

Quá trình hủy dập tắt của ortho-positronium trong zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 dưới ảnh hưởng của môi trường khí và nước hấp phụ

Lưu Anh Tuyên^{1,*}, Phạm Thị Huệ¹, Nguyễn Thị Ngọc Huệ¹, Đinh Thị Hải Hà²



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

¹Trung tâm Hạt nhân TP. Hồ Chí Minh – Viện Năng lượng Nguyên tử Việt Nam, 271 Nguyễn Trãi, Quận 1, TP. HCM, Việt Nam

²Đại học Y Dược Buôn Ma Thuột- 298 Hà Huy Tập, Phường Tân An, Tỉnh Đắk Lắk, Việt Nam

Liên hệ

Lưu Anh Tuyên, Trung tâm Hạt nhân TP. Hồ Chí Minh – Viện Năng lượng Nguyên tử Việt Nam, 271 Nguyễn Trãi, Quận 1, TP. HCM, Việt Nam

Email: tuyenluuanh@gmail.com

Lịch sử

- Ngày nhận: 20-02-2025
- Ngày sửa đổi: 16-7-2025
- Ngày chấp nhận: 02-10-2025
- Ngày đăng: 07-12-2025

DOI:

<https://doi.org/10.32508/stdjns.v9i4.1438>



Bản quyền

© ĐHQG TP.HCM. Đây là bài báo công bố mở được phát hành theo các điều khoản của the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



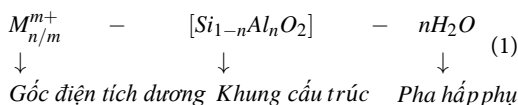
TÓM TẮT

Nghiên cứu hiện tại khảo sát ảnh hưởng của môi trường khí và nước hấp phụ đến quá trình hủy dập tắt thời gian sống ortho-positronium (o-Ps) trong zeolite Silicalite-1 và ZSM-5. Kết quả cho thấy các thành phần thời gian sống ngắn (τ_1 , τ_2 , τ_3) ít bị ảnh hưởng, trong khi các thành phần thời gian sống dài (τ_4 , τ_5) và cường độ hủy (I_4 , I_5) thay đổi đáng kể theo môi trường khí. Bên cạnh đó, chân không là điều kiện tối ưu để phân tích cấu trúc rỗng, trong khi không khí làm giảm đáng kể nhất thời gian sống do sự dập tắt của O₂. Các khí trơ như Ar và N₂ có ảnh hưởng thấp hơn và có thể được sử dụng thay thế nếu không có điều kiện chân không. Ảnh hưởng của nước hấp phụ được xác định qua ba giai đoạn nhiệt độ sấy, tác động chủ yếu đến thành phần τ_5 và I_5 . Cụ thể, dưới 200°C, nước còn trong mẫu làm giảm thời gian sống của o-Ps. Ở 200°C – 250°C, nước thoát nhanh khỏi lỗ xốp, dẫn đến sự gia tăng đáng kể của τ_5 và I_5 . Khi nhiệt độ vượt 250°C, nước gần như bị loại bỏ hoàn toàn và các thông số này đạt trạng thái bão hòa. Hơn thế nữa, zeolite Silicalite-1 có thời gian sống và cường độ hủy o-Ps cao hơn zeolite ZSM-5, phản ánh sự khác biệt về kích thước và mật độ lỗ xốp trung bình giữa hai loại vật liệu này. Kết quả nghiên cứu nhấn mạnh tầm quan trọng của môi trường trong phân tích cấu trúc zeolite, trong đó chân không là lựa chọn tối ưu để đảm bảo độ chính xác của kết quả đo và cần kiểm soát ảnh hưởng của nước hấp phụ để tránh sai lệch trong phân tích cấu trúc xốp.

Từ khoá: Silicalite-1, ZSM-5, o-Ps, Ar, N₂, nước hấp phụ

GIỚI THIỆU

Zeolite là vật liệu tinh thể có tên gọi hóa học chung là aluminosilicate với các đặc trưng cơ bản liên quan đến độ xốp, rỗng ở kích thước vi mô (từ Å cho tới nm). Zeolite được hình thành bởi liên kết của các cấu trúc tứ diện TO₄, trong đó T là các nguyên tố si-líc (Si) và nhôm (Al). Công thức hóa học và cấu tạo của zeolite có thể được mô tả đơn giản nhất bởi ba thành phần như sau¹:



Các zeolite có tỉ lệ Si/Al từ 10-100 được gọi là zeolite Si cao. Hai trong số các zeolite được biết đến nhiều nhất trong loại này là zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 (Hình 1). Tính chất bề mặt liên quan đến thể tích rỗng và xốp của vật liệu zeolite là chủ đề thu hút các nghiên cứu trong đó có phương pháp hủy positron trong nhiều thập kỷ qua. Các nghiên cứu như vậy phần lớn tập trung vào sự hủy positron và sự hình thành của ositronium (Ps) trong các kênh, lỗ, lỗ xốp và các sai hỏng mạng².

