



拉曼光谱研究退火氧化镍中二阶磁振子散射增强

宋梦婷 张悦 黄文娟 侯华毅 陈相柏

Enhancement of two-magnon scattering in annealed nickel oxide studied by Raman spectroscopy

Song Meng-Ting Zhang Yue Huang Wen-Juan Hou Hua-Yi Chen Xiang-Bai

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 167201 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210454

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210454>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

溶液法制备的金属掺杂氧化镍空穴注入层在钙钛矿发光二极管上的应用

Perovskite light-emitting diodes based on solution-processed metal-doped nickel oxide hole injection layer

物理学报. 2020, 69(1): 018101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191269>

氧化镍在倒置平面钙钛矿太阳能电池中的应用进展

Research progress of inverted planar perovskite solar cells based on nickel oxide as hole transport layer

物理学报. 2021, 70(11): 118801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201896>

电场条件下氧化锌结晶特性及极化产物的拉曼光谱分析

Crystallization characteristics of zinc oxide under electric field and Raman spectrum analysis of polarized products

物理学报. 2019, 68(7): 070701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181961>

基于氧化镍背接触缓冲层碲化镉薄膜太阳能电池的研究

Nickel oxide as back surface field buffer layer in CdTe thin film solar cell

物理学报. 2017, 66(11): 117301 <https://doi.org/10.7498/aps.66.117301>

外电场极化对纳米氧化锌拉曼活性及气敏性能的影响

Polarization effect of external electric field on Raman activity and gas sensing of nano zinc oxide

物理学报. 2018, 67(14): 140701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180182>

双光子荧光与相干反斯托克斯拉曼散射显微成像技术的实验研究

Experimental study on two-photon fluorescence and coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy

物理学报. 2017, 66(10): 104204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.104204>

拉曼光谱研究退火氧化镍中二阶磁振子散射增强*

宋梦婷¹⁾ 张悦¹⁾ 黄文娟^{1)2)†} 侯华毅¹⁾ 陈相柏^{1)‡}

1) (武汉工程大学, 光学信息与模式识别湖北省重点实验室, 武汉 430205)

2) (华中科技大学材料科学与工程学院, 材料成形与模具技术国家重点实验室, 武汉 430074)

(2021年3月9日收到; 2021年4月20日收到修改稿)

运用激光拉曼光谱研究了450—1050 °C退火处理对氧化镍中二阶磁振子散射的增强效应, 同时分析了激光功率对氧化镍中二阶磁振子散射的影响. 研究发现, 退火处理可显著增强氧化镍中二阶磁振子散射, 在450—1050 °C范围内, 退火温度越高, 增强效应越明显, 经过1050 °C退火处理后二阶磁振子散射增强效应可达两个数量级以上. 该显著增强效应与高温退火处理后氧化镍样品中镍缺陷的显著减少紧密相关, 同时也与镍离子的晶格排列结构紧密相关. 而且高温退火处理还可显著降低激光功率对氧化镍中二阶磁振子散射的影响. 当退火温度较低时, 氧化镍中二阶磁振子散射随激光功率的增加快速减弱并消失, 而经过1050 °C退火处理后, 氧化镍中二阶磁振子散射在较高激光功率下仍非常显著.

关键词: 二阶磁振子, 拉曼光谱, 退火, 氧化镍

PACS: 72.10.Di, 78.30.-j, 61.72.Cc, 75.47.Lx

DOI: 10.7498/aps.70.20210454

1 引言

氧化镍是一种用途广泛的磁性半导体, 具有较宽的带隙(约3.6 eV)和很高的Néel温度 T_N (523 K)^[1,2]. 氧化镍显示出的磁性、催化及传感等特性, 使其在磁性材料、光电材料、电极材料、传感器、燃料电池等多个领域都有广泛的应用^[3-6].

