# 测量煤炭灰分的低能γ射线反散射方法

黄兴滨 1 王国荣 1 孙普男 1 杨大战 2 马永和 2

1(黑龙江大学物理科学与技术学院 哈尔滨 150080)

2(黑龙江省科学院技术物理研究所 哈尔滨 150080)

摘要 介绍了测量煤炭灰分的低能  $\gamma$  射线反散射方法。研究了最佳灵敏度的条件和最佳几何配置、成分变化 对测量的影响和补偿方法。测量范围为 8%— 15%,标准误差为  $\pm 0.37\%$ 。 关键词  $\gamma$  射线反散射,灰分,灵敏度 中图分类号 TL8

灰分是煤炭工业分析的主要经济指标,灰分与发热量密切相关,当前煤炭仍按灰分分级,以质论价。煤是各向异性的非均匀介质,又是多种大分子聚合物的混合体。矿物质是煤中所有无机物的总称,矿物质多以化合物的形式存在,其含量的测定很麻烦。通常用煤燃烧后的剩余物即灰分来近似代表矿物质的含量,这是因为灰分和矿物质具有良好的相关性。检测煤炭灰分的传统标准方法是以定时采样、试样积累、破碎、缩分、烘干、研磨并用称重燃烧的化学分析方法为基础,此方法的缺点是代表性差、滞后时间长,不能满足现代化生产的需要,这就导致了对仪器分析方法的研究。

采用核技术方法测量煤炭灰分是最好的选择,也是最普遍采用的方法。核技术方法通常采用反散射方式和穿透方式。在 20 世纪 60—70 年代主要是以反散射方式为主,用于高流量样品分流测量和低流量样品分流测量中。到 20 世纪 70—80 年代,主要以穿透方式为主,用于高流量样品和皮带传输机上测量。反散射方法对样品的限制虽然不如穿透法宽松,但因其安装简单、使用方便,在某些场合仍获得广泛的使用。

### 1 散射方法测量煤炭灰分的原理

用核技术方法测量煤炭灰分的主要依据是X射线或  $\gamma$ 射线同煤相互作用与原子序数的依赖关系,以及煤中灰分的有效原子序数大于煤质的有效原子序数。与原子序数相关的  $\gamma$ 射线相互作用有光电效应、康普顿散射及电子对生成。

为了分析上的方便,通常可把煤看成是二元或 类二元的混合物。一元是可燃的有机物,也叫煤质, 主要成分包括 C、H、O、N、S 等,以 C 为主,其等效原子序数  $Z \approx 6$  ;另一元是不可燃的无机物,也叫矿物质,用煤燃烧后的剩余物即灰分来代表其含量,主要成分包括 Si、Al、Ca、Mg、Fe 等,以 Si 为主,其等效原子序数  $Z \approx 12$  。

低能  $\gamma$ 射线是指  $\gamma$ 射线的能量  $E_{\gamma}$ < 100 keV 的  $\gamma$ 射线。能量低于 100 keV 的  $\gamma$ 射线反散射方法是研究和应用最广泛的方法。  $\gamma$ 射线和物质相互作用与原子序数的依赖关系构成了测灰的基础。低能  $\gamma$ 射线和物质相互作用主要是光电效应和康普顿效应。 光电效应与原子序数 Z 密切相关,光电吸收截面  $\sigma$ 与  $Z^4$ — $Z^5$  成正比。当煤的灰分低时,即高原子序数物质占的比重较小而低原子序数物质占的比重较小时,光电效应较弱,而散射  $\gamma$ 射线强度较强; 为形成分。 为别线强度较弱,而散射  $\gamma$ 射线强度较强, 而散射  $\gamma$ 射线强度较弱。 散射  $\gamma$ 射线在  $4\pi$ 空间均有分布,采用核探测器探测散射  $\gamma$ 射线的强度,通常探测反散射  $\gamma$ 射线的强度,这样反散射  $\gamma$ 射线的强度大小就能反映出煤中含灰的大小。