Về mặt vật lý, khi một positron (phản hạt của electron) được phát ra từ một nguồn đồng vị phóng xạ đi vào

trong vật liệu, nó nhanh chóng bị nhiệt hóa cho đến khi cân bằng nhiệt với môi trường trước khi khuếch tán vào trong các cấu trúc khác nhau (Hình 2). Trên quãng đường khuếch tán, positron có thể hủy trực tiếp với các electron để phát ra 2 tia gamma (2 γ) ngược hướng. Positron có thể liên kết với một electron để hình thành Ps trước khi bị bẫy tại các sai hỏng cấu trúc và các lỗ xốp³. Ps tồn tại ở hai trạng thái của spin đó là S = 0 (spin đối song) gọi là para-Positronium (p-Ps) với thời gian sống 125 ps và S = 1 (spin song song) gọi là ortho-Positronium (o-Ps) có thời gian sống cực đại trong chân không lên đến 142 ns trước khi tự phân rã³. Trong môi trường chân không và vật liệu đậm đặc, p-Ps và o-Ps có sự khác biệt về đặc trưng hủy. p-Ps luôn hủy và phát ra 2 γ ngược hướng có năng lượng gần bằng 511 keV. Trong khi đó, o-Ps có thể tự phân rã phát 3 γ trong chân không hoặc phát 2 γ thông qua quá trình hủy dập tắt (hủy pick-off) khi o-Ps tương tác với một electron của môi trường vật liệu^{3,4}. Quá trình hủy dập tắt của một o-Ps với một electron trên thành lỗ xốp (hay môi trường chất khí chiếm trong lỗ xốp) là quá trình tương tác trong đó o-Ps ban đầu với spin song song bị chuyển thành đối song và phân rã phát 2 gamma ngay sau đó.

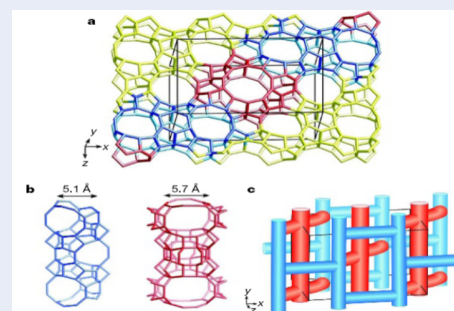
Trích dẫn bài báo này: Anh Tuyên L, Thị Huệ P, Thị Ngọc Huệ N, Thị Hải Hà D. **Quá trình hủy dập tắt của ortho-positronium trong zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 dưới ảnh hưởng của môi trường khí và nước hấp phụ.** *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2025; 9(4):3466-3472.

Đối với các vật liệu xốp với nhiều cấu trúc rỗng như zeolite ZSM-5 và Silicalite-1, xác suất hình thành o-Ps là rất lớn so với các vật liệu kim loại hay oxit. o-Ps khi bị bẫy trong thể tích rỗng của zeolite sẽ định xứ cao trước khi hủy dập tắt để phát 2γ hoặc tự hủy phát 3γ ². Quá trình này liên quan đến sự chống chấp hàm sóng của o-Ps và electron trên tường lỗ xốp. Khi kích thước của thể tích rỗng tăng sẽ làm giảm xác suất tương tác của o-Ps với các electron trên tường lỗ xốp, làm tăng thời gian sống của o-Ps. Nếu kích thước rỗng của zeolite là đủ lớn (vài trăm nm, theo từng hình dạng lỗ xốp), thời gian sống của o-Ps có thể tiệm cận với thời gian sống cực đại trong môi trường chân không hoàn toàn (142 ns) trước khi tự phân rã (hiện tượng bão hòa thời gian sống positron)⁵. Khi kích thước của lỗ xốp nhỏ hơn, quá trình hủy dập tắt xảy ra, thời gian sống của o-Ps bị rút ngắn lại so với thời gian sống cực đại và phụ thuộc vào kích thước của lỗ xốp. Do đặc điểm này, thời gian sống của o-Ps được sử dụng trong đo đặc kích thước của các lỗ xốp vi mô và trung bình³⁻⁵. Trong thực nghiệm, môi trường khí trong các lỗ xốp là một trong số các yếu tố quan trọng ảnh hưởng đến kết quả đo đặc thời gian sống positron⁶. Đối với zeolite như ZSM-5 và Silicalite-1, vật liệu có hệ thống kênh rỗng mở, môi trường khí có thể chiếm đầy các không gian rỗng nếu như kích thước của phân tử khí là đủ nhỏ. Một số loại khí trơ thường hay sử dụng trong nghiên cứu vật liệu xốp như N₂ và Ar cũng có thể đi vào vùng không gian kênh và lồng của khung cấu trúc zeolite với các áp suất khác nhau của điều kiện thí nghiệm. Sự có mặt của các khí trơ và không khí môi trường có thể ảnh hưởng mạnh đến thời gian sống positron thực nghiệm⁷. Cụ thể, sự khác biệt về mật độ electron hóa trị và tính chất từ của khí trơ so với các khí khác dẫn đến sự khác biệt trong quá trình tương tác của chúng với o-Ps. Do đó, đối với các nghiên cứu sử dụng phổ kế thời gian sống hủy positron (PALS), việc hiểu và đánh giá ảnh hưởng của các môi trường khí trơ và không khí đến thời gian sống positron thực nghiệm là quan trọng và cần thiết.

