 1 000)	B-	[70, 75)	B-
[1 000, 1 300)	C+	[65, 70)	C+
[1 300, 1 500]	C	[60, 65]	C
>1 500	C-	<60	C-

1.2 性能预测方案

氧载体材料的性能预测和调变是一项复杂工程,但可以通过提取制约氧载体实际反应性能的决定性

特征,构建特征-性能映射关系来驱动高性能氧载体的预测和筛选. 铁矿石氧载体与不同煤种特性的反应性能取决于氧载体的自身性质,包括活性组分含量、粒径,以及反应条件(燃料类型、温度、流化气速、床料量和氧燃比). 因此,为构建 Fe 基氧载体的性能预测和筛选模型,本工作基于以上 8 个输入特征和 $t_{Xc=0.95}$ 、 η_{comb} 2 个铁矿石氧载体性能指标,采用 K 近邻(KNN)、基于高斯分类器的朴素贝叶斯(GaussianNB)、基于伯努利分类器的朴素贝叶斯(BernoulliNB)、基于 Gini 系数的决策树(DecisionTreeGini)、基于信息增益的决策树(DecisionTreeEntropy)、支持向量机(SVM)、随机森林(RandomForest)、AdaBoost、梯度提升决策树(GBDT)、人工神经网络(ANN) 10 种 ML 分类算法构建并训练挑选出最优 ML 模型进行铁矿石氧载体的性能预测. 接着,通过基于可解释机器学习算法

SHAP 进行特征贡献度分析,提取制约铁矿石氧载体性能的关键特征. 最终,通过敏感性分析阐明影响氧载体性能的关键特征的调变趋势.

另外,模型性能是制约 ML 在特定领域能否提供可靠指导的关键要素之一. 如图 2 所示,本工作通过自动贝叶斯优化对所有 ML 模型进行全局超参数寻优 (hyperparameter optimization, HPO), 训练过程耦合 5-折交叉验证,为铁矿石氧载体的 ML 模型构建

最优的超参数配置. 同时,在模型开始训练前需进行特征工程(数据标签化与标准化)以提高数据质量,且针对数据样本不平衡问题采用合成少数类过采样技术 (synthetic minority oversampling technique, SMOTE) 进行样本平衡处理,尽可能训练出具有预测精度高且泛化能力强的 ML 模型. 通过对各个优化后的模型进行性能评估,挑选适合当前数据集的最优 ML 模型,最终用于铁矿石氧载体的性能预测.

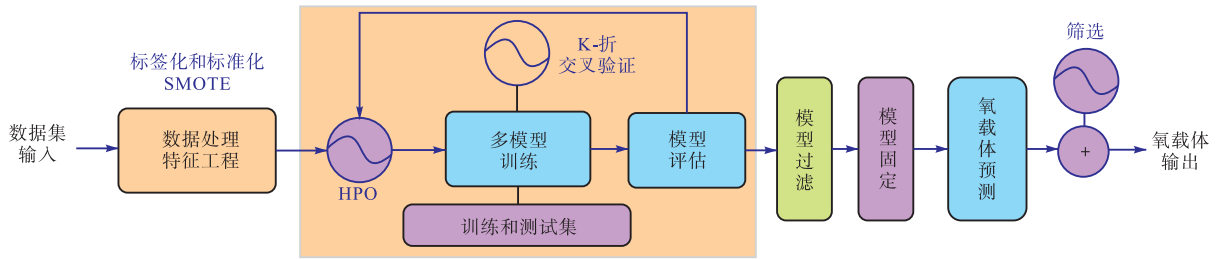


图 2 多机器学习模型进行氧载体性能预测的工作流程

Fig.2 Workflow of oxygen carriers performance prediction with multiple machine learning models

1.3 数据评估

氧载体性能指标的计算如下,氧燃比为

$$\psi = \frac{n_{O,OC}}{n_{O,fuel}} \quad (1)$$

式中: $n_{O,OC}$ 为氧载体中活性氧的物质的量(考虑 Fe_2O_3 被还原为 Fe_3O_4), mol; $n_{O,fuel}$ 是煤/煤焦充分燃烧所需氧的物质的量, mol, 计算方法如下:

$$n_{O,OC} = m_{OC} \frac{\beta_{Fe_2O_3}}{3M_{Fe_2O_3}} \quad (2)$$

$$n_{O,fuel} = m_{fuel} \left(\frac{0\beta_N}{M_N} + \frac{2\beta_C}{M_C} + \frac{2\beta_S}{M_S} + \frac{\beta_H}{2M_H} - \frac{\beta_O}{M_O} \right) \quad (3)$$

式中: m_{OC} 为氧化后氧载体的质量; m_{fuel} 为煤/煤焦进入反应器的质量. β_i 为组分 i (氧载体中的 Fe_2O_3 或煤/煤焦中的 C, H, N, S, O 组分) 的质量分数, M 为组分 i 的摩尔质量. 式(3)假设在燃料反应器中煤/煤焦只被氧化为 N_2 , CO_2 , SO_2 和 H_2O .

