

水热法合成纳米花状二硫化钼及其微观结构表征

傅重源 邢淞 沈涛 邵博 董前民 舒海波 梁培

Synthesis and characterization of flower-like MoS<sub>2</sub> microspheres by hydrothermal method

Fu Chong-Yuan Xing Song Shen Tao Tai Bo Dong Qian-Min Shu Hai-Bo Liang Pei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 016102 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.016102

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.016102>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I1>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

低聚壳聚糖几何结构和物理化学属性的理论研究

Theoretical study on geometry and physical and chemical properties of oligochitosan

物理学报.2014, 63(7): 076102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.076102>

丝素氨基酸寡肽链生长过程中的尺寸效应

Size effect of silk fibroin peptide chains in the growth process

物理学报.2013, 62(23): 236101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.236101>

B/N 掺杂对于石墨烯纳米片电子输运的影响

The electronic transport properties affected by B/N doping in graphene-based molecular devices

物理学报.2013, 62(18): 186102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.186102>

甘氨酸色氨酸寡肽链的红外光谱的密度泛函研究

DFT research on the IR spectrum of glycine tryptophan oligopeptides chain

物理学报.2013, 62(15): 156103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.156103>

一种简单高效的制备硅纳米孔阵结构的方法

A simple and efficient method for preparing silicon nanopit arrays

物理学报.2013, 62(15): 156104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.156104>

## 水热法合成纳米花状二硫化钼及其微观结构表征\*

傅重源 邢淞 沈涛 邵博 董前民<sup>†</sup> 舒海波 梁培<sup>‡</sup>

(中国计量学院, 光学与电子科技学院, 杭州 310018)

(2014年6月12日收到; 2014年8月20日收到修改稿)

本文以钼酸钠、硫代乙酰胺为前驱体, 硅钨酸为添加剂, 成功用水热法合成高纯度纳米花状二硫化钼. 产物特性用X射线衍射(XRD)、能量色散谱(EDS)、扫描电子显微镜(SEM)进行表征. XRD和EDS图显示实验产物为二硫化钼, 且其结晶度和层状堆垛良好. SEM图谱则表明二硫化钼为纳米花状结构, 颗粒直径300 nm左右, 由几十上百片花瓣组成, 每片花瓣厚度十个纳米左右. 通过以硅钨酸为变量的梯度实验, 研究发现, 硅钨酸对于纳米花状MoS<sub>2</sub>的形成具有重要作用, 不添加硅钨酸, 无法形成纳米花状MoS<sub>2</sub>, 此外, 硅钨酸的剂量会影响合成MoS<sub>2</sub>的大小和形貌. 本文还对纳米花状二硫化钼的形成机理做了初步的讨论.

**关键词:** 二硫化钼, 纳米花, 水热法**PACS:** 61.46.-w, 68.35.bg, 78.30.Na**DOI:** 10.7498/aps.64.016102

## 1 引言

近年来, 过渡金属二硫化物MS<sub>2</sub>(M = Mo, W, Nb, Ta, Ti, Re)引起了广泛的关注<sup>[1,2]</sup>, MS<sub>2</sub>在催化剂<sup>[3]</sup>、固体润滑剂<sup>[4]</sup>、锂电池<sup>[5]</sup>、储氢<sup>[6]</sup>、析氢<sup>[7]</sup>、光电学<sup>[8]</sup>等方面有着巨大的应用前景. 二硫化钼(MoS<sub>2</sub>)是过渡金属二硫化物中的一个典型. 与石墨烯和六方氮化硼类似, MoS<sub>2</sub>具有六方晶体层状结构<sup>[9]</sup>, 层内由共价键结合<sup>[10]</sup>, 层与层之间则由范德华力结合<sup>[11]</sup>. MoS<sub>2</sub>是一种典型的半导体, 当其由体材料减薄到单层, 由于量子限域效应, 它的禁带宽度会由1.29 eV增加到1.80 eV左右<sup>[12]</sup>, 能带结构也由间接带隙转变为直接带隙, 意味着单层MoS<sub>2</sub>材料不仅适合于制作微电子器件, 也适合被用来制作光电子器, 是新型纳米薄膜材料之一. 研究表明, 基于二硫化钼的电子传感器对一氧化氮的检测灵敏度极好<sup>[13]</sup>, 基于单层二硫化钼的晶体管电流开关比高达 $1 \times 10^8$ <sup>[14]</sup>, 基于二硫化钼的光电晶体管光电响应率达到880 AW<sup>-1</sup><sup>[15]</sup>. MoS<sub>2</sub>有

