

# X 射线吸收谱对 $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$ 薄膜中缺陷的研究\*

乔媛媛 肖正国 曹先存 郭浩民 史同飞<sup>†</sup> 王玉琦

(中国科学院固体物理研究所材料物理重点实验室, 合肥 230031)

(2010 年 3 月 4 日收到; 2010 年 4 月 12 日收到修改稿)

采用低温分子束外延法(LT-MBE)制备出  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  稀磁半导体(DMS)薄膜. 通过 X 射线吸收谱(XAS)研究影响  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  薄膜性质的主要缺陷 Mn 间隙原子( $\text{Mn}_i$ )和 As 反位原子( $\text{As}_{\text{Ga}}$ ). 实验结果表明, 在较低生长温度( $T_s = 200^\circ\text{C}$ )下  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  晶格中缺陷分布以 As 反位原子( $\text{As}_{\text{Ga}}$ )为主; 较高生长温度( $T_s > 230^\circ\text{C}$ )时样品中主要缺陷是 Mn 间隙( $\text{Mn}_i$ )原子. 同时, 在较高低温退火温度( $250^\circ\text{C}$ )下可以使样品内部  $\text{Mn}_i$  向表面大量析出, 减少反铁磁相, 达到最高居里温度(130 K). XAS 结果还表明, 退火可以使得表面的  $\text{As}_{\text{Ga}}$  缺陷脱附, 驱动周围的  $\text{Mn}_i$  原子填补  $\text{As}_{\text{Ga}}$  缺陷留下的空位, 提高  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  原子浓度.

**关键词:**  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  稀磁半导体, X 射线吸收谱, As 反位缺陷, Mn 间隙原子

**PACS:** 61.05. c<sup>-</sup>, 61.05. cj, 74.62. Dh

## 1. 引言

稀磁半导体(DMSs)是通过在普通半导体材料中注入少量磁性离子,使其具有铁磁性的一种功能材料. 它能同时操控电子的电荷和自旋两种属性,是自旋电子学的基础材料,因此 DMSs 的研究受到了广泛的关注<sup>[1-3]</sup>. III-V 体系的(Ga, Mn)As 材料具有良好的半导体性能、较高的载流子浓度,同时其铁磁性来源可以较好的用类 RKKY 理论来解释<sup>[3]</sup>,是目前最有可能实现自旋电子学器件实用化的材料,在实验室中被普遍用来设计制备各种自旋电子学器件<sup>[4, 5]</sup>.

(Ga, Mn)As 材料自 1996 年被发现是一种具有较高居里温度的 DMS 材料以来,人们一直都试图进一步提高其居里温度( $T_C$ ),以期实现室温铁磁性. 目前采用低温退火方法处理的(Ga, Mn)As 材料, $T_C$ 已上升到 170 K 以上<sup>[6]</sup>,但与实用所要求依然相差甚大. 在之前的工作中,我们已发现(Ga, Mn)As 材料中 Mn 间隙原子<sup>[7, 8]</sup>、As 反位原子<sup>[8]</sup>等缺陷的不同分布,会使材料的结构与磁性发生明显改变;通

过反射光谱发现了(Ga, Mn)As 材料中空穴浓度与制备条件依赖关系<sup>[9]</sup>. 同时文献[10]与文献[11]也从自旋弛豫效应以及理论计算上研究发现 Mn 间隙原子能够降低(Ga, Mn)As 体系的  $T_C$ . 在这些基础上深入理解(Ga, Mn)As 材料的结构特性,探讨由于制备条件变化带来的结构差异和缺陷影响等因素<sup>[12]</sup>,对于理解掺杂原子的周围结构与磁性之间的关系,指导下一步的实验工作尤为重要. 因此本工作采用分子束外延设备(MBE),通过精确控制生长和退火温度获得两个系列的(Ga, Mn)As 薄膜样品. 通过 X 射线吸收谱(XAS)研究(Ga, Mn)As 薄膜的结构变化,尤其是系统的研究替代位 Mn 原子( $\text{Mn}_{\text{Ga}}$ )、间隙位 Mn 原子( $\text{Mn}_i$ )与 As 反位原子( $\text{As}_{\text{Ga}}$ )缺陷随生长、退火条件改变而发生的变化.