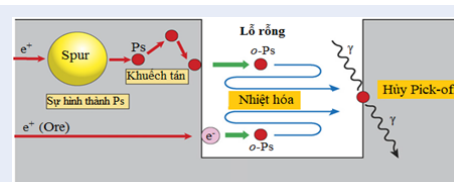
Bên cạnh tác động của khí trơ và không khí, trong thực nghiệm nghiên cứu cấu trúc zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 bằng đo đặc thời gian sống positron, ảnh hưởng của nước hấp phụ từ môi trường tới các thể tích rỗng mở khác là rất lớn. Nước với thành phần hóa học chứa O₂ gây nên quá trình hủy dập tắt của o-Ps. Eldrup và cộng sự đã báo cáo về thời gian sống positron trong nước cỡ 1,86 ns⁸. Mật độ của nước bị hấp phụ càng lớn, phổ thời gian sống positron thực nghiệm càng thu hẹp và thậm chí dập tắt hầu hết các trạng thái của o-Ps sống dài⁸. Do vậy, khi áp dụng phổ kế thời gian sống hủy positron nghiên cứu cấu trúc

zeolite ZSM-5 và Silicalite-1, ảnh hưởng của nước bị hấp phụ cần phải được khảo sát

Trong nghiên cứu này, để hiểu rõ được các ảnh hưởng của môi trường khí đến thời gian sống positron, các mẫu zeolite Silicalite-1 thương mại đã được tiến hành đo đặc trong điều kiện môi trường không khí, khí N₂, Ar và chân không. Bên cạnh đó, ảnh hưởng của nước hấp phụ đến thời gian sống positron trong các mẫu này cũng được khảo sát bằng cách sấy các mẫu zeolite Silicalite-1 và ZSM-5 trong môi trường chân không ở các nhiệt độ khác nhau (80°C – 300°C) để tách nước khỏi zeolite trước khi thí nghiệm. Các kết quả của nghiên cứu cung cấp các thông tin quan trọng cho việc chuẩn bị và xử lý mẫu trước khi tiến hành các nghiên cứu sâu về cấu trúc của zeolite ZSM-5 và Silicalite-1.



Hình 1: Cấu trúc rỗng của zeolite ZSM-5 và Silicalite-1: (a) mật cắt cấu trúc; (b) mật cắt của các kênh rỗng vi mô; (c) hệ thống kênh rỗng vi mô 2 chiều [9]. Trong minh họa này, zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 cùng được hình thành với cấu trúc MFI chung⁹ trong đó ZSM-5 có tỉ lệ Si/Al thay đổi (khoảng từ 16 đến vài trăm) và Silicalite-1 có tỉ lệ Si/Al bằng vô cùng (100% Si liên kết với O trong công thức 1).



Hình 2: Positron và o-Ps trong vật liệu rỗng, xốp³.

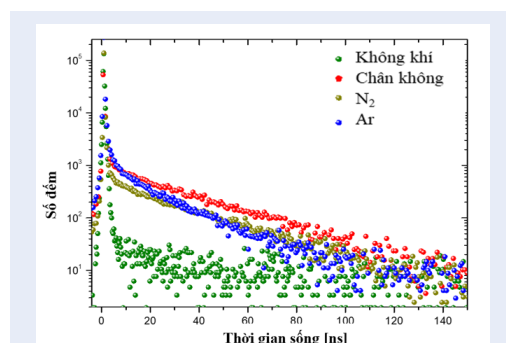
THỰC NGHIỆM

Các mẫu zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 thương mại (cung cấp bởi hãng NK Chem) dạng bột, kích thước hạt dưới 1µm đã được sử dụng trong quá trình khảo sát. Hệ phổ kế thời gian sống hủy positron với phân giải thời gian 210 ps đã được sử dụng cho quá trình

nghiên cứu. Cụ thể, một nguồn ^{22}Na (hoạt độ $< 20 \mu\text{Ci}$) được bố trí dạng sandwich giữa 2 viên mẫu zeolite như nhau (0.08 g/viên mẫu). Đối với thí nghiệm khảo sát ảnh hưởng của khí trơ và không khí, quá trình thí nghiệm được tiến hành trong 4 môi trường khác nhau bao gồm không khí (áp suất khí quyển), N_2 , Ar (áp suất 2 atm) và chân không (10^{-4} Torr) trên mẫu Silicalite-1. Ngược lại, đối với các thí nghiệm nghiên cứu ảnh hưởng của nước hấp phụ, quá trình xử lý mẫu trong hệ gia nhiệt chân không đã được thực hiện cho từng cặp mẫu của cả ZSM-5 và Silicalite-1 ở nhiệt độ từ 80°C đến 300°C trong 10 giờ. Phổ thời gian sống positron được thống kê với số đếm lớn hơn 2×10^6 số đếm cho mỗi phép đo và được lặp lại 3 lần cho mỗi thí nghiệm. Kết quả thời gian sống positron được phân tích thành 5 thành phần sau khi đã tối ưu tất cả các thông số phân tích trên phần mềm TL (version 9.0) ¹⁰. Chi tiết hơn về quá trình thí nghiệm và phân tích có thể tìm thấy trong công bố trước đó của chúng tôi về zeolite ZSM-5 ¹¹.

KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Ảnh hưởng của môi trường khí



Hình 3: Phổ thời gian sống positron của mẫu Silicalite-1 trong môi trường không khí, N_2 , Ar và chân không.