抗磁性, 可用作线性光电导体和显示p型或n型导电性能的半导体, MoS<sub>2</sub>作为一种固体润滑剂, 具有分散性好, 不黏结的优点, 同时, MoS<sub>2</sub>在催化领域也有着突出的表现<sup>[16,17]</sup>.

无机纳米材料的性能和其尺寸大小以及形貌息息相关, 因此, 各种形态的二硫化钼被制备成功, 有无机富勒烯结构<sup>[18]</sup>、纳米线<sup>[19]</sup>、纳米带<sup>[20]</sup>、纳米管<sup>[21]</sup>、纳米棒<sup>[22]</sup>、纳米微球<sup>[22]</sup>、中空球<sup>[23]</sup>、纳米花<sup>[24]</sup>等. 合成二硫化钼的方法也是多种多样, 例如机械剥离法<sup>[25]</sup>、夹层辅助剥离法<sup>[4]</sup>、液相声波降解剥离法<sup>[26]</sup>、激光稀释法<sup>[27]</sup>、物理气相沉积<sup>[28]</sup>、化学气相沉积<sup>[29]</sup>、水热法<sup>[30]</sup>等. 相较于其他合成MoS<sub>2</sub>的方法, 水热法由于反应温度要求低、结晶度好、无需真空通保护气体、操作简单、无污染等优点<sup>[31]</sup>, 是合成纳米MoS<sub>2</sub>常用的方法. 水热法是一种在高温、高压的密闭环境(反应釜)中, 用水或者溶剂为反应介质, 利用物质溶解度的变化和物质之间的化学反应, 使得物质重结晶并生长的方法<sup>[32]</sup>.

本文以钼酸钠(Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>·2H<sub>2</sub>O)为钼源,

\* 国家自然科学基金(批准号: 61006051, 61177050)、浙江省大学生科技创新活动计划(批准号: 2013R409016)和浙江省科技厅公益技术应用研究(批准号: 2013C31068)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: qmdong@cjlu.edu.cn

<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: plianguhust@gmail.com

硫代乙酰胺( $\text{CH}_3\text{CSNH}_2$ )为硫源, 硅钨酸( $\text{H}_4\text{O}_{40}\text{SiW}_{12}\cdot x\text{H}_2\text{O}$ )为添加剂, 利用水热法在 $180^\circ\text{C}$ 环境下反应24 h合成纳米花状二硫化钼. 产物分别用X射线衍射(X-ray powder diffraction, XRD)、能量色散谱(energy dispersive spectrometer, EDS)、扫描电子显微镜(scanning electron microscopy, SEM)等手段进行表征. 硅钨酸在反应过程中具有重要作用, 初步探究了纳米花状 $\text{MoS}_2$ 的形成机理. 并且提出了该形貌的 $\text{MoS}_2$ 材料在催化, 尤其是复合催化材料领域将有着较大的潜在应用.

## 2 实验

### 2.1 纳米花状 $\text{MoS}_2$ 的合成

所有化学试剂都是分析纯, 实验步骤如下. 将2 g 钼酸钠( $\text{Na}_2\text{MoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )和2 g 硫代乙酰胺( $\text{CH}_3\text{CSNH}_2$ )溶解在100 mL去离子水中, 再加入0, 1, 2, 3g 硅钨酸( $\text{H}_4[\text{Si}(\text{W}_3\text{O}_{10})_4]\cdot x\text{H}_2\text{O}$ ), 搅拌均匀后, 溶液呈黄色. 将该溶液移入200 mL反应釜中, 密闭后在 $180^\circ\text{C}$ 温度下反应24 h, 自然降到室温. 过滤得到的黑色沉淀物用1 mol/L的NaOH、无水乙醇、去离子水清洗, 在真空 $60^\circ\text{C}$ 环境下干燥12 h.