拉曼光谱是一种非常有效的研究材料特性的方法, 不仅可以很好地研究材料声子振动特性, 也可以用于研究材料磁振子散射特性^[7-9]. 氧化镍的拉曼光谱包括五个声子带和三个磁振子带: ~200 cm^{-1} 和~300—600 cm^{-1} 处的一阶声子峰(1P), ~730, ~900和~1100 cm^{-1} 处的二阶声子峰(2P), ~30—40 cm^{-1} 处的一阶磁振子峰(1M)、~1400—1500 cm^{-1} 处的二阶磁振子峰(2M)和~2500—

2600 cm^{-1} 处的四阶磁振子峰(4M)^[10-12]. 氧化镍中磁振子散射对材料的晶格缺陷、粒度大小、样品温度、激光功率等特性非常敏感, 受到了广泛的研究^[11-18].

同声子振动相比, 磁振子散射信号通常非常弱, 增强磁振子散射信号强度对磁振子学研究和应用有重要作用. 本文运用简单的热退火处理方法显著增强了氧化镍中二阶磁振子散射, 经过1050 °C退火处理后二阶磁振子散射增强效应可达两个数量级以上. 同时高温退火处理可显著降低激光功率对氧化镍中二阶磁振子散射的影响.

2 实验部分

研究所用氧化镍粉末样品从上海麦克林生化科技有限公司购买. 退火处理采用合肥科晶材料

* 国家自然科学基金(批准号: 51902227, 11574241)和华中科技大学材料成形与模具技术国家重点实验室开放课题研究基金(批准号: P2020-021)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wjhuang@wit.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: xchen@wit.edu.cn

技术有限公司 OTF-1200X-80-II 双温区管式炉, 退火温度分别为 450, 550, 650, 750, 850, 950 和 1050 °C, 退火时间 7 h.

拉曼光谱通过 Thermo Fisher 激光拉曼光谱仪获得, 激光波长为 532 nm, 光谱采集波数范围为 250—2000 cm^{-1} , 积分时间为 30 s, 积分次数为 2 次, 激光功率分别为 0.5, 1, 2, 3, 5 和 7 mW.

3 结果与讨论

图 1 为氧化镍原始样品及经过 450, 550, 650, 750, 850, 950 和 1050 °C 等温度退火处理后的拉曼光谱, 所有光谱都采用 2 mW 激光功率获得. 氧化镍具有立方岩盐晶体结构, 在 Néel 温度以下拥有 A 型反铁磁结构, 同时该反铁磁结构伴有轻微的菱形晶格畸变^[17]. 反铁磁材料中, 一般二阶磁振子散射的强度最强^[19]. 图 1 中约 1500 cm^{-1} 处拉曼峰为氧化镍二阶磁振子 (2M) 散射, 在氧化镍拉曼光谱中, 该峰的物理根源没有争议^[10–12]. 本文主要研究退火处理对氧化镍中 2M 散射的影响.

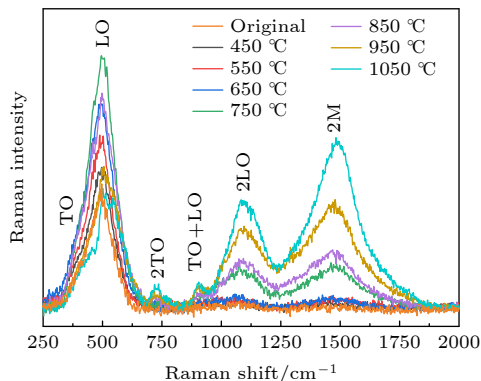


图 1 氧化镍原始样品及经过 450, 550, 650, 750, 850, 950 和 1050 °C 等温度退火处理后的拉曼光谱
Fig. 1. Raman spectra of the original nickel oxide powder and annealed at temperatures of 450, 550, 650, 750, 850, 950, 1050 °C.