## 2. 制备与测试

采用 Riber-32 型分子束外延设备,利用非平衡态低温 MBE 生长法(LT-MBE),制备所需  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  薄膜样品. 具体步骤如下:将清洗洁净后的 GaAs 衬底,装入预处理室加热到  $200^\circ\text{C}$  除气 0.5

\* 中科院知识创新工程青年人才领域前沿项目基金(084N541121)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: tongfeishi@gmail.com

h;送入生长室,在As束流的保护下缓慢升温到580℃,利用热脱附获得洁净的表面;待氧化层被完全除去后,在600℃左右生长一层高温GaAs缓冲层,得到平整的表面;降低衬底温度生长一层5nm的低温GaAs作为隔离层;在隔离层上制备30nm左右的Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As材料(生长速率保持在0.6μm/h);最后在Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As层生长结束后,覆盖一层~10Å的低温GaAs保护层.整个生长过程中As/Ga束流比恒定在6:1,Mn的掺杂浓度固定为5.4%.在非掺杂半绝缘GaAs(100)衬底上,在不同生长温度( $T_s = 200, 230, 280$ ℃)下制备出第一系列的Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As薄膜,标记为1<sup>#</sup>,2<sup>#</sup>,3<sup>#</sup>.将230℃的样品切割成小块,在高纯N<sub>2</sub>保护气氛中、不同的LT-退火温度( $T_A = 150, 200, 250$ ℃)下退火1h,得到第二系列的Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As薄膜样品,原位样品标记为4<sup>#</sup>,其余依次标记为5<sup>#</sup>,6<sup>#</sup>,7<sup>#</sup>.

XAS谱的测量是在国家同步辐射实验室(合肥)的软X射线磁圆二色站(XMCD)进行的.能量范围在100—1000eV之间,光通量量级在10<sup>8</sup>photons/s,分辨率为 $E/\Delta E = 1000$ ,光斑尺寸3

×1mm<sup>2</sup>.

### 3. 结果与讨论

在图1中给出了Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As样品系列一和系列二的电阻率与温度( $\rho-T$ )变化关系.由于 $\rho-T$ 曲线中电阻率的峰值对应的温度就是样品的 $T_C$ <sup>[13]</sup>,可以发现Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As各样品在电阻率和 $T_C$ 上表现出很大的区别.如图1(a)中 $T_s = 200$ ℃的1<sup>#</sup>样品虽然也表现出铁磁性,但其电阻率 $\rho$ 显示此时样品是绝缘的,而在较高 $T_s$ 下制备的2<sup>#</sup>,3<sup>#</sup>样品低温下表现出金属导电性.同时随着 $T_s$ 的升高,3<sup>#</sup>样品的 $T_C$ 在70K左右,也要略高于2<sup>#</sup>样品的66.83K.在图1(b)中退火后的曲线上,这一差别更加明显. $T_s = 230$ ℃的4<sup>#</sup>样品在经过250℃退火后得到的7<sup>#</sup>样品的 $T_C$ 提高到了133.70K,样品电阻率也大幅降低.为了揭示造成样品 $T_C$ 以及 $\rho$ 改变的因素,我们采用XAS谱图对Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As不同条件下生长的样品的结构进行解析.

