研究论文 **DOI:** 10.15541/jim20240241

高质量铟掺杂氧化镓单晶浮区法生长研究

李宪珂, 张超逸, 黄 林, 孙 鹏, 刘 波, 徐 军, 唐慧丽

(同济大学 物理科学与工程学院, 先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092)

摘 要: β-Ga_2O_3 是一种新型超宽带隙半导体材料, 性能出色, 在高功率电子器件和日盲深紫外探测器等领域有着巨大的应用前景。通过掺入 In^{3+}离子, 可以调节 β-Ga_2O_3 的带隙宽度和光学性质, 从而进一步拓展其应用范围。本研究以高纯度 Ga_2O_3、In_2O_3 为原料, 采用光学浮区法制备了 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 单晶。生长速度为 5 mm/h 时, 晶体出现失透现象, 在光学显微镜下观察, 发现晶体中含有大量气泡缺陷, 这些缺陷主要呈条状和球状, 其中条状气泡的长度在 50~200 μm 范围内, 沿[010]晶体生长方向延伸。通过扫描电子显微镜观察缺陷形貌和元素分布, 发现气泡周围的元素分布均匀, 无杂质元素聚集。结果表明, 缺陷的形成与 In_2O_3 高温分解有关, 产生的气体未及时排出, 随熔体结晶进入晶体内部形成气泡。优化晶体生长工艺解决了气泡缺陷引起的晶体失透问题, 得到的透明 β-Ga_2O_3:9%In 单晶摇摆曲线半峰宽可达 44 arcsec, 晶体的结晶质量显著提升。本研究为生长高质量 β-Ga_2O_3:In 体块单晶提供了解决方案, 为深入了解其光电性能奠定了基础。

关 键 词: 铟掺杂氧化镓; 光学浮区法; 晶体生长; 气泡缺陷

中图分类号: TQ174 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-324X(2024)12-1384-07

High-quality Indium-doped Gallium Oxide Single Crystal Growth by Floating Zone Method

LI Xianke, ZHANG Chaoyi, HUANG Lin, SUN Peng, LIU Bo, XU Jun, TANG Huili

(MOE Key Laboratory of Advanced Micro-Structured Materials, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: β-Ga_2O_3 is a novel wide bandgap semiconductor material with excellent performance, which has great potential applications in high power electronic devices and deep ultraviolet detectors. By doping with In^{3+} ions, the bandgap and optical properties of β-Ga_2O_3 can be adjusted, further expanding its application range. In this study, β-Ga_2O_3:9%In and β-Ga_2O_3:15%In single crystals are prepared using high-purity Ga_2O_3 and In_2O_3 as raw materials by the optical floating zone method. When the growth rate is 5 mm/h, the crystals exhibit a phenomenon of transparency loss. Observation under an optical microscope reveals the presence of numerous bubble defects in the crystals, which mainly appearing strip-like and spherical shape. Length of the strip-like bubbles ranges from 50 to 200 μm and extends along the [010] crystal direction. Observation under a scanning electron microscope reveals uniform elemental distribution around the bubbles, with no evidence of impurity element accumulation. These

收稿日期: 2024-05-13; **收到修改稿日期:** 2024-05-29; **网络出版日期:** 2024-06-24

基金项目: 国家自然科学基金(12375181); 上海市科技计划项目(23511102302); 中央高校基本科研业务费专项基金(22120220626)
National Natural Science Foundation of China (12375181); Shanghai Science and Technology Plan Project (23511102302); Fundamental Research Funds for the Central Universities (22120220626)

作者简介: 李宪珂(1999–), 男, 硕士研究生. E-mail: va142857@163.com
LI Xianke (1999–), male, Master candidate. E-mail: va142857@163.com

通信作者: 唐慧丽, 教授. E-mail: tanghl@tongji.edu.cn
TANG Huili, professor. E-mail: tanghl@tongji.edu.cn

findings suggest that the formation of defects is related to the high-temperature decomposition of In_2O_3, where the generated gas is not timely discharged, entering the crystal interior with the crystallization of the melt to form bubbles. After optimizing the crystal growth process, the problem of opacity caused by bubble defects is effectively resolved, resulting in transparent β-Ga_2O_3:9%In single crystal with a full width at half maximum of the rocking curve as low as 44 arcsec and significantly improved crystalline quality. This study provides a solution for growing high-quality β-Ga_2O_3:In bulk single crystal, laying a foundation for a deeper understanding of its optoelectronic properties.

Key words: indium-doped gallium oxide; optical floating zone method; crystal growth; bubble defect

半导体是在常温下导电能力介于导体与绝缘体之间的材料。随着科学技术的不断进步, 人们对各种电子器件的要求日益提高, 这促使超宽禁带半导体材料逐渐受到关注, 其代表性材料之一就是氧化镓(Ga_2O_3)。β-Ga_2O_3 具有 4.8 eV 的超宽带隙, 属于单斜晶系 C2/m 群, 低对称性的结构导致 β-Ga_2O_3 在电学、光学、热学等方面表现出各向异性的特点, 同时也使得晶体较难生长[1-5]。常用于 β-Ga_2O_3 晶体生长的方法有光学浮区法(Optical Float Zone, OFZ)、提拉法(Czochralski, CZ)、坩埚下降法(又名垂直布里奇曼法, Vertical Bridgman Method, VB)、导模法(Edge-defined Film-fed Growth, EFG)等[6-9]。光学浮区法是一种无坩埚晶体生长方法, 虽然使用该方法生长得到的 β-Ga_2O_3 的晶体尺寸较小, 但操作过程相对简单, 生长周期短, 并且晶体质量高, 坩埚带来的杂质污染少, 适用于新型掺杂方案的探索研究[10-12]。