除了 2 M 散射峰, 图 1 中还观测到 ~300—600 cm^{-1} , ~720 cm^{-1} , ~900 cm^{-1} , 及 ~1100 cm^{-1} 等主要为声子散射的拉曼峰. 其中 ~300—600 cm^{-1} 处拉曼峰的物理根源最为复杂, 该峰中包含一阶横向光学声子 (TO) 峰, 一阶纵向光学声子 (LO) 峰, 还可能包含一阶表面光学声子 (SO) 峰或一阶横向光学声子与一阶磁振子 (M) 的组合 (TO+M) 峰等^[10–12]. 立方岩盐晶体结构中, 一阶 TO 和 LO 散

射为非拉曼活性模式, 图 1 中的一阶 TO 和 LO 散射峰是由于菱形晶格畸变和晶体缺陷产生的^[20]. 约 720 cm^{-1} 处为二阶横向光学声子 (2TO) 峰; 约 900 cm^{-1} 处为横向光学声子与纵向光学声子的组合 (TO+LO) 峰; 约 1100 cm^{-1} 处为二阶纵向光学声子 (2LO) 峰, 还可能包含二阶表面光学声子 (2SO) 峰^[10–12]. 这些主要为声子散射的拉曼峰中, ~300—600 cm^{-1} 及 ~1100 cm^{-1} 处拉曼峰的物理根源需要进一步详细系统的研究, 本文中仅将约 1100 cm^{-1} 处 2LO 散射作为参照与 2M 散射进行比较.

图 1 显示高温退火处理对氧化镍中 2M 散射的能量没有明显改变, 但对 2M 散射强度有非常显著的增强效应. 在 450—1050 °C 温度范围内, 退火温度越高, 2M 散射增强效应越明显: 当退火温度低于 650 °C 时, 仅能微弱增强 2M 散射; 当退火温度为 750 和 850 °C 时, 可显著增强 2M 散射; 当退火温度为 950 °C 时, 2M 散射进一步显著增强; 当退火温度为 1050 °C 时, 2M 散射增强效应最大, 与氧化镍原始样品相比, 增强效应可达两个数量级以上. 图 1 还显示高温退火处理对 2M 散射的增强要显著强于对二阶声子散射的增强, 而且退火温度越高, 2M 散射的增强效应越强于二阶声子散射的增强; 当退火温度为 1050 °C 时, 与氧化镍原始样品相比, 2M 散射增强效应约为二阶声子散射增强效应的 5 倍.

氧化镍晶体为立方岩盐结构, 每个镍离子有 12 个最相邻的邻近镍离子和 6 个次相邻的邻近镍离子. 在 Néel 温度以下, 镍离子与最相邻的镍离子之间为弱的铁磁相互作用, 与次相邻的镍离子之间为强的反铁磁相互作用. 氧化镍中 2M 散射的能量可由下式哈密顿量计算^[3,20]:

$$H = J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} (S_i \cdot S_j) + J_2 \sum_{\langle i,k \rangle} (S_i \cdot S_k),$$

式中第一部分对次相邻的 6 个镍离子求和, J_1 为反铁磁相互作用交换积分; 式中第二部分对最相邻的 12 个镍离子求和, J_2 为铁磁相互作用交换积分. J_1 的数值约为 J_2 的 13.8 倍, 因而在计算 2 M 散射能量时主要考虑反铁磁相互作用, 铁磁相互作用可以忽略^[3,20]. 从哈密顿量计算公式可以看出, 磁振子散射的能量受晶体结构改变的影响非常显著^[19]. 图 1 显示高温退火处理主要改变了磁振子散射的

强度, 而对磁振子散射能量的影响很小. 这说明高温退火处理对氧化镍样品晶体结构的影响可以忽略. 这也和文献中 X 射线衍射实验研究高温退火处理对氧化镍晶体结构的影响结果一致 [2,20].

研究表明磁振子散射强度受晶体材料中缺陷/杂质的影响非常大, 在磁性离子晶格排列中, 当磁性离子被杂质取代或为缺陷时, 磁振子散射强度将快速降低, 而且磁振子散射强度的降低是缺陷/杂质浓度增加的数倍 [9,19]. 氧化镍原始样品的颜色为黑色, 表明原始样品中有较多的镍缺陷, 随着退火温度的升高, 样品的颜色逐渐从黑色变为绿色, 表明高温退火处理后, 镍缺陷逐渐减少. 这和文献中正电子湮没实验研究高温退火处理对氧化镍晶体结构中镍缺陷的改变结果一致, 当退火温度高于 400 °C 时, 镍缺陷开始减少, 而且随着退火温度的升高, 镍缺陷越来越少, 当退火温度高于 1000 °C 时, 大部分镍缺陷被去除了, 样品化学计量趋向于 Ni:O = 1:1 [2]. 所以图 1 中 2 M 散射的显著增强效应与高温退火处理后氧化镍样品中镍缺陷的显著减少紧密相关.