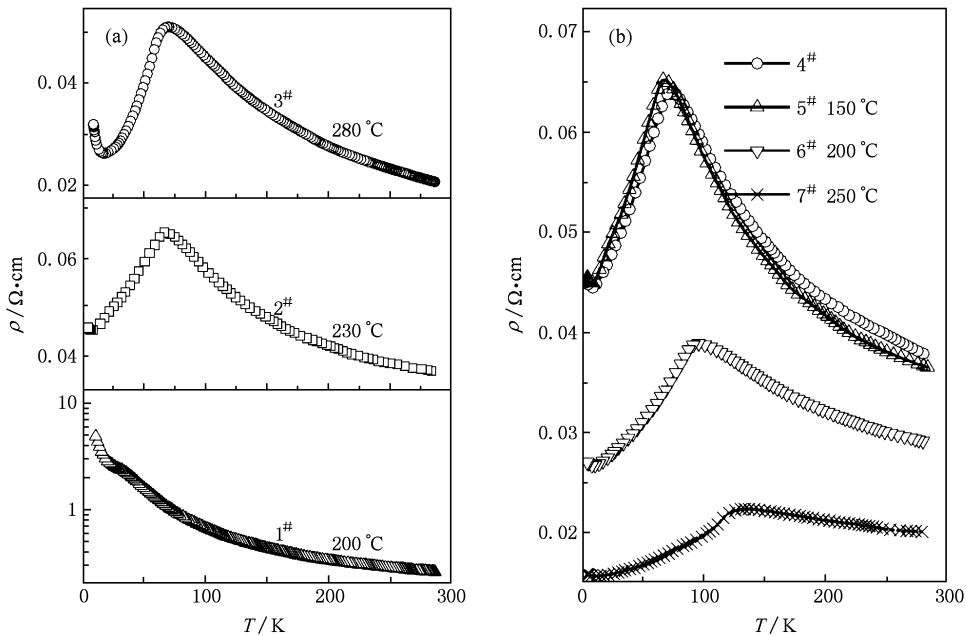


图1 (a) 1<sup>#</sup>,2<sup>#</sup>,3<sup>#</sup>原位样品的 $\rho-T$ 关系曲线;(b) 4<sup>#</sup>原位样品以及退火后5<sup>#</sup>,6<sup>#</sup>,7<sup>#</sup>样品的 $\rho-T$ 关系曲线

图2(a)中给出了不同生长温度下,原位生长的Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As样品中Mn元素 $L_{III}$ 边的XAS谱;在图2(b)中,给出原位样品4<sup>#</sup>,以及不同退火温度处理后的样品中Mn元素的 $L_{III}$ 边XAS对比谱.需要指出的是,图2(b)中所有样品测量前均用浓盐酸浸泡

30s,去除保护层和氧化层.对比图2(a)和(b)中的实验曲线,可以发现不同样品的 $L_{III}$ 峰的强度和形状随着生长和退火温度的不同有明显的变化.考虑到Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As样品的Mn的掺杂浓度恒定为5.4%,可以排除是由Mn浓度的变化造成的.结合

之前的研究结果<sup>[14]</sup> LT 生长模式会在  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  As 薄膜中引入大量的缺陷,因此本文将采用 Feff

8.4 软件<sup>[15]</sup>模拟不同缺陷对 Mn 元素  $L_{\text{III}}$  边的影响. 与 XAS 实验谱对比,来揭示造成 Mn 元素  $L_{\text{III}}$  边曲线