Hình 3 và Bảng 1 thể hiện phân bố thời gian sống positron và các kết quả phân tích trong mẫu zeolite Silicalite-1 ở một số môi trường khác nhau. Kết quả cho thấy các thành phần τ_1 , τ_2 , τ_3 , hầu như không bị ảnh hưởng bởi các môi trường khác nhau. Thành phần τ_3 có giá trị cỡ 1,78 ns, tương ứng với thời gian sống của positron trong các lỗ xốp vi mô trong zeolite Silicalite-1 ¹². Thành phần τ_4 và τ_5 thay đổi nhiều đối với các môi trường khác nhau và liên quan đến sự hủy của o-Ps trong các lỗ xốp trung bình, đặc biệt là giữa điều kiện chân không và không khí.

Các kết quả cho thấy thành phần thời gian sống τ_4 và τ_5 và các cường độ hủy tương ứng I_4 và I_5 tăng

lần lượt theo thứ tự của các môi trường không khí, Ar, N_2 và chân không. Trong môi trường không khí với sự có mặt của O_2 , quá trình hủy dập tắt xảy ra đã làm giảm mạnh nhất thời gian sống và xác suất hủy của o-Ps ¹². Đối với môi trường Ar và N_2 , quá trình dập tắt o-Ps xảy ra chậm hơn so với môi trường không khí do chúng đều là khí trơ ¹³. Tốc độ hủy dập tắt của o-Ps trong môi trường khí O_2 mạnh hơn đáng kể so với các khí trơ như Ar và N_2 có thể giải thích chủ yếu do sự khác biệt về đặc điểm cấu trúc điện tử và từ tính của phân tử khí. Phân tử O_2 có hai electron đơn lẻ (không ghép cặp) nằm trong quỹ đạo động lượng (orbital) chống liên kết π^* , làm cho O_2 có tính thuận từ và dễ dàng tạo tương tác spin với o-Ps, từ đó làm tăng xác suất xảy ra quá trình hủy dập tắt ^{14,15}. Bên cạnh đó, mật độ electron hóa trị cao của oxy nên o-Ps dễ dàng tiếp cận và tương tác gần với phân tử O_2 . Trong khi đó, Ar và N_2 là các khí trơ, đều có cấu hình electron bão hòa và không có electron chưa ghép cặp, dẫn đến mật độ electron tự do thấp hơn tại vùng tương tác do đó làm giảm hiệu quả của quá trình hủy dập tắt ¹⁵. Ngoài các kết quả trên, các phân tích còn cho thấy, trong môi trường chân không, thời gian sống τ_4 tương ứng với lỗ xốp có bán kính trung bình cỡ 0,5 nm, thời gian sống τ_5 ứng với lỗ xốp trung bình bán kính cỡ 13 nm ¹⁶. So với quá trình hủy trong chân không, cả ba môi trường khí đều làm giảm mạnh các thời gian sống τ_4 , τ_5 và các xác suất hủy I_4 , I_5 của o-Ps

Như vậy, trong nghiên cứu cấu trúc zeolite bằng PALS, môi trường chân không là tối ưu nhất cho phân tích xác định cấu trúc rỗng của vật liệu. Khi không đảm bảo điều kiện thí nghiệm với môi trường chân không, các môi trường khí Ar và N_2 nên được ưu tiên cho thí nghiệm theo thứ tự thay cho môi trường không khí nhưng cần tính toán đến ảnh hưởng của các môi trường này đến kết quả đo đạc.

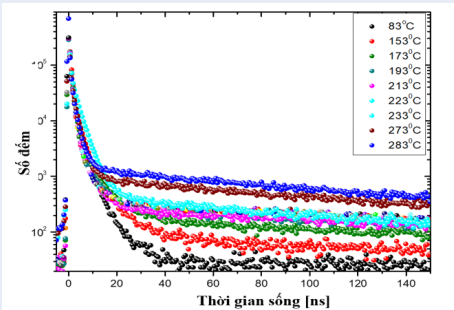
Ảnh hưởng của nước hấp phụ

Hình 4 thể hiện phổ thời gian sống của positron trong các mẫu ZSM-5 ở các nhiệt độ sấy khác nhau. Do các thành phần thời gian sống τ_1 , τ_2 , τ_3 , τ_4 gần như không bị thay đổi nên trong khảo sát này chúng tôi chỉ xem xét đến thành phần sống dài τ_5 và cường độ hủy tương ứng I_5 trong Bảng 2. Cần lưu ý rằng, khác với các thí nghiệm khảo sát trong môi trường khí, ảnh hưởng của nước hấp phụ trong nghiên cứu này chỉ tác động đến các thành phần τ_5 và I_5 . Nguyên nhân của hiện tượng này là do vật liệu zeolite ZSM-5 và Silicalite-1 có tính kháng nước cao, khiến nước khó xâm nhập vào hệ vi xốp. Trong đó, Silicalite-1 do không chứa cation nhôm nên có độ kháng nước cao

Bảng 1: Thời gian sống và cường độ hủy của o-Ps trong mẫu zeolite Silicalite-1 ở các môi trường khác nhau (sai số thực nghiệm được tính trực tiếp trên phần mềm LT từ quá trình làm khớp dữ liệu thực nghiệm).