### 2.2 纳米花状 $\text{MoS}_2$ 的表征

实验产物分别用XRD, EDS, SEM等手段进行表征. X射线衍射仪是德国布鲁克D2 PHASER, 射线源为Cu靶 $K\alpha$ ( $\lambda = 0.154056$ ). 扫描电子显微镜采用ZEISS的SUPRA55, 配备能谱色散仪(EDS).

## 3 结果与讨论

样品的晶体结构和晶相纯度用XRD进行表征. 如图1(b)所示, 样品XRD图谱的主要衍射峰都能在XRD标准卡中索引到, 并且与标准卡中的六角相 $\text{MoS}_2$ (JCPDS No. 37-1492)完全一致, 这表明样品为六角相 $\text{MoS}_2$ . XRD图谱中主要衍射峰高、尖锐, 而且没有除 $\text{MoS}_2$ (JCPDS No. 37-1492)之外的衍射峰, 说明 $\text{MoS}_2$ 样品纯度高、结晶度好. 另外, 高高尖锐的衍射峰(002)证明 $\text{MoS}_2$ 样品在水热合成过程中层状堆垛良好. 如图1(a)显示, 没有添加硅钨酸的时候, (002)峰强度很弱且有馒头

峰出现, 说明产物结晶度和层状堆垛都不好. 根据XRD图还可以计算晶粒尺寸, 由Scherrer公式估算:

$$D_{hkl} = k\lambda/\beta\cos\theta,$$

其中,  $D_{hkl}$ 为沿垂直于晶面( $hkl$ )方向的晶粒度,  $k$ 为Scherrer常数(通常为0.89),  $\lambda$ 为入射X射线波长(Cu $K\alpha$ 波长为0.154056 nm, Cu $K\alpha$ 1波长为0.15418 nm),  $\theta$ 为布拉格衍射角( $^\circ$ ),  $\beta$ 为衍射峰的峰半高宽(rad). 本文中, 由Scherrer公式计算得到的 $D_{hkl}$ 表示 $\text{MoS}_2$ 纳米花中纳米花瓣的厚度. 通过软件Jade得到峰半高宽 $0.799^\circ = 0.0139$  rad, 则根据Scherrer公式得到 $D_{hkl} = 9.93$  nm, 表示 $\text{MoS}_2$ 纳米花的花瓣厚度在10 nm左右.

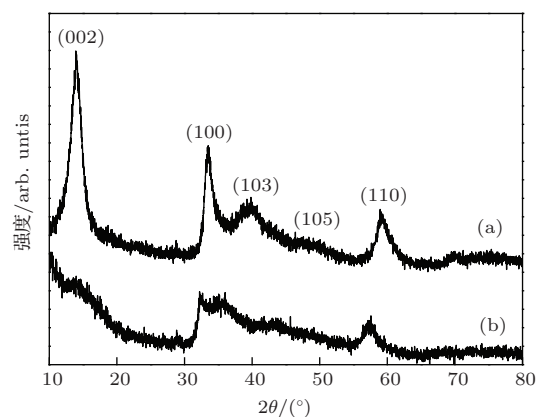
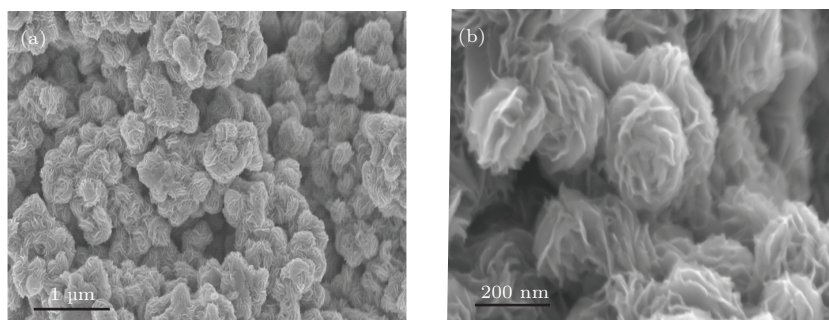
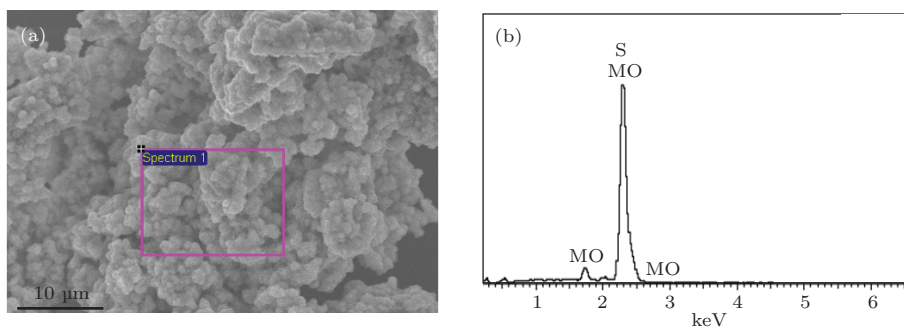