为了更清楚地分析退火处理与 2M 散射强度的关系, 图 2(a) 中给出了 2M 散射强度与退火温度的关系, 图中 2M 散射强度以退火温度为 1050 °C 时的强度作为参照进行了归一化. 当退火温度为 1050 °C 时, 氧化镍样品中镍缺陷很少, 因而 2M 散射强度强; 而当退火温度较低时, 氧化镍原始样品中镍缺陷较多, 因而 2M 散射强度弱, 甚至难于观测. 这和文献中对六角锰氧化物中磁振子散射强度的研究结果一致: 当磁性锰离子被非磁性离子取代时, 磁振子散射强度迅速降低, 而且当非磁性离子较多时, 磁振子散射难于被观测 [9,19]. 作为对比, 图 2 中插图给出了六角锰氧化物中磁振子散射强度与非磁性离子浓度的关系, 可以看出, 磁振子散射强度的降低不仅与非磁性离子浓度相关, 而且与磁性离子的晶格排列结构相关: 每个锰离子与 6 个相邻的锰离子反铁磁相互作用, 而磁振子散射强度的降低也约为非磁性离子浓度的 6 倍 [9,19]. 当退火温度升高时, 氧化镍样品中镍缺陷逐渐减少, 图 2(a) 显示氧化镍中 2M 散射强度与退火温度的关系与六角锰氧化物中磁振子散射强度与非磁性离子浓度的关系类似, 因而可以初步推测氧化镍中 2M 散射强度不仅与镍缺陷的多少紧密相关, 还与镍离子的晶格排列结构紧密相关.

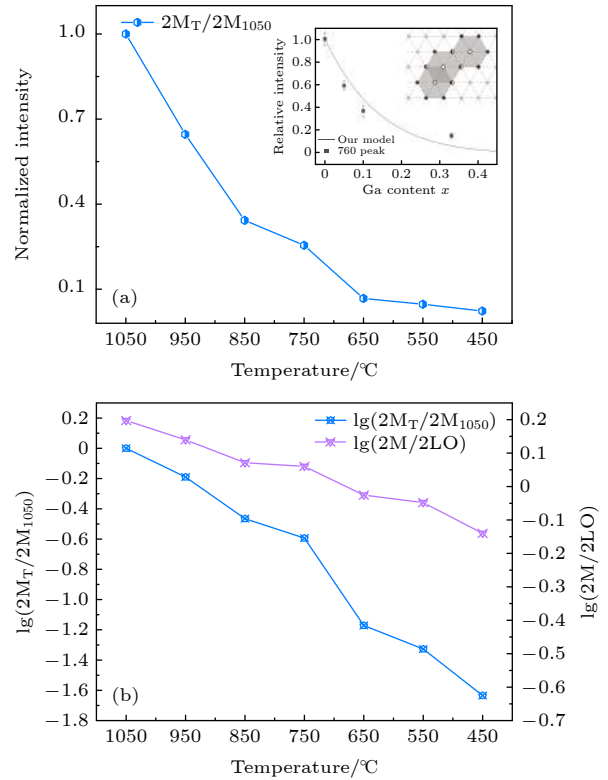


图 2 (a) 归一化 2M 散射强度与退火温度的关系. 插图为六角锰氧化物中磁振子散射强度与非磁性离子浓度的关系 [9]. (b) 2M 与 2LO 散射强度比及归一化 2M 散射强度的对数与退火温度的关系

Fig. 2. (a) Normalized 2M intensity as a function of annealing temperature. Inset is the magnon scattering intensity as a function of non-magnetic doping concentration in hexagonal manganite [9]. (b) Logarithms of 2M to 2LO intensity ratio and normalized 2M intensity as a function of annealing temperature.