在本研究中,假设在每个循环的氧化阶段结束时灰分中没有碳. 因此,计算还原阶段的碳转化率 X_C 为

$$X_C = \frac{\int_{t_0}^{t'} F_{out,red} (y_{CO} + y_{CO_2} + y_{CH_4}) dt}{\int_{t_0}^{t_{total}} F_{out,red} (y_{CO_2} + y_{CO} + y_{CH_4}) dt} \quad (4)$$

式中: $F_{out,red}$ 为反应器出口气体流速, L/s, 可根据 N_2 平衡计算:

$$F_{out,red} = \frac{F_{N_2}}{1 - y_{CO_2} - y_{CO} - y_{CH_4} - y_{H_2} - y_{O_2}} \quad (5)$$

式中: t_0 和 t_{total} 分别为还原阶段的起始和结束时间; y_i 为反应器出口气体 i 的瞬时体积分数; F_{N_2} 为反应器入口 N_2 流量, L/s.

因此,氧载体的还原过程中碳转化率 x_C 可表示为

$$x_C = \frac{dX_C}{dt} \quad (6)$$

平均表观碳转化率 $r_{0.95,C}$ 可表示为

$$r_{0.95,C} = \frac{0.95}{t_{Xc=0.95} - t_0} \quad (7)$$

为了进一步评价煤或煤焦的气化程度,计算瞬时碳转化率 x_{inst} :

$$x_{inst} = \frac{1}{1 - X_C} \frac{dX_C}{dt} \quad (8)$$

煤或煤焦在碳转化率达到 95% 期间的燃烧效率为

$$\eta_{comb} = 1 - \frac{M_o \int_0^{Xc=0.95} F_{out,red} (y_{H_2} + y_{CO} + 4y_{CH_4}) dt}{22.4 \cdot \frac{1}{\varphi_{OC} m_{fuel}}} \quad (9)$$

式中: $t_{Xc=0.95}$ 为煤/煤焦碳转化率达到 95% 所需时间, s; φ_{OC} 为每单位质量煤/煤焦完全氧化为 CO_2 和 H_2O 所需氧的物质的量, mol/g.

2 结果和讨论

2.1 多模型性能评估

在多分类问题中,测试集的绝对匹配率(方程(10))、召回率(方程(13)和(14))和 F_1 分数(方程(15))常用作对已训练的 ML 模型的预测性能进行评估的指标.测试集的上述指标越大,说明 ML 模型拟合效果越好.具体的指标计算方法如下:

绝对匹配率(accuracy, ACC),即对于每一个样本来说,只有预测值与真实值完全相同的情况下才为预测正确,该准确率计算公式为

$$R_{ACC}(y_s, \hat{y}_s) = \frac{1}{n_{\text{samples}}} \sum_{i=0}^{n_{\text{samples}}-1} I(\hat{y}_s = y_s) \quad (10)$$

式中: y_s 是真实值为正确的标签数据; \hat{y}_s 为分类器预测为正确的值; $I(x)$ 为指示函数,当 \hat{y}_s 完全等同于 y_s 时,值为 1;否则,值为 0.

精确率计算的是所有样本的平均精确率.对于每个样本来说,精确率就是预测正确的标签数在整个分类器预测为正确的标签数中的占比,其计算公式为

$$P(y_s, \hat{y}_s) = \frac{|y_s \cap \hat{y}_s|}{|\hat{y}_s|} \quad (11)$$

$$P_{av} = \frac{1}{|S|} \sum_{s \in S} P(y_s, \hat{y}_s) \quad (12)$$

式中 S 为样本总数.

召回率计算的是所有样本的平均召回率.而对于每个样本来说,召回率就是预测正确的标签数在整个正确的标签数中的占比,其计算公式为

$$R(y_s, \hat{y}_s) = \frac{|y_s \cap \hat{y}_s|}{|y_s|} \quad (13)$$

$$R_{av} = \frac{1}{|S|} \sum_{s \in S} R(y_s, \hat{y}_s) \quad (14)$$

F_1 分数(F_1),其得分取决于召回率和精确率,它是这两个值的调和平均值.当 $\beta = 1$ 时即为 F_1 分数,其计算公式为

$$F_\beta(y_s, \hat{y}_s) = \frac{1}{|S|} \sum_{s \in S} \frac{2 * P(y_s, \hat{y}_s) * R(y_s, \hat{y}_s)}{P(y_s, \hat{y}_s) + R(y_s, \hat{y}_s)} = \frac{1}{|S|} \sum_{s \in S} \frac{2 * |y_s \cap \hat{y}_s|}{|y_s| + |\hat{y}_s|} \quad (15)$$

作为模型未训练的新数据,测试集的预测准确率很大程度上反映了模型对训练数据的学习效果和泛化能力.图 3(a)显示了 10 种(20 个)具有不同超参数配置的 ML 模型分别对煤/煤焦碳转化率达到了 95% 所