图1 水热法合成 $\text{MoS}_2$ 样品XRD图谱 (a)不添加硅钨酸; (b)添加2 g 硅钨酸

为了明晰样品形貌, 本文对 $\text{MoS}_2$ 样品进行了SEM表征. 图2(a)是 $\text{MoS}_2$ 样品的SEM图, 从图中可以看出实验合成的 $\text{MoS}_2$ 样品是粒径较为一致的纳米花状 $\text{MoS}_2$ . 图2(b)是 $\text{MoS}_2$ 样品更高倍数的SEM图谱, 该图清晰地显示出纳米花状 $\text{MoS}_2$ 微球是由几十到上百 $\text{MoS}_2$ 纳米片组成的, 每个 $\text{MoS}_2$ 纳米片厚度十个纳米左右,  $\text{MoS}_2$ 微球大小在300 nm左右. 该结构具有较大的比表面积, 在催化材料方面将有着较大的应用前景.

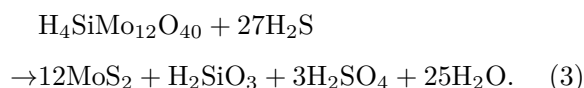
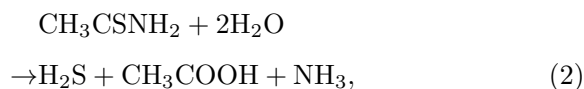
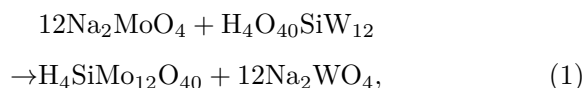
为了表征合成物的化学成分, 本文还给出了相应 $\text{MoS}_2$ 样品的能量色散谱测试结果. 图3为 $\text{MoS}_2$ 样品能量色散谱(EDS), (a)为EDS选择区域, (b)是所选区域的EDS图谱. EDS图测试表明样品中只存在Mo和S两种元素, 不含其他元素. 此外, EDS图谱定量分析表示, S/Mo原子比为2.09, 在实验误差范围之内非常接近 $\text{MoS}_2$ 的理论比值.