煤的总质量吸收系数  $\mu$ 可用煤中第 i 个元素的质量吸收系数  $\mu_i$  及其百分含量  $c_i$ 按下式表达:

$$\mu = \sum \mu_i c_i \tag{1}$$

质量吸收系数是  $\gamma$  射线能量和原子序数的函数,当能量确定后,由质量吸收系数的变化就可确定成分的变化。按照煤的二元模型,上式可简化为

$$\mu = \mu_{\rm cm} c_{\rm cm} + \mu_{\rm mm} c_{\rm mm} \tag{2}$$

并且 
$$c_{cm} + c_{mm} = 1$$
 或  $c_{cm} = 1 - c_{mm}$  (3)

第一作者:黄兴滨,男,1964年4月出生,1983年毕业于长春光机学院,光电技术与核测量,副教授

收稿日期:2004-06-29,修回日期:2004-11-21

式中,脚标 cm 和 mm 分别代表煤质(Coal matter)和 矿物质(Mineral matter)。 矿物质含量  $c_{\rm mm}$  用来代表煤的灰分(Ash),它与灰分具有良好的相关性。式(3)代入式(2),得出  $c_{\rm mm}$ (或 A)

$$c_{\rm mm} \equiv A = a_1 + b_1 \mu \tag{4}$$

式中, $a_1$ 和 $b_1$ 均为常数

$$a_1 = (-\mu_{\rm cm})(\mu_{\rm mm} - \mu_{\rm cm})^{-1}$$

$$b_1 = (\mu_{mm} - \mu_{cm})^{-1}$$

如果  $\mu_{cm}$ 和  $\mu_{mm}$ 基本为常数,利用这些方程便可确定出煤的矿物质含量。由于矿物质与灰分密切相关,煤的灰分也就能测定出来。

在反散射几何条件下,可以导出反散射强度(I) 与质量吸收系数( $\mu$ )成倒数关系<sup>[1]</sup>: $I \sim (\mu)^{-1}$ ,由此可得出灰分(A)与反散射强度的关系

$$A = a_2 + \frac{b_2}{I} \tag{5}$$

在比较窄的灰分范围内,通过变换和级数展开可以推出灰分与低能  $\gamma$ 射线反散射强度具有线性关系:

$$A = a_3 + b_3 I \tag{6}$$

## 2 灰分测量的灵敏度

灵敏度(S)定义为反散射  $\gamma$  射线计数率(n)的相对变化(dn/n)与被测的相应灰分(A)的相对变化(dA/A)之比,并表示为[ $^{[2]}$ 

$$S = \frac{\mathrm{d}n/n}{\mathrm{d}A/A} = A \times \frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}A} \times \frac{1}{n}$$
 (7)

通常希望较大的计数率变化能对应较小的灰分变化,这样可使灰分的测量更加灵敏、准确,并能降低因统计涨落引起的误差。按煤的二元组分模型,图 1 形象地绘出反散射几何条件下煤质 (cm)质点和矿物质 (mm)质点对入射  $\gamma$ 射线的吸收和散射。 $\mu'$ 为入射  $\gamma$ 射线的质量吸收系数, $\mu''$ 为散射  $\gamma$ 射线的质量吸收系数,假定在散射过程中  $\gamma$ 射线的能量不变(该假定接近实际情况),这样会有 $\mu'=\mu''=\mu$ 。 $\sigma$ 为散射系数,它是康普顿散射(非相干散射)系数和相干散射系数之和。探测器接受到的反散射  $\gamma$ 射线的计数率 n 与散射系数成正比,与吸收系数成反比,并可表示为

$$n = k \times \frac{\sum \sigma_i c_i}{\sum \mu_i c_i} = k \times \frac{\sigma_{\text{mm}} A + \sigma_{\text{cm}} (1 - A)}{\mu_{\text{mm}} A + \mu_{\text{cm}} (1 - A)}$$
(8)