需时间以及在此期间的燃烧效率两个性能指标的预测准确率和 5-折交叉验证结果(模型名称后的数字代表指标 Label1 或 Label2).对于 Label1 的预测,基于信息增益的决策树模型(DecisionTreeEntropy-1)表现出了最优的预测准确率,其 5-折交叉验证分数和测试集预测准确率均最高,其中测试集的预测准确率达到 94.66%.对于 Label2,支持向量机分类模型(SVM-2)表现出了最优的预测性能,其测试集的预测准确率达到 93.07%.同时可以看到,对于 Label1 和 Label2,均有模型的预测准确率很差(甚至低于 60%),这主要是因为对于不同分布的数据,不同模型对多分类输出的拟合方式不同,可能出现过拟合,可通过提高数据质量,并进一步优化超参数来进行改善.

筛选后的最优模型的进一步性能评估如图 3(b)所示.可以看到,对于 Label1, DecisionTreeEntropy 对性能等级为 A+、B-、C+、C 的预测能力表现最优,准确率均达到了 100%;对性能等级为 B+ 的预测能力次之(准确率为 95%).然而,对性能等级为 A、A- 的预测准确率较低,原因可能是训练数据中这些指标的输入特征与其他样本在值上相似,但实验结果不同,需进一步捕获其他对氧载体性能产生影响的制约因素,以区分这些相似的样本或增加更多的有效数据,提高模型预测精度.或者这些指标的样本数据噪声大,数据质量较差.同样地,对于 Label2, SVM 对 A+、B+、B- 性能等级的预测能力均较好,对 A、A- 的预测能力较差.

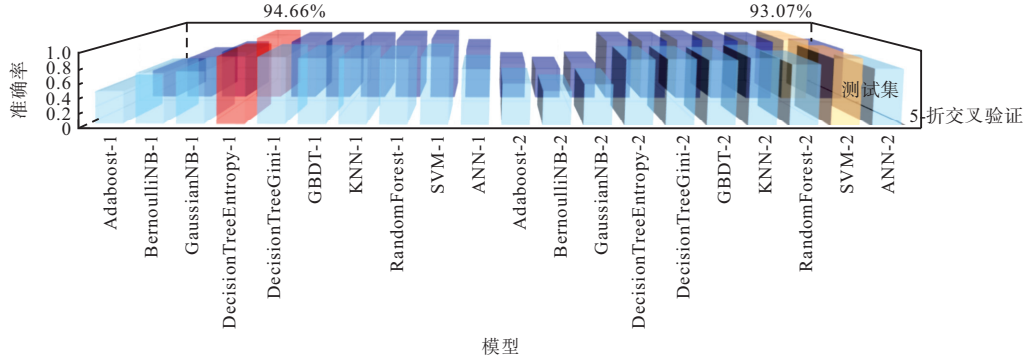
综上,通过全局贝叶斯超参数调优和最优模型适配,基于信息增益的决策树模型和支持向量机模型,针对当前铁矿石氧载体数据集,分别对两个性能指标表现出了最高的预测准确率.同时,通过提高训练数据集 A 和 A- 样本的数据质量来进一步提高模型性能,两个最优模型的成功训练为后续铁矿石氧载体的性能预测提供了必要准备.

