

マイクロ波励起水素プラズマを用いた硫黄酸化物の水素化脱硫効果

Hydrodesulfurization Effect of Sulfur Oxide Using Microwave Excited Hydrogen Plasma

静大院工 °荻野 明久, 杉山 雅浩

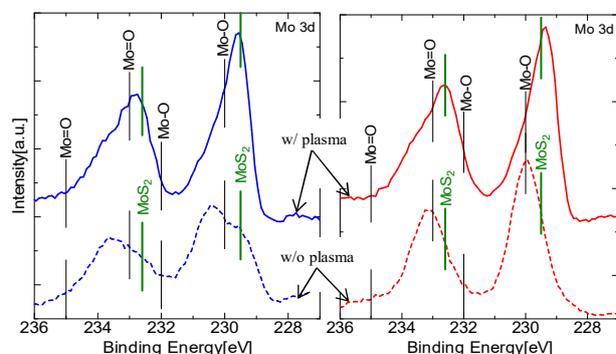
Shizuoka Univ. °Akihisa Ogino, Masahiro Sugiyama

E-mail: ogino.akihisa@shizuoka.ac.jp

【はじめに】二硫化モリブデン(MoS_2)のバンドギャップは1.3~1.9 eV程度であり、単層内の共有結合により高い機械的強度を有する。また、結晶端部には配位不飽和度3のモリブデンイオンが露出(硫黄の脱離による欠陥)する結晶構造から、水素発生反応(Hydrogen Evolution Reaction: HER)触媒電極としての利用が期待できる。本研究では、有機硫黄化合物や硫黄酸化物を用いて合成した MoS_2 の特性向上ならびにHER触媒として利用するための脱硫を目的とし、マイクロ波水素プラズマを用いた水素化脱硫の効果を評価した。

【実験方法】モリブデン酸アンモニウム四水和物($(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$)とチオウレア($\text{SC}(\text{NH}_2)_2$)を脱イオン水に混合した前駆体溶液を基板上に滴下した後、大気または真空中でアニール処理し MoS_2 を析出させた。次に、作成した MoS_2 にマイクロ波励起水素プラズマ(水素ガス圧:100 Pa)を照射し、プラズマ処理前後の MoS_2 の表面状態をX線光電分光法(XPS)により解析した。

【結果と考察】Fig. 1は大気中160 °Cおよび真空中400 °Cのアニール処理により作成した MoS_2 とそれらを水素プラズマ処理したサンプルのXPS解析結果を示す。Mo 3d スペクトルにおいて、232.6および229.5 eVのピークは MoS_2 に由来し、その近傍に酸化物由来のピークがある。図より水素プラズマ処理により酸化物由来のピークは減少し MoS_2 付近のピークが顕著になっていることから、水素プラズマにより MoS_2 表面の酸化物は減少していると考えられる。Fig. 2は同サンプルの水素プラズマ処理前後のMo/S原子組成比の測定結果を示す。前駆体溶液を大気または真空加熱して作成したサンプルのMo/S比は、それぞれ0.3および0.5であり、理論値である0.5に近い値であった。これらのサンプルを水素プラズマ処理した時のMo/S比は、それぞれ1.3および1.0に増加した。これは、プラズマ中の水素原子により硫黄原子がエッチングされ脱離したためと考えられる。



(a) 160 °C in atmosphere (b) 400 °C in vacuum

Fig. 1. XPS spectra in Mo 3d region.

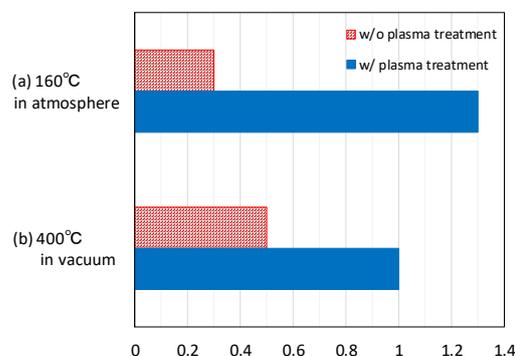


Fig. 2. Mo/S atomic ratio.