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}A} = k \times \frac{A(\sigma_{\mathrm{mm}}\mu_{\mathrm{cm}} - \sigma_{\mathrm{cm}}\mu_{\mathrm{mm}})}{\left[\mu_{\mathrm{mm}}A + \mu_{\mathrm{cm}}(1 - A)\right]^{2}} \tag{9}$$

$$S = \frac{A(\sigma_{\text{mm}}\mu_{\text{cm}} - \sigma_{\text{cm}}\mu_{\text{mm}})}{[\sigma_{\text{cm}} + A(\sigma_{\text{mm}} - \sigma_{\text{cm}})][\mu_{\text{cm}} + A(\mu_{\text{mm}} - \mu_{\text{cm}})]}$$
(10)

式(10)建立了灵敏度与吸收物质核参数的关系。核参数或灵敏度都是  $\gamma$ 射线能量和吸收物质原子序数的函数。式(10)中的煤质和矿物质的质量吸收系数 $\mu$ 和散射系数 $\sigma$ 也参照式(1)进行计算。文献[3]给出了各种元素在各种能量下的质量吸收系数和散射系数。从式(10)可以看出,灵敏度与  $\gamma$ 射线能量以及被测物质的材料成分有关。根据被测对象的不同,式(10)为建立最佳灵敏度与  $\gamma$ 射线能量的关系提供了理论计算依据。例如测量煤炭的灰分时,最佳灵敏度对应  $E_{\gamma}$ =15 keV;测量塑料质量厚度时,在低能( $E_{\gamma}$ <100 keV)下灵敏度随  $E_{\gamma}$ 增大而增大,在40 keV 以下变化较快,在 50 keV 以上变化趋缓。

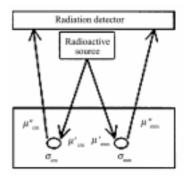


图 1 γ射线吸收与反散射示意图

Fig.1 Simple two-component model of ash in coal (double backscattering assumed)

## 3 探测系统的几何配置

探测系统包括探测器、放射源及被测样品,通常采用轴向中心对称配置构成反散射测量方式(见图 2)。

由于反散射  $\gamma$ 射线在  $4\pi$ 方向都有分布 ,有时探测器与放射源分开配置 , 其轴线互成一定角度 , 轴线交点位于被测样品的中部。在图 2 的配置下 , 由于放射源背对探测器的窗口 ,使得探测器窗口形成  $\phi$ 10 mm 面积的死区(放射源尺寸为 $\phi$ 10 mm×6 mm ) , 不能接受反散射  $\gamma$ 射线 ,同时在死区周围还形成一个圆环形半死区阴影。改变探测器——样品间距(d)即可改变探测器对反散射  $\gamma$ 射线的立体角。实验表明,随着 d 增加 ,反散射计数率(n)迅速增加 ,然后

缓慢降低,当 $d=10 \,\mathrm{mm}$ 时,有最大的计数率(见图3)。

探测器下端的准直器不是严格意义的准直,但它有助于消除多次散射,同时也起着固定放射源和防护的作用。

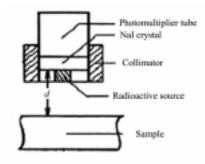


图 2 反散射几何配置

Fig.2 Schematic diagram of backscattering

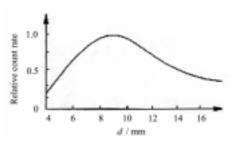


图 3 相对计数率随探测器 - 样品间距的变化

Fig.3 Variation of count rate with distance between detector and sample

## 4 煤样条件

#### 4.1 煤层饱和厚度

反散射  $\gamma$  射线的强度(I)是随煤层厚度增加而增加,并由下式给出极限值:

$$I \propto \{1 - \exp{-\left[\sum (\mu'_{i} + \mu''_{i})c_{i}m\right]}\}$$
 (11)

式中, $m=\rho d$  是质量厚度, $\rho$ 为煤层的散密度,d 为煤层线厚度; $c_i$  是煤中第 i 个元素的百分含量; $\mu_i'$  为入射  $\gamma$  射线的质量吸收系数, $\mu_i''$  为散射  $\gamma$  射线的质量吸收系数。