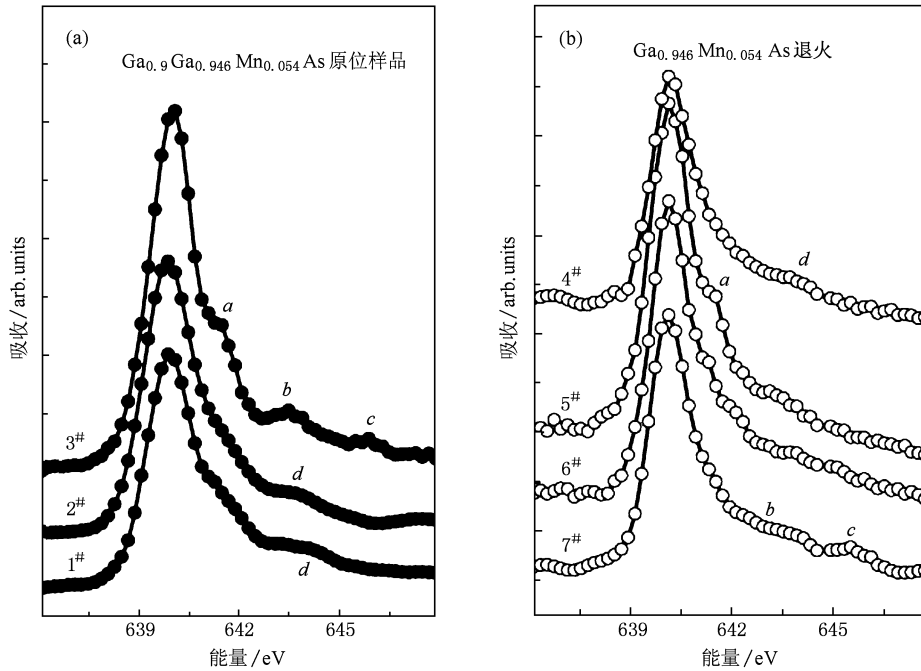


图2  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  系列样品的 Mn  $L_{\text{III}}$  边 XAS 归一化曲线 (a) 为  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  样品 1#, 2#, 3# 的 Mn  $L_{\text{III}}$  边 XAS 归一化曲线; (b) 为  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  样品 4#, 5#, 6#, 7# 的 Mn  $L_{\text{III}}$  边 XAS 归一化曲线

随生长、退火条件变化的原因.

在图 3 中给出了不同缺陷模型下的计算与实验 XAS 谱的对比. “ $\text{Mn}_{\text{Ga}}$ ”是指单纯以  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  为中心吸收原子、没有其他缺陷出现的模型,此时 XAS 计算谱中  $L_{\text{III}}$  边后出现了  $b'$ ,  $c'$  两个峰结构. “ $\text{Mn}_{\text{Ga}} + 1\text{Mn}_1$ ”是指中心原子  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  邻近有 1 个  $\text{Mn}_1$  原子出现时的模型,此时的 XAS 计算谱表明 Mn 元素的  $L_{\text{III}}$  边位置向高能侧移动了大约 1.1 eV,形成了新的吸收峰  $a'$ . “ $\text{Mn}_{\text{Ga}} + 1\text{As}_{\text{Ga}}$ ”是指在  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  中心吸收原子的次近邻中出现 1 个  $\text{As}_{\text{Ga}}$  缺陷的模型,此时 XAS 计算谱在  $L_{\text{III}}$  吸收峰右端只出现一个宽化的特征峰  $d'$ .

将图 3 中计算 XAS 曲线与图 2 中实验 XAS 谱对比,可以发现“ $\text{Mn}_{\text{Ga}}$ ”模型的  $b'$ ,  $c'$  峰与 3#, 7# 样品的实验曲线中的  $b, c$  峰符合得很好. 这说明在 LT 生长模式下,高  $T_s$  下制备的  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  晶格畸变较小, Mn 元素主要以  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  原子形式存在于  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  晶格中. 也说明在较高的低温退火温度下退火能有效地减少体系中的缺陷,提高  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  原子浓度.

对于在 3# 样品 Mn 的  $L_{\text{III}}$  吸收边高能侧出现的肩峰  $a$ ,有文献<sup>[7]</sup>简单的归结到 Mn 的氧化物上.

但是所依据的文献<sup>[16]</sup>中金属 Mn 在纯氧气氛下钝化后,只在  $a$  峰的位置处出现隆起趋势,并没有明显的峰出现,这明显与 280 °C 下生长的 3# 样品 XAS 谱的特征不符合. 除此之外,图 2(a) 中  $T_s$  由低到高变化,  $a$  峰也从无到有,逐渐增强. 考虑到所有的  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  样品都是在超高真空下制备,制备过程中没有  $\text{O}_2$  的污染,样品表面的 GaAs 保护层也可以在大气中有效保护  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  层不被氧化. 同时图 2(b) 中 5# 样品经过 150°C 退火处理后,再经酸洗去除氧化层后,仍然有  $a$  峰的出现. 综上,可以推断  $a$  峰的来源应与 Mn 的氧化物无关,而是随着制备条件的不同  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  晶格结构的改变而导致. 对比图 3 “ $\text{Mn}_{\text{Ga}} + 1\text{Mn}_1$ ”模型中, Mn 元素的  $L_{\text{III}}$  边位置向高能侧移动了大约 1.1 eV,与  $a$  峰的位置非常符合. 由此可以判定  $a$  峰的出现是由于大量的  $\text{Mn}_1$  原子在表面富集所造成的.