 图2 添加2 g 硅钨酸水热反应合成的纳米花状 MoS<sub>2</sub> 的SEM图谱 (a) 放大倍数 17500; (b) 放大倍数 75000

 图3 MoS<sub>2</sub> 样品 EDS 图谱 (a) 选择区域; (b) 所选区域 EDS 图谱

为了研究硅钨酸在 MoS<sub>2</sub> 形成过程中所起到的作用, 进行了在相同实验条件下, 不添加硅钨酸、添加 1 g 硅钨酸、添加 2 g 硅钨酸、添加 3 g 硅钨酸的梯度实验. 图 4(a) 是不添加硅钨酸水热反应合成的 MoS<sub>2</sub> 的 SEM 图谱, SEM 图谱表明, 当不添加硅钨酸的时候, 实验得到的 MoS<sub>2</sub> 并非纳米花状, 而是许多无序、交错的纳米片, 且纳米片尺寸较大; 图 4(b) 是添加 1 g 硅钨酸水热反应合成的 MoS<sub>2</sub> 的 SEM 图谱, 图谱中可见纳米花状 MoS<sub>2</sub>, 但团聚比较严重, 图 4(c) 是添加 2 g 硅钨酸水热反应合成的 MoS<sub>2</sub> 的 SEM 图谱, 合成的 MoS<sub>2</sub> 为纳米花状; 图 4(d) 是添加 3 g 硅钨酸水热反应合成的 MoS<sub>2</sub> 的 SEM 图谱, 图谱显示该 MoS<sub>2</sub> 样品由少数 MoS<sub>2</sub> 纳米片聚合在一起, 也呈现花状, 不过花状不明显, 花径也较小.

Tang 等 [33] 发现在水热法合成纳米花状 MoS<sub>2</sub> 过程中, 添加剂十六烷基三甲基溴化铵 (CTAB) 扮演了一个重要的角色, 不添加 CTAB 就无法制备纳米花状 MoS<sub>2</sub>, 只有添加 CTAB 才能合成纳米花状 MoS<sub>2</sub>. 水热法合成纳米花状 MoS<sub>2</sub> 的过程中, 由硅钨酸生成的十二钼硅酸 (H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub>) 起到了和 CTAB 相类似的作用. 纳米花状 MoS<sub>2</sub> 形成过程分为, 示意图如图 5. 第一步, MoS<sub>2</sub> 纳米粒子的合成, 钼酸钠和硅钨酸反应生成十二钼硅酸

(H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub>), 硫代乙酰胺和水反应生成硫化氢 (H<sub>2</sub>S), H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 和 H<sub>2</sub>S 反应生成 MoS<sub>2</sub>, 反应过程如下:



第二步, MoS<sub>2</sub> 纳米粒子再结晶过程中, 由于各个晶面生长速率的不同, MoS<sub>2</sub> 纳米片形成. 第三步, 不添加硅钨酸, 没有 H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 生成时, MoS<sub>2</sub> 纳米片会主要进行边缘-表面结合, 生成尺寸较大的 MoS<sub>2</sub> 纳米片 (如图 4(a)), 当添加硅钨酸, 有 H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 存在时, 由于 H<sub>4</sub>SiMo<sub>12</sub>O<sub>40</sub> 对 MoS<sub>2</sub> 纳米片的电荷屏蔽效应, 使得 MoS<sub>2</sub> 纳米片表面和边缘的电荷差异减小或者消失, 进而 MoS<sub>2</sub> 纳米片会进行大量边缘-表面结合、边缘-边缘附着以及少量表面-表面附着 [34], 但随着边缘-表面结合、边缘-边缘附着以及表面-表面附着, MoS<sub>2</sub> 纳米片的表面能又会减少, 从而抑制 MoS<sub>2</sub> 的生长最终自组装形成纳米花状 MoS<sub>2</sub>.