当退火温度升高时, 不仅 2M 散射强度显著增强, 2LO 散射强度也有显著增强, 但 2M 散射的增强效应明显强于 2LO 散射的增强. 图 2(b) 给出了 2M 与 2LO 散射强度比与温度的关系, 作为对比, 图中也给出了 2M 散射强度与温度的关系. 为了更清楚地比较 2M 与 2LO 散射强度比及 2M 散射强度的变化, 图中 2M 与 2LO 散射强度比及 2M 散射强度都取了对数. 图 2(b) 清楚地显示 2M 和 2LO 散射强度随温度的变化有明显的区别: 2M 散射增强明显强于 2LO 散射增强, 而且退火温度越高, 2M 散射增强效应越强于 2LO 散射. 2LO 散射强度应主要与镍缺陷的多少紧密相关, 因而图 2(b) 进一步说明 2M 散射强度不仅与镍缺陷的多少紧密相关, 还与镍离子的晶格排列结构紧密相关. 氧化镍晶体中, 每个镍离子与 6 个次相邻的邻近镍离子有强反铁磁相互作用, 所以 2M 散射的增强要显

著强于 2LO 散射的增强. 本文仅初步定性地分析了高温退火处理减少氧化镍样品中镍缺陷从而显著增强 2M 散射的效应. 由于 2M 散射强度对镍缺陷多少的改变非常敏感, 详细分析 2M 散射强度与镍缺陷多少的关系, 将有希望找到一种简单方便的定量分析氧化镍样品中镍缺陷的拉曼光谱方法.

图 1 中二阶磁振子和二阶光学声子随退火温度升高散射强度逐渐增强. 而主要包含一阶光学声子散射的 $\sim 300\text{--}600\text{ cm}^{-1}$ 处宽峰先增强后减弱, 其强度在退火温度为 $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时最强. 这是由于退火温度为 $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 黑色氧化镍将显著变为绿色氧化镍. 而绿色氧化镍中 LO 散射强度要显著低于黑色氧化镍中的 LO 散射^[21]. 同时图 1 显示当退火温度高于 $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, $\sim 300\text{--}600\text{ cm}^{-1}$ 处宽峰中可能包含的散射峰更容易分辨, 因而高温退火处理也将有助于研究 $\sim 300\text{--}600\text{ cm}^{-1}$ 处宽峰中各个散射峰的物理根源.

高温退火增强氧化镍中 2M 散射有助于进一步研究其特性. 磁振子散射对温度非常敏感, 温度升高时, 磁振子散射强度迅速减弱直至消失^[9,19]. 对于粉末样品, 强的激光可产生显著的激光加热效应, 激光功率越高, 加热效应越显著, 导致磁振子散射越难于观测. 高温退火处理后, 氧化镍晶体结构中镍缺陷的显著减少将有助于降低激光加热效应, 从而有希望在较高的激光功率下仍能显著地观测到 2M 散射.

图 3 比较了三种不同退火温度处理 (850 , 950 和 $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$) 氧化镍样品在不同激光功率下 ($P_{\text{ex}} = 0.5, 1, 2, 3, 5, 7\text{ mW}$) 的拉曼光谱变化. 对于 $850\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品, 当激光功率较低时, 2M 散射强度随激光功率的增加有一定的增强, 但当激光功率较高时, 2M 散射强度迅速减弱, 能量显著红移, 同时谱带宽度显著变宽. 这表明 $850\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品仍有非常显著的激光加热效应. 对于 $950\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品, 2M 散射强度随激光功率的增加增强, 但相对于二阶声子散射, 增强得要弱一些, 特别是当激光功率较高时, 2M 散射比二阶声子散射随激光功率增加而增强的效应显著减弱, 同时能量明显红移, 谱带宽度也变宽. 这表明 $950\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品也有比较明显的激光加热效应. 对于 $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品, 2M 散射强度随激光功率的增加而增强, 且与二阶声子散

射比较, 即使当激光功率较高时, 增强效应也仅仅稍微减弱, 同时能量红移也较弱. 这表明 $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ 温度下退火处理的氧化镍样品仅有较弱的激光加热效应.