2.2 关键因素提取

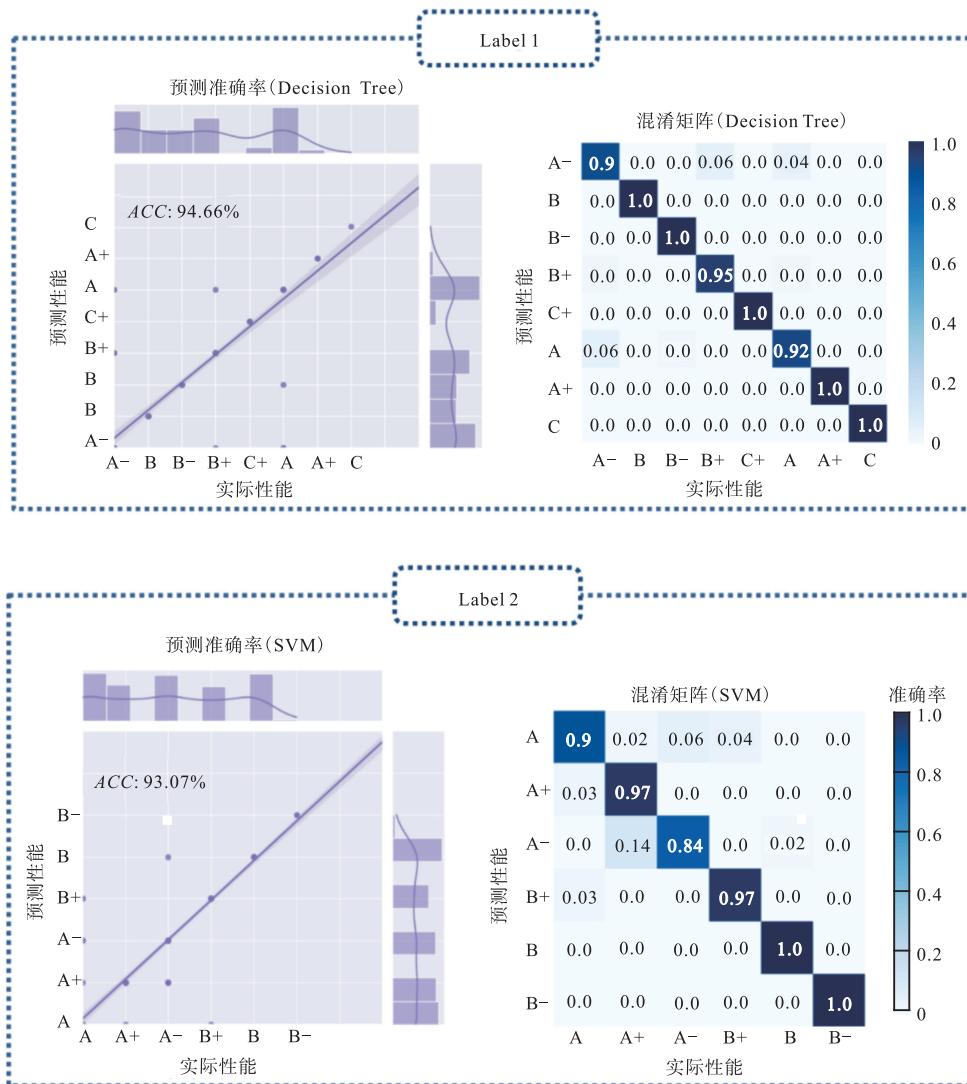
为进一步揭示铁矿石氧载体性能的关键制约因素,探究其对氧载体品质的作用规律,将对铁矿石氧载体数据集中的 8 个用于训练的输入特征进行基于 SHAP 的特征贡献度分析. SHAP 作为解释机器学习模型输出的有力工具,通过计算特征对模型输出的边际贡献,可实现从局部和全局两个层面对“黑盒模型”进行解释,且 SHAP 归因方法满足“一致性”要求,改变基准模型不会改变特征的重要性.因此,本节采用 XGBoost 模型作为基准模型,在 SHAP 中估计每个特征的贡献度以用于理解各个特征对模型输出的一般影响.

局部解释分析了如何结合个性化输入数据对特定个体进行结果预测. 如图 4 所示, 每个 Label 下的左侧为单样本特征影响图, 可用于评估单个样本各个特征对预测结果的贡献程度, 横轴为 SHAP 值, 纵轴是该样本各个特征的取值(各特征的取值为标准化后

的数值, 标准化采用的均值和方差与特征工程保持一致), 蓝色代表该特征对预测有负向影响, 红色代表该特征对预测有正向影响. $E[f(x)]$ 为 SHAP 基准值, 也即该模型预测的均值, 最终得到的该样本的 SHAP 值为 $f(x)$. 对于 Label1, 该样本的 SHAP 值为 5.001



(a) 10 种 ML 算法基于未见数据对 Label1 和 Label2 两个性能指标的预测准确率



(b) 针对 Label1 和 Label2, 最优模型预测的铁矿石氧载体性能与实际性能间的对比

图 3 多模型性能评估

Fig.3 Performance evaluation of multiple models

(大于 0), 表示当前样本的 $t_{Xc=0.95}$ 性能指标倾向于预测为“高性能”。同时可以看到, 煤种特性 C/V 、氧燃比 R_{OF} 、氧载体粒径(PS)、 Fe_2O_3 含量(Fe_2O_3)、温度(T)、气化介质浓度(FA)和床料量(Inv)的值将决策结果推向“高性能”方向, 而流化气速(GFR)作用相反。如果大多数特征的实际值正常, 则该氧载体预测为“高性能”的风险较低。相比之下, 若 GFR 的实际值超出正常范围, 可能会增加该实验样本的氧载体性能下降的风险, 尽管总体预测该样本的氧载体倾向于表现为“高性能”。对于 Label2, 该样本的 SHAP 值为 0, 说明当前样本对总体 η_{comb} 性能指标的预测无实质性贡献(无正向作用, 也无负向作用)。此外, 通过对单样本各特征的贡献度分析可以发现, C/V 、 R_{OF} 、 Fe_2O_3 依然对模型的预测结果具有重要作用。

全局解释描述了各个特征整体上对模型输出的影响。图 4 中每个 Label 下的右侧为特征密度散点图。对于每个样本, 模型中的 SHAP 值都有一个点, 因此每个样本的每个特征都有一个点, 点的颜色表示