Môi trường	τ_1 (ns)	τ_2 (ns)	τ_3 (ns)	τ_4 (ns)	τ_5 (ns)	I1 (%)	I2 (%)	I3 (%)	I4 (%)	I5 (%)
Không khí	0,169 $\pm 0,006$	0,461 $\pm 0,016$	1,78 $\pm 0,07$	1,46 $\pm 0,05$	2,35 $\pm 0,09$	26,56 $\pm 1,25$	70,43 $\pm 1,51$	1,12 $\pm 0,01$	0,54 $\pm 0,02$	1,34 $\pm 0,01$
Khí Ar	0,149 $\pm 0,005$	0,441 $\pm 0,014$	1,74 $\pm 0,06$	4,07 $\pm 0,16$	62,90 $\pm 1,48$	27,01 $\pm 1,23$	54,32 $\pm 2,23$	8,23 $\pm 0,39$	0,84 $\pm 0,40$	9,60 $\pm 0,41$
Khí N2	0,151 $\pm 0,005$	0,466 $\pm 0,015$	1,60 $\pm 0,06$	3,81 $\pm 0,17$	88,20 $\pm 1,96$	26,53 $\pm 1,14$	52,10 $\pm 1,78$	8,43 $\pm 0,42$	1,95 $\pm 0,01$	10,99 $\pm 0,44$
Chân không	0,148 $\pm 0,006$	0,468 $\pm 0,014$	1,87 $\pm 0,07$	5,60 $\pm 0,15$	113,50 $\pm 2,55$	26,54 $\pm 1,31$	52,10 $\pm 1,12$	8,42 $\pm 0,44$	1,94 $\pm 0,01$	11,00 $\pm 0,53$

hơn so với ZSM-5 vốn có khung cấu trúc chứa nhôm và các vị trí axit Brønsted dễ tương tác với phân tử nước. Vì vậy, chỉ những vùng lỗ xốp lớn liên quan đến các sai hỏng cấu trúc mới xảy ra quá trình hấp phụ nước từ độ ẩm không khí, và chính tại các vị trí này mới ghi nhận được sự thay đổi trong giá trị τ_5 và I_5 ¹⁷. Kết quả khảo sát cho thấy rằng, sau 10 giờ sấy chân không ở các mức nhiệt khác nhau, ảnh hưởng của nước hấp phụ trong hai loại zeolite nghiên cứu có thể được phân thành ba giai đoạn rõ rệt (Hình 5 và 6). Giai đoạn thứ nhất xảy ra ở khoảng nhiệt độ 80–200°C. Trong giai đoạn này, quá trình giải hấp nước diễn ra chậm do phần lớn nước vẫn còn bị giữ chặt tại các vị trí có năng lượng hấp phụ cao trong mạng zeolite. Nước tồn tại chủ yếu dưới dạng các phân tử liên kết với các tâm hoạt động hoặc cation trao đổi, khiến quá trình bốc hơi ở nhiệt độ thấp bị hạn chế¹⁸. Sự hiện diện này của nước vẫn dẫn đến hiện tượng dập tắt o-Ps, đặc biệt là o-Ps, làm cho các thông số τ_5 và I_5 chỉ thay đổi nhẹ. Giai đoạn thứ hai xảy ra trong khoảng nhiệt độ 200–250°C. Khi nhiệt độ tăng trong giai đoạn này, nước bắt đầu được giải hấp mạnh khỏi các cấu trúc mao quản và lỗ xốp lớn của vật liệu, đặc biệt tại các vùng sai hỏng cấu trúc. Đây là khoảng nhiệt độ mà nước hấp phụ vật lý (physically adsorbed water) bị loại bỏ gần như hoàn toàn, dẫn đến sự phục hồi khá rõ rệt thời gian sống và cường độ hủy của o-Ps¹⁹. Tại 250°C, τ_5 và I_5 đạt các giá trị 114 ns và 11,5% đối với Silicalite-1; 110 ns và 9% đối với ZSM-5. Giai đoạn thứ ba xảy ra ở khoảng nhiệt độ 250–300°C. Ở giai đoạn này, gần như toàn bộ lượng nước đã được loại bỏ khỏi hệ mao quản, bao gồm cả phần nước liên kết yếu tại các vùng bề mặt mở. Điều này được phản ánh qua sự ổn định của các thông số τ_5 và I_5 , vốn không còn thay đổi đáng kể khi tiếp tục gia nhiệt. Trạng thái bão hòa này cho thấy zeolite đã đạt mức khô cần thiết, không còn ảnh hưởng đến sự hình thành và tiêu hủy của o-Ps²⁰.

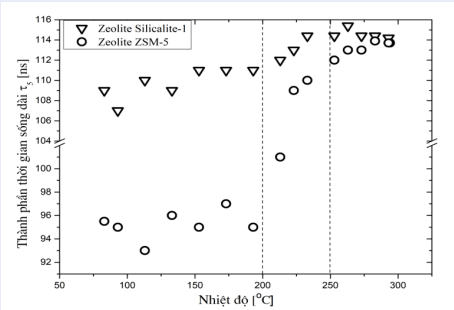


Hình 4: Phổ thời gian sống positron của mẫu ZSM-5 ở các nhiệt độ sấy khác nhau.