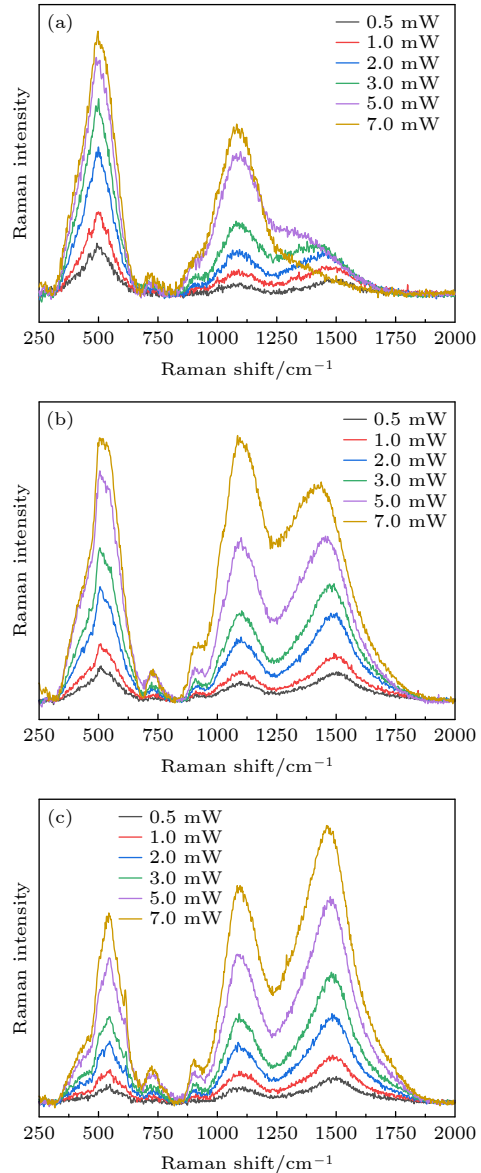


图 3 (a) $850\text{ }^{\circ}\text{C}$, (b) $950\text{ }^{\circ}\text{C}$, (c) $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ 退火处理氧化镍在 $0.5, 1, 2, 3, 5, 7\text{ mW}$ 等不同激光功率下的拉曼光谱
Fig. 3. Raman spectra of the nickel oxide annealed at (a) $850\text{ }^{\circ}\text{C}$, (b) $950\text{ }^{\circ}\text{C}$, (c) $1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ under different laser power of $0.5, 1, 2, 3, 5, 7\text{ mW}$.

为了更清楚地比较三种不同退火温度处理的氧化镍样品在不同激光功率下的拉曼光谱变化, 图 4 比较了不同退火温度下 2M 与 2LO 拉曼峰强度比及 2M 拉曼峰偏移随激光功率的变化. 从图 4(a) 可以明显地看到不同退火温度处理的氧化镍样品中 2M 与 2LO 拉曼峰强度比都随激光功率

的增加而降低,同时随着退火温度的升高,降低效应迅速减弱.而且相同激光功率条件下,高温退火处理的氧化镍样品中2M与2LO拉曼峰强度比都明显增加.从图4(b)可以明显地看到不同退火温度处理的氧化镍样品中2M拉曼峰能量都随激光功率的增加而发生红移,同时随着退火温度的升高,红移效应迅速减弱.当激光功率为0.5 mW时,不同退火温度处理的氧化镍样品中2M拉曼峰能量没有明显差别,表明在这个激光功率下,激光加热效应都比较弱.当激光功率升高时,不同退火温度处理的氧化镍样品中都会发生激光加热效应,退火温度为950 °C时,激光加热效应快速减弱,退火温度提高到1050 °C时,激光加热效应继续显著减弱.图3进一步清楚地证明了高温退火处理可显著增强氧化镍中2M散射,并显著减弱激光功率对氧化镍中2M散射的影响.