每个样本的实际特征值, 红色表示高特征值, 蓝色表示低特征值; 同时这些点垂直堆叠以显示密度。每个性能 Label 的特征密度散点图显示了铁矿石氧载体数据集中非共线的 8 个特征, 使用平均 SHAP 值评估特征对模型的贡献, 并按降序显示。一个点的 SHAP 值大于 0, 对模型输出为正向影响, 反之为负向影响。一个点离 SHAP 零值越远, 即其 SHAP 绝对值越大, 则其对输出的影响越大。结果表明, 煤种特性、氧燃比(R_{OF})、 Fe_2O_3 含量(Fe_2O_3)、粒径(PS)、温度(T)对总体铁矿石氧载体的性能预测结果具有至关重要的作用。可以看出, 对于 Label1, 具有较高 C/V 的实验样本, 其 SHAP 值更集中于小于 0 一侧, 这倾向于将模型决策推向“低性能”方向。相反, 对于具有较高氧燃比且 Fe_2O_3 含量较高的实验样本, 其 SHAP 值偏向于集中于大于 0 一侧, 这倾向于将模型决策推向“高性能”方向。同理可得各个特征对 Label2 预测结果的影响。

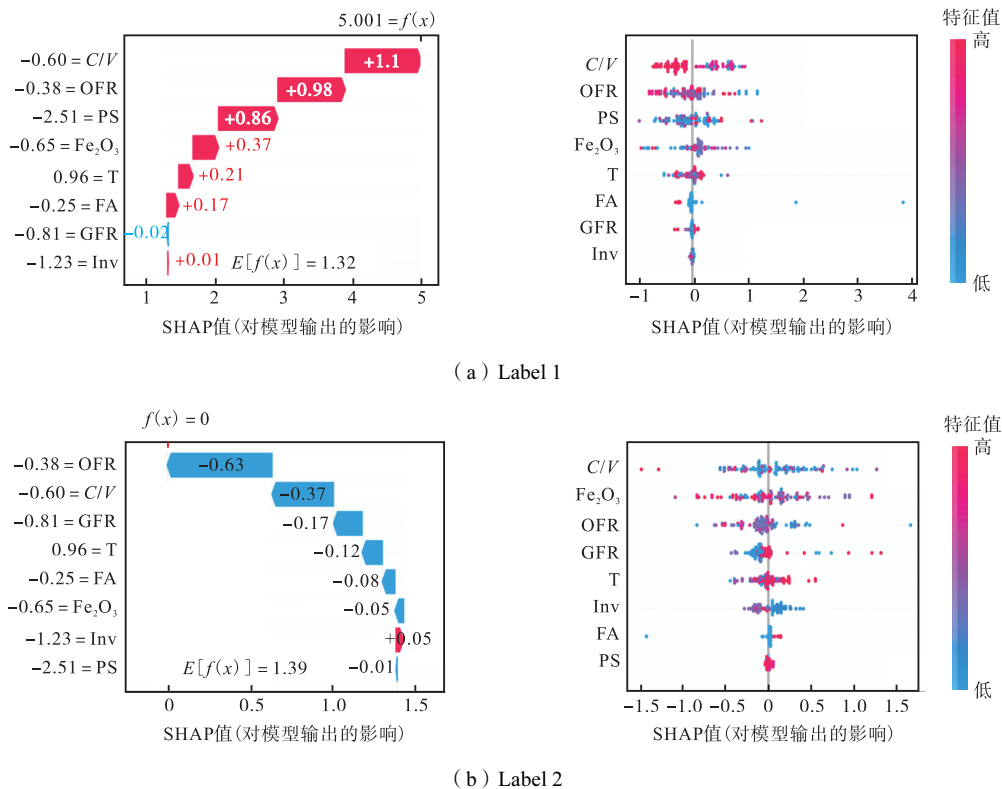


图 4 通过 SHAP 方法进行模型解释和特征贡献度分析

Fig.4 Model interpretation and feature contribution analysis using the SHAP method

综上, 通过 SHAP 对机器学习“黑盒模型”进行解释, 由特征贡献度分析确定了煤化程度、氧燃比、 Fe_2O_3 含量、氧载体粒径(PS)、温度(T)对铁矿石氧载体的实际 CLC 性能有着至关重要的作用, 在定向调控铁矿石氧载体性能时需着重优化以上因素以获得综合性能优异的氧载体材料及合适的 CLC 运行条件。

2.3 在典型煤种下关键因素对铁矿石氧载体性能的影响

氧载体的实际 CLC 性能往往是多种复杂因素共同作用的结果, 有必要针对不同因素辨识其对氧载体性能的单—/综合影响。ML 算法以其强大的对非线性“输入-输出”映射关系的学习能力, 除了用来预测