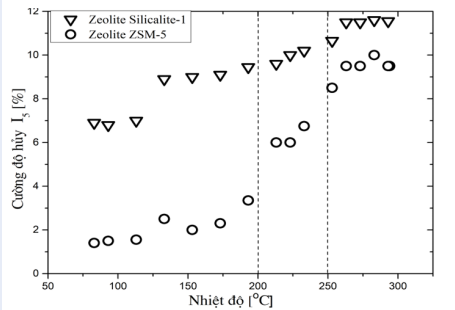
Khảo sát này cho thấy thành phần thời gian sống dài và cường độ hủy đi kèm (t_5 , I_5) chịu ảnh hưởng mạnh khi nhiệt độ sấy tăng cao, chứng tỏ nước tồn tại phần lớn trong các lỗ xốp lớn của hai loại zeolite này. Các kết quả cũng chỉ ra rằng thời gian sống τ_5 và cường độ hủy I_5 của o-Ps trong Silicalite-1 lớn hơn so với trường hợp của ZSM-5. Điều này chứng tỏ kích thước và mật độ lỗ xốp trong Silicalite-1 cao hơn so với ZSM-5. Sự thay đổi và khác biệt của thời gian sống cũng như cường độ hủy đối với hai loại mẫu zeolite silicalite-1 và ZSM-5 diễn ra suốt quá trình sấy là những thông tin rất quan trọng. Cả hai mẫu kể trên đều là các mẫu thương mại, do vậy sự khác biệt giữa chúng chắc chắn liên quan đến đặc trưng của hai loại lỗ xốp trung bình nằm ngoài khung cấu trúc (các lỗ xốp ở các biên hạt trong từng khối tinh thể zeolite hoặc các không gian rỗng lớn hình thành so các khuyết tật có kích thước lớn hơn nhiều so với ô đơn vị cơ sở của khung cấu trúc zeolite)¹⁶. Điều này cho thấy, ngay cả đối với các mẫu thương mại chuẩn, quá trình tổng hợp zeolite luôn tạo nên các không gian rỗng đặc trưng cho từng vật liệu.

Bảng 2: Thành phần thời gian sống dài t_5 và cường độ hủy I_5 của o-Ps trong các mẫu zeolite được sấy ở các nhiệt độ khác nhau (sai số thực nghiệm được tính trực tiếp trên phần mềm LT từ quá trình làm khớp dữ liệu thực nghiệm).

Nhiệt độ sấy (°C)	Zeolite Silicalite-1		Zeolite ZSM-5	
	t_5 (ns)	I_5 (%)	t_5 (ns)	I_5 (%)
83	$109,0 \pm 1,1$	$6,91 \pm 0,40$	$95,5 \pm 1,8$	$1,41 \pm 0,30$
93	$107,4 \pm 2,1$	$6,82 \pm 0,32$	$95,1 \pm 1,4$	$1,52 \pm 0,29$
113	$110,1 \pm 2,2$	$7,02 \pm 0,28$	$93,0 \pm 2,3$	$1,61 \pm 0,25$
133	$109,0 \pm 2,1$	$8,91 \pm 0,26$	$96,3 \pm 2,4$	$2,50 \pm 0,32$
153	$111,2 \pm 2,2$	$9,04 \pm 0,48$	$95,2 \pm 2,4$	$2,03 \pm 0,34$
173	$111,1 \pm 1,2$	$9,15 \pm 0,19$	$97,1 \pm 1,9$	$2,31 \pm 0,40$
193	$111,3 \pm 1,7$	$9,51 \pm 0,25$	$95,4 \pm 2,4$	$3,40 \pm 0,24$
213	$112,0 \pm 2,2$	$9,62 \pm 0,30$	$100,0 \pm 2,0$	$6,01 \pm 0,46$
223	$113,2 \pm 2,3$	$10,01 \pm 0,20$	$109,1 \pm 1,2$	$6,01 \pm 0,20$
233	$114,1 \pm 1,8$	$10,23 \pm 0,27$	$110,2 \pm 2,8$	$6,75 \pm 0,51$
253	$114,6 \pm 2,2$	$10,64 \pm 0,33$	$112,0 \pm 2,8$	$8,50 \pm 0,57$
263	$115,2 \pm 1,8$	$11,52 \pm 0,53$	$113,4 \pm 1,8$	$9,50 \pm 0,63$
273	$114,1 \pm 2,3$	$11,50 \pm 0,43$	$113,1 \pm 2,8$	$9,51 \pm 0,60$
283	$114,4 \pm 1,9$	$11,61 \pm 0,43$	$113,9 \pm 2,8$	$10,01 \pm 0,63$



Hình 5: Ảnh hưởng của xử lý nhiệt tới thời gian sống o-Ps trong các mẫu



Hình 6: Ảnh hưởng của xử lý nhiệt tới cường độ hủy o-Ps trong các mẫu

KẾT LUẬN

Nghiên cứu hiện tại đã làm rõ ảnh hưởng của môi trường khí và nước hấp phụ đến các quá trình hủy cặp thời gian sống ortho-positronoum trong zeolite Silicalite-1 và ZSM-5 bằng kỹ thuật PALS. Kết quả cho thấy các thành phần thời gian sống ngắn (τ_1 , τ_2 , τ_3) ít bị ảnh hưởng bởi môi trường khí, trong khi các thành phần thời gian sống dài (τ_4 , τ_5) và cường độ hủy (I_4 , I_5) thay đổi đáng kể. Môi trường chân không là tối ưu nhất để phân tích cấu trúc rỗng, trong khi không khí làm giảm mạnh nhất thời gian sống do quá