在我们之前的工作中<sup>[7]</sup>,报道了  $\text{Mn}_1$  缺陷在退火过程中会向样品表面析出. 而图 2(a) 中  $a$  峰的出现以及变化表明在生长过程中  $\text{Mn}_1$  同样也会向表面偏析. 在温度较低时 ( $T_s \leq 230^\circ\text{C}$ ),  $\text{Mn}_1$  原子没有足够的能量脱出晶体内部,因此在原位生长的 1#, 2#

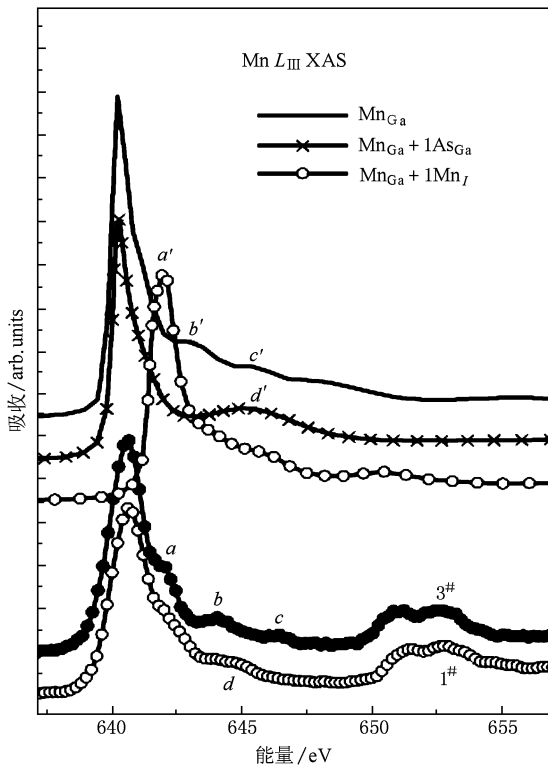


图3 Mn  $L_{III}$  边 XAS 吸收谱与  $T_s = 200, 280$  °C 原位生长的实验谱(采用 Feff8.2 程序给出的 Mn  $L_{III}$  边 XAS 吸收谱与 1<sup>#</sup>, 3<sup>#</sup> 原位生长的实验谱的对比. 其中  $Mn_{Ga}$  计算谱表示晶格中只含有 Mn 替代位原子的理想状况;  $Mn_{Ga} + 1As_{Ga}$  计算谱表示在  $Mn_{Ga}$  吸收中心原子的次近邻出现一个  $As_{Ga}$  原子;  $Mn_{Ga} + 1Mn_I$  计算谱表示在  $Mn_{Ga}$  中心原子最近邻出现一个  $Mn_I$  原子)

的  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  薄膜表面并没有发现  $Mn_I$  明显的富集;随着生长温度的提高 ( $T_s > 230$  °C),  $Mn_I$  原子的能量超过阈值开始大量的向表面析出. 也就是说, 较高  $T_s$  生长的  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  薄膜内层  $Mn_I$  浓度较低, 较低  $T_s$  下薄膜内层  $Mn_I$  浓度较高.