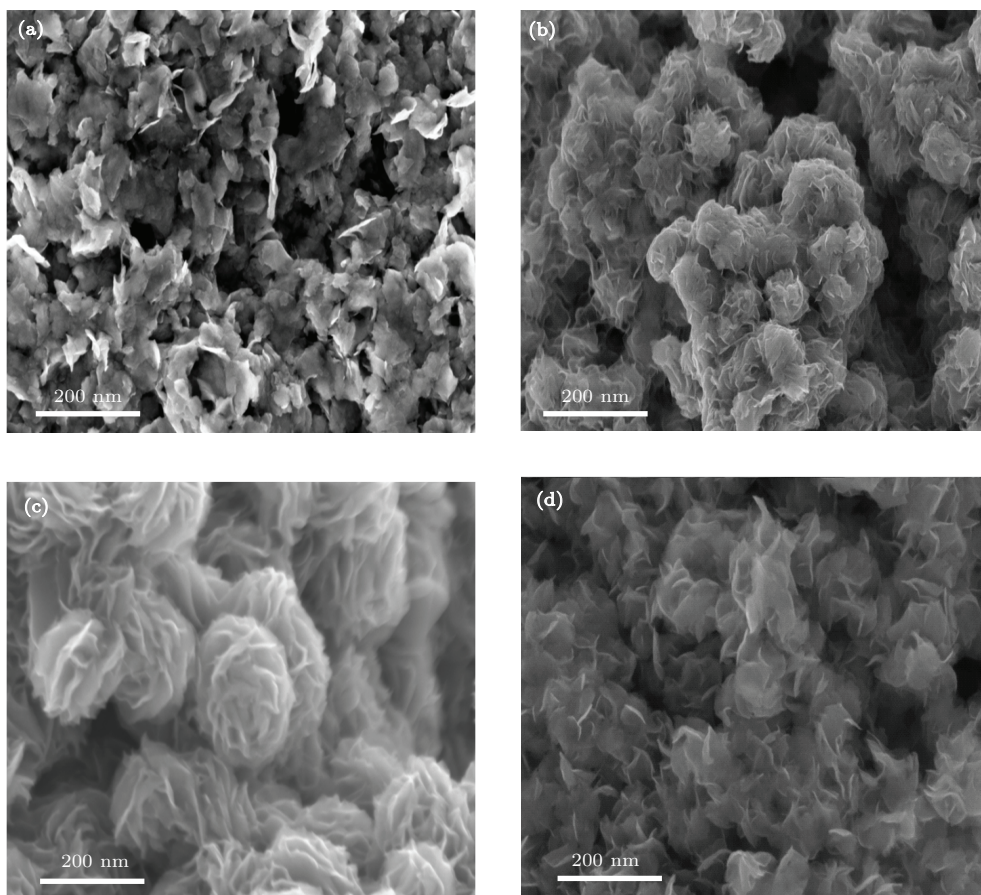


图4 添加不同硅钨酸剂量水热反应合成的 MoS<sub>2</sub> 的 SEM 图谱 (a) 不添加硅钨酸; (b) 添加 1 g 硅钨酸; (c) 添加 2 g 硅钨酸; (d) 添加 3 g 硅钨酸

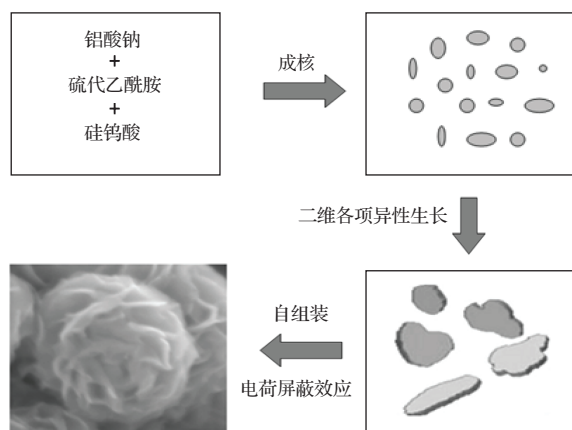


图5 纳米花状 MoS<sub>2</sub> 形成示意图

该形成机理很好地解释了添加不同硅钨酸剂量时 MoS<sub>2</sub> 的形貌变化. 当不添加硅钨酸时, MoS<sub>2</sub> 纳米片会主要进行边缘-表面结合, 生成尺寸较大的 MoS<sub>2</sub> 纳米片(如图 4(a)); 当添加 1 g 硅钨酸时, 硅钨酸剂量不够, 电荷屏蔽效应比较弱, 所以有纳米花状 MoS<sub>2</sub> 生成, 但团聚严重(如图 4(b)); 当

添加 2 g 硅钨酸时, 硅钨酸适量, 生成比较完美的 MoS<sub>2</sub>(如图 4(c)); 当添加 3 g 硅钨酸时, 硅钨酸数量过多, 电荷屏蔽效应比较强, MoS<sub>2</sub> 纳米片的表面能较弱, MoS<sub>2</sub> 生长受到抑制, 所以生成花径较小的 MoS<sub>2</sub>(如图 4(d)).