trình dập tắt o-Ps bởi O₂. Các khí trơ như Ar và N₂ ít ảnh hưởng hơn và có thể được sử dụng thay thế khi không thể thực hiện trong chân không. Ảnh hưởng của nước hấp phụ thể hiện qua ba giai đoạn nhiệt độ sấy và chỉ làm thay đổi thành phần thời gian sống τ_5 và cường độ hủy I_5 . Khi dưới 200°C, nước còn tồn tại trong mẫu làm giảm thời gian sống của o-Ps. Ở 200°C – 250°C, nước thoát nhanh khỏi cấu trúc rỗng, khiến τ_5 và I_5 tăng mạnh. Sau 250°C, nước hầu như đã thoát hết và các thông số đạt trạng thái bão hòa. Kết quả cũng cho thấy mẫu Silicalite-1 có thời gian sống và cường độ hủy o-Ps cao hơn ZSM-5, phản ánh

sự khác biệt về kích thước và mật độ lỗ xốp trung bình giữa hai vật liệu. Những phát hiện này khẳng định vai trò quan trọng của điều kiện môi trường trong phân tích cấu trúc rỗng của zeolite. Môi trường chân không nên được ưu tiên để đảm bảo kết quả chính xác, trong khi ảnh hưởng của nước hấp phụ cần được kiểm soát để tránh sai lệch trong phép đo.

XUNG ĐỘT LỢI ÍCH

Nhóm nghiên cứu không có bất cứ xung đột lợi ích nào liên quan đến các kết quả nghiên cứu trong bài báo.

ĐÓNG GÓP CỦA TÁC GIẢ

Lưu Anh Tuyên: thiết kế nghiên cứu, hướng dẫn tiến hành thí nghiệm, đánh giá kết quả, viết bản nháp bài báo, biên tập và gửi tạp chí. **Phạm Thị Huệ:** chuẩn bị mẫu đo, tiến hành thí nghiệm xử lý nhiệt độ, bố trí thí nghiệm thời gian sống positron, xử lý số liệu. **Nguyễn Thị Ngọc Huệ:** tiến hành đo đặc phổ thời gian sống positron, xử lý quá trình liên quan đến áp suất khí trở và chân không để hiệu chuẩn thiết bị. **Đinh Thị Hải Hà:** phân tích các thành phần thời gian sống positron, tham gia viết bản nháp, biên tập bản thảo.

CÁM ƠN

Nghiên cứu này được thực hiện bởi tài trợ của Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (Nafosted) thông qua đề tài mã số: 103.02-2021.107. Các tác giả chân thành cảm ơn sự hỗ trợ của Viện Năng lượng Nguyên tử Việt Nam và Viện Nghiên cứu Khoa học Cơ bản và Ứng dụng (Đại học Duy Tân) cho các hoạt động nghiên cứu.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Breck DW. Zeolite Molecular Sieves: structure, chemistry and use. New York: Wiley; 1974.
2. Kobayashi Y, Ito K, Oka T, Hirata K. Positronium chemistry in porous materials. Radiation Physics and Chemistry. 2007;76(2):224–30. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2006.03.042>.
3. Jean YC, Mallon PE, Schrader DM. Principles and Applications of positron & Positronium chemistry. World Scientific, Singapore. 2003; Available from: <https://doi.org/10.1142/5086>.
4. Kajcsos Z, Liszka L, Duplâtre G, Lázár K, Lohonyai L, Varga L, et al. Competitive positron and Positronium trapping in porous media. Radiation Physics and Chemistry. 2007;76(2):231–6. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2006.03.041>.
5. Goworek T, Ciecieski K, Jansinska B, Wawryszczuk J. Positron in lager void silica gel. Chemical Physics Letters. 1997;272(1-2):91–5. Available from: [https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(97\)00504-6](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(97)00504-6).
6. Heyland GR, Charlton M, Griffith TC, Wright GL. Positron lifetime spectra for gases. Canadian Journal of Physics. 1982;60(4):503–16. Available from: <https://doi.org/10.1139/p82-068>.