图 2(a) 中, 低温条件下生长的 1<sup>#</sup>, 2<sup>#</sup> 样品中  $L_{III}$  边 XAS 谱中没有观测到  $b, c$  峰的出现, 取而代之的是在  $b, c$  峰的位置附近出现了一个新的峰  $d$ , 同时也没有  $a$  峰的出现, 表明此时样品结构与  $T_s = 280$  °C 时 3<sup>#</sup> 样品大量  $Mn_I$  缺陷出现或理想状态下  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  中只有  $Mn_{Ga}$  原子出现的情况都有差异. 对比图 3 中给出的“ $Mn_{Ga} + 1As_{Ga}$ ”模型的 XAS 计算谱, 此时在 Mn 的  $L_{III}$  吸收峰的右端只出现了一个峰  $d'$ , 其位置、相对强度以及展宽都和 1<sup>#</sup> 样品实验曲线符合得很好. 这一结果强有力的证明: 在较低生长温度 ( $T_s \leq 230$  °C) 制备的样品中存在大量  $As_{Ga}$  缺陷. 这是由于低温生长会降低 As 原子的表面迁移和

脱附能. 在富 As 生长条件下, 部分过量的 As 原子会占据晶格中 Ga 的位置形成  $As_{Ga}$  缺陷. 图 2(a) 中峰  $d$  随着  $T_s$  的逐渐升高, 迅速变弱并被  $b, c$  峰取代. 这说明  $As_{Ga}$  缺陷的浓度在  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  薄膜的生长过程中随着  $T_s$  升高而迅速衰减. 在  $T_s = 280$  °C 生长的 3<sup>#</sup> 样品的 XAS 谱中已经看不出有大量  $As_{Ga}$  缺陷存在的痕迹.

图 2(b) 中, 可以发现在 150 °C 低温退火的 5<sup>#</sup> 样品曲线上也有  $a$  峰的出现. 随着退火温度的提高,  $a$  峰强度逐渐变弱, 样品 7<sup>#</sup> 中  $a$  峰已经消失. 结合之前的研究结果: 低温退火可以打破  $Mn_{Ga}-Mn_I$  反铁磁对, 使  $Mn_I$  向薄膜表面迁移<sup>[7]</sup>. 因此, 这一现象表明:  $Mn_I$  的析出与低温退火温度紧密关联. 在较低的退火温度下 (150 °C),  $Mn_I$  缺陷虽然有向表面移动的趋势, 但是没有足够的能量使得大量  $Mn_I$  从晶格内部向表面富集. 因此在酸洗过后, 在 5<sup>#</sup> 样品表面发现了  $Mn_I$  的存在. 随着退火温度的提高,  $Mn_I$  原子得到足够的能量离开原位向表面富集, 使得表面  $Mn_I$  原子浓度提高、内层浓度降低. 经过酸洗去除表面层后, XAS 测量到的  $Mn_I$  原子信号必然降低, 所以在 7<sup>#</sup> 样品的表层没有发现  $Mn_I$  的存在. 这一结果也与文献[17]和我们之前的工作<sup>[7]</sup> 符合. 在 250 °C 退火后的 7<sup>#</sup> 样品 XAS 曲线上没有  $a$  峰的出现, 却有明显的  $b, c$  双峰结构, 与图 3 中单纯只有  $Mn_{Ga}$  出现的理论曲线非常符合. 这说明此时样品中  $As_{Ga}, Mn_I$  等双施主杂质浓度被降到最低,  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  层晶格结构非常完好.

进一步与图 3 中的计算 XAS 谱对比, 在  $T_s = 230$  °C 原位生长的  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  薄膜 4<sup>#</sup> 中明显有大量的  $As_{Ga}$  缺陷原子存在. 而在 150 °C 低温退火之后, 只能观测到  $Mn_{Ga}$  原子和  $Mn_I$  缺陷叠加的信号. 这表明 150 °C 退火 1 h 后, XAS 信号所来源的近表面区域中, 表层  $As_{Ga}$  缺陷已从晶格脱附, 此时  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  晶格表层区域中  $As_{Ga}$  缺陷的影响被极大的削弱. 这点可以从以下方面得到辅证: 退火后的样品  $L_{III}$  吸收峰的强度有明显增强. 归一化后 XAS 中  $L_{III}$  峰的强度和  $Ga_{0.946}Mn_{0.054}As$  中  $Mn_{Ga}$  原子浓度直接关联<sup>[7]</sup>, 在样品的 Mn 掺杂浓度恒定的情况下, 这必然是退火使部分的  $Mn_I$  原子离开间隙位置, 占据  $As_{Ga}$  缺陷脱附后留下的 Ga 空位形成了新的  $Mn_{Ga}$  原子, 从而提高了  $Mn_{Ga}$  原子浓度, 增强了  $L_{III}$  吸收峰的强度.