CLC 过程中不同铁矿石氧载体在不同燃料(如煤/煤焦)、不同反应条件下的反应性能之外,还可通过敏感性分析以评估输入值的变化对预期输出的潜在影响.因此,本节基于 2.2 节提取出的 5 个铁矿石氧载体的关键性能制约因素(C/V 、 Fe_2O_3 含量、粒径、温度和氧燃比),探究在典型 C/V 下 Fe_2O_3 含量和反应温度对铁矿石氧载体性能($t_{Xc=0.95}$ 和 η_{comb})的综合影响. $t_{Xc=0.95}$ 减小和 η_{comb} 增加均表明,煤/煤焦的 CLC 过程得到强化.使用每个输入参数的平均值作为基线,通过将 Fe_2O_3 含量和反应温度相对于基线输入改变最多 $\pm 50\%$ 来创建新的用于性能预测的数据集,并分别使用性能最优的模型($t_{Xc=0.95}$: 基于信息增益的决策树模型; η_{comb} : 支持向量机模型)进行敏感性分析.

图 5 为典型 C/V 下 Fe_2O_3 含量和温度对 Fe 基氧载体两个性能指标的影响,性能编码从 9 至 1 依次对应于等级 A+、A、A-、B+、B、B-、C+、C、C- (基于两个指标的最优模型进行预测).如图 5(a) 所示,当 $C/V=1$, 温度在 900~950 °C 时,较高的 Fe_2O_3

含量(80%~92%)不利于缩短煤/煤焦的碳转化时间,但有可能实现较高的燃烧效率(高于 90%).特别地,温度在 950 °C 附近时,70%~80%的 Fe_2O_3 含量有望实现 95% 以上的燃烧效率.当温度接近 1000 °C 时,较低的 Fe_2O_3 含量(低于 70%)有利于缩短煤/煤焦的碳转化时间,但较高和较低的 Fe_2O_3 含量(高于 75% 或低于 55%)均不利于实现高的燃烧效率.如图 5(b) 所示,当 $C/V=7$, 温度在 900~950 °C 时,较高的 Fe_2O_3 含量(80%~92%)不利于缩短煤/煤焦的碳转化时间,降低 Fe_2O_3 含量有利于提高燃烧效率,缩短碳转化时间.当温度接近 1000 °C 时,较高的 Fe_2O_3 含量(75%~92%)对于缩短煤/煤焦的碳转化时间和提高燃烧效率的作用不再显著,需适当降低 Fe_2O_3 含量,以获得较优碳转化时间和燃烧效率的铁矿石氧载体材料.可以发现, Fe_2O_3 含量的提高不总是有利于缩短 $t_{Xc=0.95}$ 和提高 η_{comb} ,在不同的匹配煤种和反应温度下存在一定的最优区间.而随着反应温度的升高,整体上 $t_{Xc=0.95}$ 和 η_{comb} 有较显著的性能提升,但也需考虑选取合适的 Fe_2O_3 含量.