如果假定在散射过程中  $\gamma$ 射线的能量没发生变化,可有  $\mu_i' = \mu_i'' = \mu_i$ ,为使反散射  $\gamma$ 射线的强度与煤层厚度无关,至少应使式(11)中的负指数等于 5, $e^{-5}=0.0067$ ,这样反散射强度可达极限值的 99.3%。由此可得出煤层的最小质量厚度:

$$m = \frac{5}{\sum (\mu_i' + \mu_i'')c_i} = \frac{5}{2\mu} = \frac{5}{2(\mu_{\rm cm}c_{\rm cm} + \mu_{\rm mm}c_{\rm mm})}$$
 (12)

由式(12)可以计算出,当  $E_{\gamma}$ =15 keV 时 ( $\mu_{\rm cm}$ =0.8086, $\mu_{\rm mm}$ =7.221),对于零灰分可得理论上的最小质量厚度为 3.0g/cm²;对于灰分  $c_{\rm mm}$ =6%,可得最小质量厚度为 2.1g/cm²;当  $E_{\gamma}$ =60 keV 时 ( $\mu_{\rm cm}$ =0.1832, $\mu_{\rm mm}$ =0.2778),对于灰分  $c_{\rm mm}$ =6%,可得最小质量厚度为 13.2 g/cm²。通常把接近极限值的反散射强度叫做饱和反散射强度,所对应的煤层厚度叫做饱和厚度,饱和厚度与  $\gamma$ 射线能量有关,还与煤的组成有关。反散射测量煤灰分时,煤层厚度至少要等于或大于饱和厚度。式(12)为在各种条件下计算饱和厚度提供了理论依据。

### 4.2 上限粒度

反散射测量精度受煤的最大粒度(或上限粒度) 及其分布变化的影响。通常用半减弱层的关系来限定上限粒度  $(d_0)$ 

$$d_0 = \frac{\ln 2}{\mu \rho} = \frac{0.693}{\mu \rho} \tag{13}$$

式中  $\rho$  为煤层的散密度,它与煤种、粒度、含水量等有关,一般为 0.7。当  $E_{\gamma}$ =15 keV,对于灰分为 6% 时( $\mu$ =1.192), $d_0$ =8 mm ;当  $E_{\gamma}$ =60 keV,对于灰分为 6% 时( $\mu$ =1.889), $d_0$ =18.3 mm。采用低能  $\gamma$  射线,无论是反散射方法还是穿透方法,都需对煤进行破碎处理,以限制上限粒度,但随着  $E_{\gamma}$ 增大,对煤的处理要求会降低。如果采用  $E_{\gamma}$ =60 keV的  $\gamma$  射线可对洗精煤(粒度为 0—13 mm)直接进行测量。

## 5 煤成分变化对测量的影响

质量吸收系数  $\mu$ 是非常有用的核参数,它不仅是  $\gamma$ 射线能量的函数,也是吸收物质成分的函数。由于煤的组成极其复杂,任何元素含量的改变都会影响质量吸收系数  $\mu$ 的改变,利用式(4)可以很方便地看出各种成分变化量的改变都会影响质量吸收系数 $\mu$ 的改变,利用式(4)也可以很方便地计算出各种成分变化对测量的影响。以  $E_{\gamma}=15~{\rm keV}$  的  $^{238}{\rm Pu}$  放射源的  $\gamma$ 射线为例,对于洗精煤,灰分范围为 6—15%,可以计算出两端值(6%和 15%)的质量吸收系数  $\mu_6$ 和  $\mu_{15}$ , $\mu_6=1.1919$ , $\mu_{15}=1.7694$ ,代入式(4),可解出  $a_1$  和  $b_1$  并得出

$$A = a_1 + b_1 \mu = -12.573 + 15.583 \mu \tag{14}$$

假定煤质中或矿物中含量少的成分分别增加 1% ,而含量多的成分 C 或  $SiO_2$  分别减少 1% ,以维持煤质或矿物质的总含量不变,即灰分含量不

变。在不同的灰分标称值(如 6%、10%、15%)下分别计算出各成分变化 1%后的质量吸收系数  $\mu$ ,代入式(14)可得出相应的灰分值,再与标称值相比,可得出各成分变化 1%引起的误差(见表 1)。从表 1可以看出,在灰分测量中,铁含量变化是成分变化中产生误差的主要原因,其次是钙,这是因为铁的