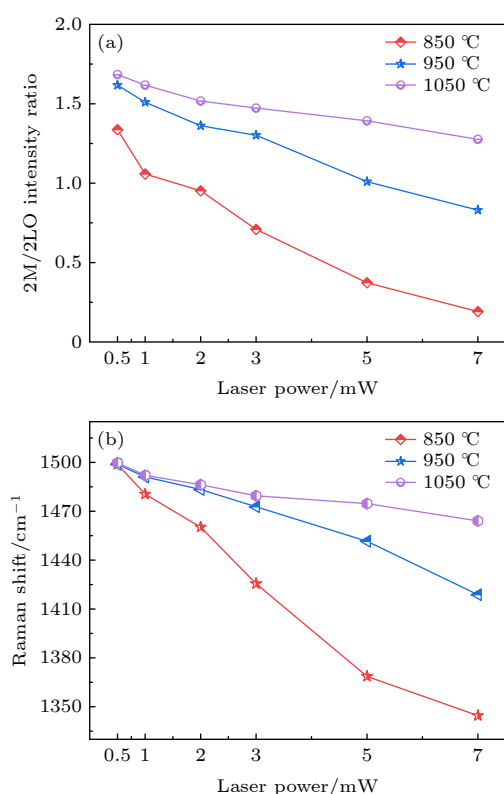


图4 不同退火温度氧化镍拉曼光谱中(a)2M和2LO拉曼峰强度对比,及(b)2M拉曼峰偏移随激光功率的变化

Fig. 4. Laser power dependence of (a) 2M to 2LO intensity ratio, and (b) 2M Raman shift at different annealing temperatures.

磁振子散射信号通常非常弱,而且受温度影响非常敏感.因而磁振子散射一般在低温及低激光功率条件下才能有效观测到,导致磁振子散射的研究

较少,目前磁振子散射的物理机理还需要详细系统的研究^[8,9,19].氧化镍具有很高的Néel温度 T_N (523 K),而且经过高温退火处理后,氧化镍中2M散射可增强两个数量级以上,同时受激光功率的影响显著减弱.因而氧化镍中2M散射在室温及较高的激光功率条件下仍能显著地观测到,这将有助于全面系统地研究2M散射物理机理,对未来磁振子散射机制的全面理解及磁振子学的应用有重要帮助.

4 结论

高温退火处理可显著增强氧化镍中二阶磁振子散射,并显著减弱激光功率对氧化镍中二阶磁振子散射的影响.在450—1050 °C范围内,退火温度越高,增强效应越明显.经过1050 °C退火处理后,二阶磁振子散射增强效应可达两个数量级以上,该增强效应与高温退火处理后氧化镍样品中镍缺陷的显著减少紧密相关.而且高温退火处理可显著降低激光功率对氧化镍中二阶磁振子散射的影响.经过1050 °C退火处理的氧化镍样品仅有较弱的激光加热效应,其二阶磁振子散射在较高激光功率下仍非常显著.

参考文献

- [1] Dharmaraj N, Prabu P, Nagarajan S, Kim C H, Park J H, Kim H Y 2006 *Mater. Sci. Eng. B* **128** 111
- [2] Chen Z Y, Chen Y Q, Zhang Q K, Tang X Q, Wang D D, Chen Z Q, Mascher P, Wang S J 2017 *ECS J. Solid State Sci. Technol.* **6** 798
- [3] Mishra Sunil K, Subrahmanyam V 2011 *Int. J. Mod. Phys. B* **25** 2507
- [4] Gandhi S, Nagalakshmi N, Baskaran I, Dhanalakshmi V, Gopinathan Nair M R, Anbarasan R 2010 *J. Appl. Polym. Sci.* **118** 1666
- [5] Wang Y, Zhu J, Yang X, Lu L, Wang X 2005 *Thermochim. Acta* **437** 106
- [6] Plashnitsa V V, Gupta V, Miura N 2010 *Electrochim. Acta* **55** 6941
- [7] Chen X B, Kong M H, Choi J Y, Kim H T 2016 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49** 465304
- [8] Chen X B, Guo P C, Huyen N T, Kim S, Yang I S, Wang X Y, Cheong S W 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 122405
- [9] Nam J Y, Kim S, Nguyen H T M, Chen X B, Choi M S, Lee D, Noh T W, Yang I S 2020 *J. Raman Spectrosc.* **51** 2298
- [10] Gandhi A C, Huang C Y, Yang C C, Chan T S, Cheng C L, Ma Y R, Wu S Y 2011 *Nanoscale Res. Lett.* **6** 485
- [11] Sunny A, Balasubramanian K 2020 *J. Phys. Chem. C* **124** 12636
- [12] Mironova-Ulmane N, Kuzmin A, Sildos I, Puust L, Grabis J 2019 *Latv. J. Phys. Tech. Sci.* **56** 61
- [13] Deshpande M P, Patel K N, Gujarati V P, Patel K, Chaki S H 2016 *Adv. Mater. Res.* **1141** 65