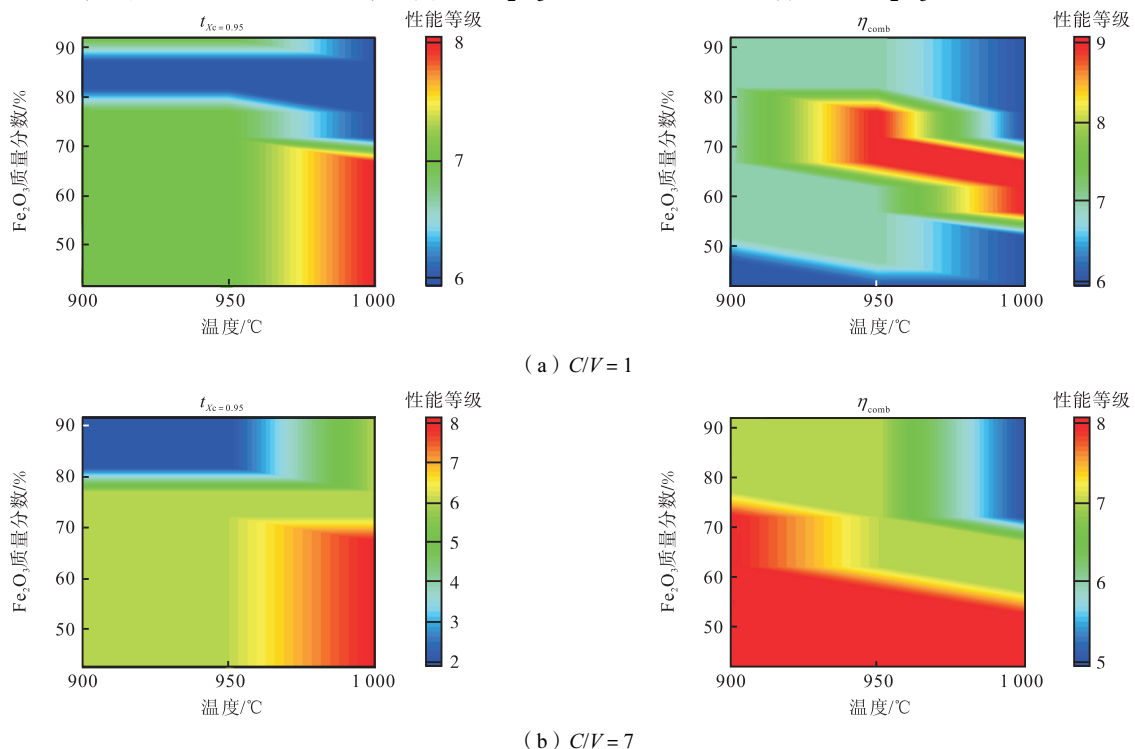


图 5 典型 C/V 下 Fe_2O_3 含量和温度对 Fe 基氧载体两个性能指标的影响

Fig.5 The effect of Fe_2O_3 content and temperature on two performance indicators of iron-based oxygen carriers under typical C/V conditions

这一结果表明,研究人员应尽可能根据匹配的煤种,更多地关注铁矿石氧载体的化学组分(如: Fe_2O_3 含量)和反应条件(如: 温度),且三者需协同考虑,并不是一味追求高的氧载体活性组分含量和反应温度来强化煤的 CLC 过程.

3 结论

本工作构建了一种数据驱动的铁矿石氧载体性能预测的机器学习模型.模型耦合自动贝叶斯优化

和 SMOTE 样本平衡算法, 实现了氧载体数据集的主动匹配, 并通过 5-折交叉验证和测试集预测准确率对模型性能进行综合评估, 自动筛选匹配两个氧载体性能指标最优的 ML 预测模型. 基于 SHAP 的可解释机器学习方法进行特征贡献度分析, 提取出关键性能制约因素, 并进行敏感性分析. 主要研究结论如下:

(1) 经过训练的最优机器学习模型可以为铁矿石氧载体提供非常好的性能预测. 用于预测煤/煤焦碳转化率达 95% 所需时间的最优 ML 模型为基于信息增益的决策树模型, 用于预测煤/煤焦碳转化率达 95% 期间燃烧效率的最优 ML 模型为支持向量机模型. 两者的 5-折交叉验证分数分别为 93.91% 和 92.82%, 测试集预测准确率分别为 94.66% 和 93.07%.

(2) 通过基于 SHAP 的模型解释和特征贡献度分析, 得出煤种、 Fe_2O_3 含量、粒径、温度和氧燃比 5 个关键性能制约因素. 流化气速的实际值若超出正常范围, 会增加氧载体的碳转化率“低性能”的风险, 在实际 CLC 运行过程中, 需合理调控流化气速.

(3) 提高 Fe_2O_3 含量和温度, 可以显著减小煤/煤焦碳转化时间, 强化煤/煤焦 CLC 过程. 在使用不同的煤种作为燃料时, 增加 Fe_2O_3 含量对 CLC 过程的促进效果逐渐减弱, 可根据不同的反应温度确定其最优区间. 为提高铁矿石氧载体的实际反应性能, 应更多地关注铁矿石氧载体自身的物化性质(如: Fe_2O_3 含量)和反应条件(如: 温度), 同时尽可能匹配合适的煤种作为燃料, 三者需协同考虑.

本工作为高性能铁矿石氧载体的快速预测和关键特征提取开辟了新的有效途径, 同时可以推广到调变其他氧化物的氧化还原性质. 考虑到实际的 CLC 过程运行环境复杂, 抗烧结、抗磨损、反应速率快、经济可行等也有必要纳入高性能氧载体设计的调控范畴, 以获得综合性能优异的氧载体候选材料.

参考文献:

- [1] Adánez J, Abad A. Chemical-looping combustion: Status and research needs[J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2019, 37(4): 4303-4317.
- [2] Su Z, Wang Y, Du H, et al. Using copper ore and hematite fine particles as raw materials of an oxygen carrier for chemical looping combustion of coal: Spray drying granulation and performance evaluation[J]. *Energy & Fuels*, 2020, 34(7): 8587-8599.
- [3] Zhao H, Tian X, Ma J, et al. Development of tailor-made oxygen carriers and reactors for chemical looping processes at Huazhong University of Science & Technology[J]. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2020, 93: 102898.
- [4] Zhai Z, Yin H. Cement bonded fine hematite particles and carbide slag as oxygen carriers for chemical looping combustion[J]. *Energy & Fuels*, 2023, 37(7): 5229-5240.
- [5] 刘志兵, 王鹏辉, 冯于川, 等. 铁基载氧体化学链燃烧过程中惰性载体 Al_2O_3 抗烧结机理研究[J]. *燃烧科学与技术*, 2025, 31(3): 331-338.
Liu Zhibing, Wang Penghui, Feng Yuchuan, et al. Anti-sintering mechanism of support Al_2O_3 during iron-based chemical looping combustion[J]. *Journal of Combustion Science and Technology*, 2025, 31(3): 331-338(in Chinese).
- [6] Chen L, Liu F, Heather S N, et al. Coal char-fueled chemical looping combustion use different iron-based oxygen carriers[J]. *Energy Procedia*, 2014, 63: 73-79.
- [7] Ge H, Shen L, Gu H, et al. Combustion performance and sodium transformation of high-sodium Zhundong coal during chemical looping combustion with hematite as oxygen carrier[J]. *Fuel*, 2015, 159: 107-117.
- [8] Ma J, Tian X, Zhao H, et al. Investigation of two hematites as oxygen carrier and two low-rank coals as fuel in chemical looping combustion[J]. *Energy & Fuels*, 2017, 31(2): 1896-1903.
- [9] Fang S, Yan S, Lu Q, et al. Nitrogen trade-off during lignite chemical looping combustion using hematite as an oxygen carrier[J]. *Fuel Processing Technology*, 2022, 232: 107286.
- [10] Wang Z, Zhang H, Li J. Accelerated discovery of stable spinels in energy systems via machine learning[J]. *Nano Energy*, 2021, 81: 105665.
- [11] Takamoto S, Shinagawa C, Motoki D, et al. Towards universal neural network potential for material discovery applicable to arbitrary combination of 45 elements[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 2991.
- [12] 高屹, 刘冰, 张至斌, 等. 基于卷积神经网络的火箭冲压组合发动机燃烧流场重构[J]. *燃烧科学与技术*