7. McGonigle EA, Liggat JJ, Pethrick RA, Jenkins SD, Daly JH, Hayward D. Permeability of N₂, Ar, He, O₂ and CO₂ through bi-axially oriented polyester films — dependence on free volume. Polymer. 2001;42(6):2413–26. Available from: [https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(00\)00615-7](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(00)00615-7).
8. Eldrup M, Lightbody D, Sherwood JN. The temperature dependence of positron lifetimes in solid pivalic acid. Chemical Physics. 1981;63(1-2):51–8. Available from: [https://doi.org/10.1016/0301-0104\(81\)80307-2](https://doi.org/10.1016/0301-0104(81)80307-2).
9. Fasano M, Bevilacqua A, Chiavazzo E, Asinari P. Atomistic modeling of water infiltration in defective zeolite for thermal storage applications, ASME-ATUIT 2015, Napoli;
10. Kansy J. Microcomputer Program for Analysis of Positron Annihilation Lifetime Spectra. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section A, Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1996;374(2):235–44. Available from: [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(96\)00075-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(96)00075-7).
11. Tuyen LA, Hung NQ, Cuong LC, Khiem DD, Phuc PT, Nguyen LL, et al. Simultaneous existence of defects and mesopores in nanosized ZSM-5 zeolite studied by positron annihilation and X-ray diffraction spectroscopies. Journal of Applied Physics. 2017;121(8). Available from: <https://doi.org/10.1063/1.4977013>.
12. Tao JS. Positronium Annihilation in Molecular Substances. The Journal of Chemical Physics. 1972;56(11):5499–510. Available from: <https://doi.org/10.1063/1.1677067>.
13. Yosuke S. Ps slowing down process below the Ps break-up energy in Ar gas. Journal of Physics: Conference Series. 2015;635(5). Available from: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/635/5/052088>.
14. Swann AR, Green DG, Gribakin GF. Many-body theory of positronium scattering and pickoff annihilation in noble-gas atoms. Physical Review A. 2023;107(4). Available from: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.107.042802>.
15. Moskal P, Stri EL. Positronium as a biomarker of hypoxia. Bio-Algorithms and Med-Systems. 2021;17(4):311–8. Available from: <https://doi.org/10.1515/bams-2021-0189>.
16. Tuyen LA, Xuan TD, Kiet HAT, Cuong LC, Phuc PT, Tap TD. A hybrid model for estimation of pore size from ortho-positronium lifetimes in porous materials. Radiation Physics and Chemistry. 2020;172. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2020.108867>.
17. Kajcsos Z, Kosanovic C, Bosnar S, Subotic B, Major P, Liszky DL. Monitoring the Crystallization Stages of Silicalite by Positron Lifetime Spectroscopy. Materials Science Forum. 2007;607:173–6. Available from: <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.607.173>.
18. Hunger M, Brey G, Ernst S, Weitkamp J. Interaction of Water with Alkali-Metal Cation-Exchanged X Type Zeolites: A Temperature-Programmed Desorption (TPD) and X-ray Diffraction Study. Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids. 1999;15(18):5937–41. Available from: <https://doi.org/10.1021/la981284s>.
19. Kim KJ, Ahn HG. The effect of pore structure of zeolite on the adsorption of VOCs and their desorption properties by microwave heating. Microporous and Mesoporous Materials. 2012;152:78–83. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2011.11.051>.
20. Benaliouche F, Hidous N, Guerza M, Zouad Y, Boucheffa Y. Characterization and water adsorption properties of Ag- and Zn-exchanged A zeolites. Microporous and Mesoporous Materials. 2015;209:184–8. Available from: <https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2014.10.039>.

The pick-off annihilation process of ortho-positronium in zeolite ZSM-5 and Silicalite-1 under the influence of gas environment and adsorbed water

Luu Anh Tuyen^{1,*}, Pham Thi Hue¹, Nguyen Thi Ngoc Hue¹, Dinh Thi Hai Ha²



Use your smartphone to scan this QR code and download this article

ABSTRACT

This study evaluates the influence of gas environments and adsorbed water on the pick-off annihilation process of ortho-positronium (o-Ps) lifetime in zeolite Silicalite-1 and ZSM-5. The results indicate that short-lifetime components (τ_1 , τ_2 , τ_3) are minimally affected, whereas long-lifetime components (τ_4 , τ_5) and annihilation intensity (I_4 , I_5) vary significantly depending on the gas environment. Vacuum conditions are optimal for analyzing pore structures, while air significantly reduces o-Ps lifetime due to quenching by O₂. Inert gases such as Ar and N₂ have a lesser impact and can serve as alternatives when vacuum conditions are not available. The effect of adsorbed water is categorized into three drying temperature stages, primarily influencing the τ_5 and I_5 components. Below 200°C, retained water decreases o-Ps lifetime. Between 200°C and 250°C, rapid water desorption from the pores leads to a notable increase in τ_5 and I_5 . Beyond 250°C, water is nearly eliminated, and these parameters reach a saturation state. Additionally, Silicalite-1 exhibits higher o-Ps lifetime and annihilation intensity than ZSM-5, reflecting differences in pore size and density between the two materials. These findings highlight the crucial role of environmental conditions in zeolite structure analysis. Vacuum remains the optimal choice for ensuring measurement accuracy, while the influence of adsorbed water must be controlled to prevent measurement deviations.

Key words: Silicalite-1, ZSM-5, o-Ps, Ar, N₂, absorbed water

¹Center for Nuclear Technologies – Vietnam Atomic Energy Institute, 271 Nguyentrai, D.1, Hochiminh City, Vietnam

²Buon Ma Thuot Medical University, Vietnam

Correspondence

Luu Anh Tuyen, Center for Nuclear Technologies – Vietnam Atomic Energy Institute, 271 Nguyentrai, D.1, Hochiminh City, Vietnam
Email: tuyenluanh@gmail.com

History

- Received: 20-02-2025
- Revised: 16-7-2025
- Accepted: 02-10-2025
- Published Online: 07-12-2025

DOI :

<https://doi.org/10.32508/stdjns.v9i4.1438>



Check for updates

Copyright

© VNUHCM Press. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license.



Cite this article : Anh Tuyen L, Thi Hue P, Thi Ngoc Hue N, Thi Hai Ha D. The pick-off annihilation process of ortho-positronium in zeolite ZSM-5 and Silicalite-1 under the influence of gas environment and adsorbed water. *Sci. Tech. Dev. J. - Nat. Sci.* 2025; 9(4):3466-3472.