## 4 结 论

本文以硅钨酸为添加剂, 用水热法在 180 °C 下成功合成纳米花状 MoS<sub>2</sub>. 合成的 MoS<sub>2</sub> 微球结晶度好, 具有层状堆垛结构, 大小在 300 nm 左右, 由几十到上百厚度约为十纳米的 MoS<sub>2</sub> 纳米片组成, 该结构具有较大的比表面积, 在催化材料方面将有着较大的应用前景. 微观表征结果表明, 纳米花状 MoS<sub>2</sub> 的形成经过成核-二维各向异性生长-自组装三个步骤, 其中, 由硅钨酸产生的十二钼硅酸致使 MoS<sub>2</sub> 纳米片聚合成纳米花状 MoS<sub>2</sub> 作用至关重要. 该研究将有利于 MoS<sub>2</sub> 纳米花状结构合成工

艺的优化,也将有益于MoS<sub>2</sub>和其他纳米材料的复合,为开发新型的高性能光催化材料打下基础.

### 参考文献

- [1] Guo S B, Kang Q P, Cai C B, Qu X H 2012 *Rare Metals*. **31** 368
- [2] Guo H H, Yang T, Tao P, Zhang Z D 2014 *Chin. Phys. B* **23** 017201
- [3] Zhou W, Yin Z Y, Du Y P, Huang X, Zeng Z Y, Fan Z X, Liu H, Wang J Y, Zhang H 2013 *Small* **9** 140
- [4] Rapoport L, N Fleischer, R Tenne 2005 *Journal of Materials Chemistry* **15** 1782
- [5] Whittingham M S 2004 *Chemical Reviews* **104** 4271
- [6] Cheng F Y, Chen J 2006 *Journal of Materials Research*. **21** 2744
- [7] Li Y G, Wang H L, Xie L M, Liang Y Y, Hong G S, Dai H J 2011 *Journal of the American Chemical Society* **133** 7296
- [8] Frindt R F, Arrott, A S, Curzon A E, Heinrich B, Morrison S R, Templeton T L, Divigalpitiya R, Gee M A, Joensen P, Schurer P J 1991 *Journal of Applied Physics* **70** 6224
- [9] Dong H H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 206101 (in Chinese) [董海明 2013 物理学报 **62** 206101]
- [10] Liu J, Liang P, Shu H B, Shen T, Xing S, Wu Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 117101 (in Chinese) [刘俊, 梁培, 舒海波, 沈涛, 邢淞, 吴琼 2014 物理学报 **63** 117101]
- [11] Zhang Z J, Zhang J, Xue Q J 1994 *Journal of Physical Chemistry*. **98** 12973
- [12] Li X M, Long M Q, Cui L L, Xiao J, Xu H 2014 *Chin. Phys. B* **23** 047307
- [13] Li H, Yin Z Y, He Q Y, Li H, Huang X, Lu G, Fam Derrick, Wen H, Tok, Alfred I Y, Zhang Q, Zhang H 2012 *Small* **8** 63
- [14] Radisavljevic B, Radenovic A, Brivio J, Giacometti V, Kis A 2011 *Nature Nanotechnology*. **6** 147
- [15] Lopez-Sanchez O, Lembke D, Kayci M, Radenovic A, Kis A 2013 *Nature Nanotechnology*. **8** 497
- [16] Xiang Q J, Yu J G, Jaroniec M 2012 *Journal of the American Chemical Society* **134** 6575
- [17] Liu Y, Yu Y X, Zhang W D 2013 *Journal of Physical Chemistry C* **117** 12949
- [18] Margulis L, Salitra G, Tenne R, Tallanker M 1993 *Nature* **365** 113
- [19] Li W J, Shi E W, Ko J M, Chen Z Z, Ogino H, Fukuda T 2003 *Journal of Crystal Growth*. **250** 418
- [20] Li Q, Walter E C, Van der Veer W E, Murray B J, Newberg J T, Bohannon E W, Switzer J A, Hemminger J C, Penner R M 2005 *The Journal of Physical Chemistry B* **109** 3169
- [21] Chen J, Li S L, Xu Q, Tanaka K 2002 *Chemical Communications*. **16** 1722
- [22] Albitar MA, Huirache-Acuna R, Paraguay-Delgado F, Rico JL, Alonso-Nunez G 2006 *Nanotechnology*. **17** 3473
- [23] Dhas N A, Suslick K S 2005 *Journal of the American Chemical Society*. **127** 2368
- [24] Li Y, Bando Y, Golberg D 2003 *Applied Physics Letters*. **82** 1962
- [25] Novoselov KS, Jiang D, Schedin F, Booth TJ, Khotkevich VV, Morozov SV, Geim AK 2005 *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*. **102** 10451
- [26] Coleman J N, Lotya M, O'Neill A, Bergin S D, King P J, Khan U, Young K, Gaucher A, De S, Smith R J 2011 *Science*. **331** 568
- [27] Castellanos-Gomez A, Barkelid M, Goossens AM, Calado V E, Van der Zant, H SJ 2012 *Nano Letters*. **12** 3187
- [28] Helveg S, Lauritsen J V, Lægsgaard E, Stensgaard I, Nørskov J K, Clausen BS, Topsøe H, Besenbacher F 2000 *Physical Review Letters* **84** 951
- [29] Najmaei S, Liu Z, Zhou W, Zou X L, Shi G, Lei S D, Yakobson B I, Idrobo J C, Ajayan P M, Lou J 2013 *Nature Materials* **12** 754
- [30] Chang K, Chen W 2011 *ACS Nano*. **5** 4720
- [31] Yuan H J, Chen Y Q, Yu F, Peng Y H, He X W, Zhao D, Tang D S 2011 *Chin. Phys. B* **20** 036103
- [32] Cundy C S, Cox P A 2003 *Chemical Reviews* **103** 663
- [33] Tang G G, Sun J R, Wei C, Wu K Q, Ji X R, Liu S S, Tang H, Li C S 2012 *Materials Letters* **86** 9
- [34] Yang J, Li C X, Quan Z W, Zhang C, Yang P, Li Y, Yu C, Lin J 2008 *The Journal of Physical Chemistry C* **112** 12777