综合上述各样品的结构信息, 并结合图 1, 可以

发现原位生长的系列样品中:200 °C 低温生长的 1<sup>#</sup> 样品中存在大量的 As<sub>Ga</sub> 缺陷,因此极大的降低了体系的载流子浓度,使得 1<sup>#</sup> 样品在低温下表现出绝缘体行为. 随着生长温度的提高,2<sup>#</sup>,3<sup>#</sup> 样品中 As<sub>Ga</sub> 缺陷浓度被大幅降低,体系载流子浓度得以提高降低了电阻率,表现出金属导电行为. 分析结果还表明,较高  $T_s$  生长的样品内层 Mn<sub>I</sub> 浓度较低,较低  $T_s$  下生长的样品内层 Mn<sub>I</sub> 浓度较高. 另一方面,样品内层的 Mn<sub>I</sub> 可以与 Mn<sub>Ga</sub> 原子形成反铁磁 Mn<sub>Ga</sub>-Mn<sub>I</sub> 原子对,降低体系的铁磁性<sup>[7]</sup>. 这可以很好的解释图 1 中 280 °C 制备的 3<sup>#</sup> 样品的  $T_c$  (~ 70 K) 略高于 2<sup>#</sup> 样品的  $T_c$  (~ 67 K) 的现象. 对于低温退火系列的样品,由于 150 °C 低温退火不能使大量内层 Mn<sub>I</sub> 原子迁移到表面,As<sub>Ga</sub> 原子的脱附也仅仅局限于样品的表面,因此 5<sup>#</sup> 样品  $\rho$ - $T$  曲线变化非常小, $T_c$  和电阻率几乎没有变化. 随着退火温度的提高,Mn<sub>I</sub> 原子得到足够的能量离开原位向表面富集,使得表面 Mn<sub>I</sub> 原子浓度提高、内层浓度降低,6<sup>#</sup>,7<sup>#</sup> 样品中载流子

浓度大幅增加,相应的图 1 中它们的电阻率大幅下降. 同时由于体系的 Mn<sub>Ga</sub>-Mn<sub>I</sub> 反铁磁对被打破<sup>[7]</sup>,6<sup>#</sup>,7<sup>#</sup> 样品的  $T_c$  也大幅上升. 由于 7<sup>#</sup> 样品的 XAS 曲线表明此时 As<sub>Ga</sub>,Mn<sub>I</sub> 等双施主杂质浓度被降到最低,因此样品的  $T_c$  也达到最高值 133.70 K.

#### 4. 结 论

综上所述,LT-MBE 制备的 Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As 材料的 XAS 谱分析结果表明:在较低  $T_s$  条件下 Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As 中以 As<sub>Ga</sub> 缺陷为主;较高  $T_s$  条件下,样品中缺陷主要是 Mn<sub>I</sub> 原子. 在较高温度(250 °C)下退火,可以驱使样品内部 Mn<sub>I</sub> 缺陷原子向表面大量富集. 从而降低材料内部 Mn<sub>I</sub> 缺陷浓度,减少反铁磁相,Ga<sub>0.946</sub>Mn<sub>0.054</sub>As 样品此时获得 130 K 以上的最高  $T_c$ . 同时,退火可以使得 As<sub>Ga</sub> 缺陷脱附,并驱动周围的 Mn<sub>I</sub> 原子填补 As<sub>Ga</sub> 的空位,提高 Mn<sub>Ga</sub> 原子浓度.