- 术, 2025, 31(1): 35-45.
- Gao Yi, Liu Bing, Zhang Zhibin, et al. Reconstruction of combustion flow field for rocket based combined cycle engine based on convolutional neural network[J]. *Journal of Combustion Science and Technology*, 2025, 31(1): 35-45(in Chinese).
- [13] 刘诗雨, 王海鸥, 罗坤, 等. 基于物理信息神经网络求解燃烧问题[J]. 燃烧科学与技术, 2025, 31(3): 245-254.
- Liu Shiyu, Wang Haiou, Luo Kun, et al. Physics-informed neural networks for combustion problems[J]. *Journal of Combustion Science and Technology*, 2025, 31(3): 245-254(in Chinese).
- [14] 刘响, 倪战士, 田军见, 等. 结合神经网络的污泥与竹屑共燃分析[J]. 燃烧科学与技术, 2025, 31(4): 397-405.
- Liu Xiang, Ni Zhanshi, Tian Junjian, et al. Co-combustion analysis of sludge and bamboo scraps with neural network[J]. *Journal of Combustion Science and Technology*, 2025, 31(4): 397-405(in Chinese).
- [15] Yan Y, Mattisson T, Moldenhauer P, et al. Applying machine learning algorithms in estimating the performance of heterogeneous, multi-component materials as oxygen carriers for chemical-looping processes[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 387: 124072.
- [16] Song Y, Lu Y, Wang M, et al. Screening of natural oxygen carriers for chemical looping combustion based on a machine learning method[J]. *Energy & Fuels*, 2023, 37(5): 3926-3933.
- [17] Wang X, Gao Y, Krzystowczyk E, et al. High-throughput oxygen chemical potential engineering of perovskite oxides for chemical looping applications[J]. *Energy & Environmental Science*, 2022, 15(4): 1512-1528.
- [18] Singstock N R, Bartel C J, Holder A M, et al. High-throughput analysis of materials for chemical looping processes[J]. *Advanced Energy Materials*, 2020, 10(27): 2000685.
- [19] Brorsson J, Rehnberg V, Arvidsson A A, et al. Discovery of oxygen carriers by mining a first-principle database[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2023, 127(20): 9437-9451.
- [20] Pröll T, Mayer K, Bolhär-Nordenkamp J, et al. Natural minerals as oxygen carriers for chemical looping combustion in a dual circulating fluidized bed system[J]. *Energy Procedia*, 2009, 1(1): 27-34.
- [21] Bu H, Chen G, Tian X, et al. Chemical looping combustion of coal chars using iron ore of different grades as oxygen carriers[J]. *Energy & Fuels*, 2021, 35(20): 16494-16505.
- [22] Wang Y, Tian X, Zhao H, et al. The use of a low-cost oxygen carrier prepared from red mud and copper ore for in-situ gasification chemical looping combustion of coal[J]. *Fuel Processing Technology*, 2020, 205: 106460.
- [23] Wang Y, Tian X, Zhao H, et al. Synergetic effects of cement bonded copper ore and red mud as oxygen carrier during in-situ gasification chemical looping combustion of coal char[J]. *Fuel*, 2021, 303: 121295.
- [24] Yang W, Zhao H, Ma J, et al. Copper-decorated hematite as an oxygen carrier for in situ gasification chemical looping combustion of coal[J]. *Energy & Fuels*, 2014, 28(6): 3970-3981.
- [25] Tian X, Zhao H, Ma J. Cement bonded fine hematite and copper ore particles as oxygen carrier in chemical looping combustion[J]. *Applied Energy*, 2017, 204: 242-253.