# Synthesis and characterization of flower-like MoS<sub>2</sub> microspheres by hydrothermal method\*

Fu Chong-Yuan Xing Song Shen Tao Tai Bo Dong Qian-Min<sup>†</sup> Shu Hai-Bo Liang Pei<sup>‡</sup>

(College of Optical and Electronic Technology, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

( Received 12 June 2014; revised manuscript received 20 August 2014 )

## Abstract

High-purity flower-like MoS<sub>2</sub> microspheres have been successfully synthesized by hydrothermal method using Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> and CH<sub>3</sub>CSNH<sub>2</sub> as precursors, and H<sub>4</sub>O<sub>40</sub>SiW<sub>12</sub> as an additive. Samples are characterized by X-ray powder diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM), and energy dispersive spectrometer (EDS). XRD and EDS patterns show that the as-prepared samples are MoS<sub>2</sub>, which have good crystallinity with a well-stacked layered structure. SEM images show that the as-prepared MoS<sub>2</sub> are composed of flower-like microspheres with a mean diameter about 300 nm, the structures of which are constructed from dozens of hundreds of MoS<sub>2</sub> nano-sheet with a thickness of several nanometers. It is also found that the silicotungstic acid plays an important role in the formation of the flower-like MoS<sub>2</sub> microspheres, which could affect the size and morphology of the MoS<sub>2</sub>. Flower-like MoS<sub>2</sub> is not found in the as-prepared product without adding silicotungstic acid. A formation mechanism of MoS<sub>2</sub> microspheres is tentatively given.

**Keywords:** MoS<sub>2</sub>, nanoflower, hydrothermal method

**PACS:** 61.46.-w, 68.35.bg, 78.30.Na

**DOI:** [10.7498/aps.64.016102](https://doi.org/10.7498/aps.64.016102)

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61006051, 61177050), the College students in Zhejiang Province Science and Technology Innovation Activities Plan, China (Grant No. 2013R409016), and the Science and Technology Department of Zhejiang Province Public Interest Research Technology, China (Grant No. 2013C31068).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [qmdong@cjlu.edu.cn](mailto:qmdong@cjlu.edu.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [plianghust@gmail.com](mailto:plianghust@gmail.com)