- [1] Ohno H, Shen A, Matsukura F, Oiwa A, Endo A, Kataumoto S, Iye Y 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 363
- [2] Dietl T 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 07D111-1
- [3] Ohno H 1998 *Science* **281** 951
- [4] Valenzuela S O, Tinkham M, Tinkham M 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 09B103-1
- [5] Van't Erve O M J, Hanbicki A T, Holub M, Li C H, Awo-Affouda C, Thompson P E, Jonker B T 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 212109-1
- [6] Nazmul Ahsan M, Sugahara S, Tanaka M 2003 *Phys. Rev. B* **67** 241308-1
- [7] Ji C J, Cao X C, Han Q F, Qiu K, Zhong F, Li X H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 232501
- [8] Ji C J, He H T, Cao X C, Qiu K, Zhong F, Li X H, Han Q F, Xu F Q, Wang J N, Wang Y Q 2007 *Europhys. Lett.* **78** 57006
- [9] Luo X D, Ji C J, Wang Y Q, Wang J N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5277 (in Chinese) [罗向东、姬长健、王玉琦、王建农 2008 物理学报 **57** 5277]
- [10] Liu X D, Wang W Z, Gao R X, Zhao J H, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3857 (in Chinese) [刘晓东、王玮竹、高瑞鑫、赵建华、文锦辉、林位株、赖天树 2008 物理学报 **57** 3857]
- [11] Liu G B, Liu B G 2009 *Chin. Phys. B* **18** 5047
- [12] Zhong Y J, Cheng S C, Su P, Gong M, Shi R Y, Cao X C, Shi T F 2009 *The Journal of Light Scattering* **21** 3 (in Chinese) [钟玉杰、程顺昌、苏平、龚敏、石瑞英、曹先存、史同飞 2009 光散射学报 **21** 3]
- [13] He H C, Yang L, Ge W K, Wang J N, Dai X, Wang Y Q 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 162506
- [14] Sadowski J, Domagala J Z 2004 *Phys. Rev. B* **69** 075206-1
- [15] Ankudinov A L, Ravel B, Rehr J J, Conradson S D 1998 *Phys. Rev. B* **58** 7565
- [16] Yonamoto Y, Yokoyama T, Amemiya K, Matsumura D, Ohta T 2001 *Phys. Rev. B* **63** 214406-1
- [17] Yu K M, Walukiewicz W, Wojtowicz T, Denlinger J 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 042102

## The study of defects in $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$ by X-ray absorption spectra\*

Qiao Yuan-Yuan Xiao Zheng-Guo Cao Xian-Cun Guo Hao-Min Shi Tong-Fei<sup>†</sup> Wang Yu-Qi

(Key Laboratory of Materials Physics, Institute of Solid State Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 4 March 2010; revised manuscript received 12 April 2010)

### Abstract

The influence of the major compensating defects As antisites ( $\text{As}_{\text{Ga}}$ ) and Mn interstitials ( $\text{Mn}_{\text{I}}$ ) in the  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  diluted magnetic semiconductor (DMS) were studied by X-ray absorption spectra (XAS). The experimental results show that the defects in  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  grown at lower temperature ( $T_s = 200^\circ\text{C}$ ) is mainly  $\text{As}_{\text{Ga}}$ , but at  $T_s > 230^\circ\text{C}$   $\text{Mn}_{\text{I}}$  is the major defects. On the other hand, a higher LT-annealing temperature ( $250^\circ\text{C}$ ) can remove  $\text{Mn}_{\text{I}}$  out of the  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  lattice, and the highest Curie temperature ( $T_c = 130\text{ K}$ ) is reached. Moreover, it is indicated that the LT-annealing process can increase the number of  $\text{Mn}_{\text{Ga}}$  atoms by reducing the concentration of  $\text{As}_{\text{Ga}}$  defects and driving  $\text{Mn}_{\text{I}}$  defects to fill up the holes left by  $\text{As}_{\text{Ga}}$ .

**Keywords:**  $\text{Ga}_{0.946}\text{Mn}_{0.054}\text{As}$  diluted magnetic semiconductor, X-ray absorption spectra, As antisites, Mn interstitials

**PACS:** 61.05. c<sup>-</sup>, 61.05. cj, 74.62. Dh

---

\* Project supported by the Knowledge Innovation Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. 084N541121).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: tongfeishi@gmail.com