- [14] Lockwood D J, Cottam M G, Baskey J H 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107** 1053
- [15] Duan W J, Lu S H, Wu Z L, Wang Y S 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 26043
- [16] Gandhi A C, Pant J, Pandit S D, Dalimbkar S K, Chan T S, Cheng C L, Ma Y R, Sheng Y W 2013 *J. Phys. Chem. C* **117** 18666
- [17] Lacerda M M, Kargar F, Aytan E, Samnakay R, Debnath B, Li J X, Khitun A, Lake R K, Shi J, Balandin A A 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 202406
- [18] Baran S, Hoser A, Penc B, Szytula A 2016 *Acta Phys. Pol. A* **129** 35
- [19] Hou H Y, Yang M, Qiu J, Yang Y S, Chen X B 2019 *Cryst.* **9** 357
- [20] Bala N, Singh H K, Verma S, Rath S 2020 *Phys. Rev. B* **102** 024423
- [21] Dietz R E, Parisot G I, Meixner A E 1971 *Phys. Rev. B* **4** 2302

Enhancement of two-magnon scattering in annealed nickel oxide studied by Raman spectroscopy*

Song Meng-Ting¹⁾ Zhang Yue¹⁾ Huang Wen-Juan^{1)2)†}
 Hou Hua-Yi¹⁾ Chen Xiang-Bai^{1)‡}

1) (*Hubei Key Laboratory of Optical Information and Pattern Recognition, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430205, China*)

2) (*State Key Laboratory of Material Processing and Die & Mould Technology, School of Material Science and Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China*)

(Received 9 March 2021; revised manuscript received 20 April 2021)

Abstract

Laser Raman spectroscopy is used to study the enhancement effect of two-magnon scattering in nickel oxide through annealing treatment in a temperature range from 450 °C to 1050 °C, and investigate laser heating effect on two-magnon scattering. Our study shows that two-magnon scattering of nickel oxide can be tremendously enhanced with annealing temperature rising. In the temperature range from 450 °C to 1050 °C, the enhancement increases with annealing temperature increasing, and with 1050 °C annealing the two-magnon scattering can be enhanced more than two orders of magnitude, also the enhancement of two-magnon scattering is much stronger than that of two-phonon scattering. This tremendous enhancement is correlated not only with the significant decrease of Ni-vacancy by high temperature annealing, but also with the magnetic spin ordering network of Ni ions. The variation of sensitive intensity of two-magnon scattering with the concentration of Ni-vacancy can be used to provide a simple Raman spectroscopy method of quantitatively measuring the Ni-vacancy in nickel oxide. In addition, the annealing treatment can significantly reduce the laser heating effect on two-magnon scattering in nickel oxide power samples. At low annealing temperature, the intensity of two-magnon scattering quickly quenches with increasing laser power. With 1050 °C annealing, the laser heating effect on two-magnon scattering is significantly reduced and two-magnon scattering can still have strong intensity at high laser power.

Keywords: two-magnon, Raman spectroscopy, annealed, nickel oxide

PACS: 72.10.Di, 78.30.-j, 61.72.Cc, 75.47.Lx

DOI: 10.7498/aps.70.20210454

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51902227, 11574241) and the Open Project of State Key Laboratory of Material Processing and Die & Mould Technology, Huazhong University of Science and Technology, China (Grant No. P2020-021).

† Corresponding author. E-mail: wjhuang@wit.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: xchen@wit.edu.cn