原子序数高,密度大,质量吸收系数也很大。对洗精煤,成分比较稳定,成分变化引起的误差很小。对于铁含量变化较大的煤种如某些原煤,为克服铁含量变化引起的误差,可同时测量铁的 6.4 keV KX 射线的强度来对灰分进行补偿修正。

表 1 不同灰分下成分变化 1% 引起的灰分测量误差

Table 1 Measurement error at different ash contents in coal arising from 1% changes in components

灰分标称值 Nominal value of ash content in coal / % -	成分变化 1 %引起的灰分测量误差 Ash measurement errors arising from 1% changes of each component / %					
	Н	О	$Al_2O_3$	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	H <sub>2</sub> O
6	-0.06	+0.15	-0.01	+0.32	+0.15	+0.07
10	-0.06	+0.14	-0.01	+0.54	+0.25	+0.03
15	-0.05	+0.13	-0.02	+0.80	+0.37	-0.02

# 6 测量结果与误差分析

该项目先后在黑龙江省四个煤炭矿物局的洗煤厂进行了试验和应用测量,通过对比,仪器测量的灰分与化验的灰分之差为单次或单个样品的测量误差,对大量测量误差(几十至数百)进行统计处理,得出仪器的均方根误差(r.m.s.)或标准误差,对于洗精煤,测量的标准误差好于±0.37%,对于过滤精煤,标准误差好于±0.31%。

产生测量误差有以下几个因素:(1)传统方法自身的化验误差,约 $\pm 0.30\%$ ;(2)仪器长期稳定性及统计涨落引起的误差,约 $\pm 0.1\%$ ;(3)煤样密实度变化引起的误差,约 $\pm 0.1\%$ ;(4)煤样湿度(水分)及粒度不均匀性引起的误差,约 $\pm 0.20\%$ 。若被测物理量由许多独立因素产生的标准误差分别为: $\sigma_1$ 、

 $\sigma_2$ ...... ,则 全 部 因 素 产 生 的 总 标 准 误 差  $\sigma = \pm \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \cdots}$  。上述因素引起的总标准误差  $\sigma = \pm 0.39\%$  。可以看出,从分析产生误差的各种独立因素得出的总标准误差与实际测量得出的标准误差是相吻合的。

#### 参考文献

- 1 马永和, 肖度元, 罗向东. 核电子学与探测技术, 1990, **10**(6): 331—335
  - MA Yonghe, XIAO Duyuan, LUO Xiangdong. Nucl Electron Detect Technol, 1990, **10**(6): 331—335
- Boyce I S, Clayton C G, Page D. Nuclear Techniques and Mineral Resources. Vienna: IAEA, 1997.135—164
- Hubbell J H. Int. J. Appl Radiat Isot, 1982, 33(11): 1269
  —1290

## Backscattering techniques of low energy γ-ray for determining ash content of coal

HUANG Xingbin<sup>1</sup> WANG Guorong<sup>1</sup> SUN Punan<sup>1</sup> YANG Dazhan<sup>2</sup> MA Yonghe<sup>2</sup>

1 (College of Physics Science and Technology, Heilongjiang University, Harbin 150080, China)

2 (Institute of Technical Physics, Heilongjiang Academy of Sciences, Harbin 150086, China)

**Abstract** Backscattering techniques for determining the ash content of coal are introduced. Optimum sensitivity and optimum geometric configuration are studied. The effect of constituent's variation on measuring results is calculated and some compensation methods can be established to correct the effect of variation of  $Fe_2O_3$  contents on practical measurement. Measuring range is 8%—15%, and the r.m.s. of measuring deviation is less than  $\pm 0.37\%$ .

**Key words** γ –ray backscattering, Ash content, Sensitivity **CLC** TL8