氧化铟(In_2O_3)同样也是一种宽带隙半导体材料, 通过与 In^{3+}合金化来调整带隙, 可以使 β-Ga_2O_3 的吸收边红移, 并提高电学性能, 为波长可调谐光电二极管和光探测器提供新的可能[13-17]。In_2O_3 和 Ga_2O_3 均是具有高熔点的挥发性氧化物, 并且晶体结构不同, 这导致 β-Ga_2O_3:In 体块单晶的生长及高浓度掺杂极其困难[18-19]。Oshima 等[20]在 β-Ga_2O_3 缓冲层上生长了 β-Ga_2O_3:In 薄膜, 缓冲层位于 Al_2O_3(0001)衬底上, 薄膜在掺杂浓度 35%以下时保持了单斜晶系结构; 但随着 In^{3+}含量增加, 晶体质量不断降低, 使得掺杂浓度大于 35%的薄膜没有确定的晶相。Zhang 等[21-22]制备了不同 In 掺杂浓度的 β-Ga_2O_3:In 薄膜, 随着 In^{3+}浓度增加, β-Ga_2O_3:In 禁带宽度从 5.1 eV 减小至 3.8 eV。1996 年, Vasyltsiv 等[23]报道了 β-Ga_2O_3:In 体块单晶的光吸收性质, 之后关于体块单晶的研究便鲜有报道。2017 年, Tang 等[18,24]使用光学浮区法生长了 β-Ga_2O_3:5%In、β-Ga_2O_3:7%In 晶体, 初步研究了铟离子掺杂对氧化镓晶体光学和电学性能的影响。与薄膜相比, 体块单晶通常具有更优异的热稳定性和机械强度, 适用范围更广, 研究体块单晶更有助于全面理解其发光机制和电学性能, 因此 β-Ga_2O_3:In 体块单晶具有重要的研究价值[25-26]。本研究采用光学浮区法生长了铟掺杂氧化镓晶体, 分析了晶体失透的原因, 并通过改进生长工艺获得了高质量的 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 晶体。

1　实验方法

β-Ga_2O_3 晶体具有 4.8 eV 的超宽禁带, 能够容纳多种缺陷能级, 其中晶体内常见的杂质包括 Si、Sn、Ge、Fe 等元素, 这些杂质所形成的缺陷能级显著影响 β-Ga_2O_3 晶体的光学和电学性能[27-30]。因此, 为减少杂质对晶体的污染, 本课题组选择纯度为 99.999%的氧化镓粉末和纯度为 99.99%的氧化铟粉末作为原料。

根据化学计量比称取高纯度的氧化镓和氧化铟粉末, 将这两种原料放入氧化铝研钵中研磨 30 min 以确保混合均匀。随后, 将混合均匀的原料放入马弗炉中进行预烧结, 设置程序使温度在 15 h 内升至 1200 ℃, 然后保温 10 h。预烧结后取出原料, 重新研磨成粉末状, 然后通过漏斗将混合均匀的原料灌注到清洁的长条形橡胶套中, 捏实后用玻璃板滚压成直径均匀的圆柱体。接下来, 将氧化镓原料棒放入冷等静压机中, 施加 150~200 MPa 的压力压制 20 min, 取出料棒后剪开橡胶套, 得到致密的圆柱状氧化镓料棒。将料棒放入马弗炉中进行二次烧结, 设置温度在 20 h 内升至 1500 ℃, 然后保温 20 h, 使原料棒陶瓷化。降温结束后即可获得陶瓷化的铟掺杂氧化镓原料棒。晶体生长阶段使用 Quantum Design 公司的 IRF01-001-00 红外光学浮区炉, 整个过程皆在流动空气气氛中进行, 晶体生长方向为[010]晶向。

本研究使用的 X 射线衍射仪(XRD)的型号为日本理学 Rigaku Ultima IV。高分辨 X 射线衍射仪的

型号为 Bruker D8 Discover, 测试面为(400)晶面, 2θ=30.095°。使用 Varian 公司制造的 Cary 5000 UV/VIS/NIR 光谱仪测试吸收光谱, 测试范围为 200~2500 nm, 步长为 1 nm。使用 ZEISS GeminiSEM 300 扫描电子显微镜(SEM)测试样品形貌, 使用牛津 Xplore 能量色散谱仪(EDS)测试元素含量及分布。

2 结果与讨论

2.1 生长晶体与物相分析

使用晶体生长速度为 5 mm/h、籽晶与料棒对转速度为 13 r/min 的工艺进行铟掺杂氧化镓晶体的初步生长, 图 1(a)为得到的失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体。为了改善晶体的透明度, 对生长工艺进行了改进。将晶体的生长速度降低到 2.5 mm/h, 籽晶与料棒的对转速度增加到 15 r/min, 图 1(b, c)为经过优化生长工艺后得到的透明 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 晶体。三个晶体样品均呈现淡蓝色, 其中失透晶体中存在大量气泡缺陷, 这严重影响了晶体的结晶质量和性能。气泡的形成与 In_2O_3 在高温下的分解挥发有关[19]:

$$In_2O_3(s) \rightleftharpoons 2In(s,l,g) + 3/2O_2(s) \quad (1)$$

$$In_2O_3(s) \rightleftharpoons InO(g) + In(s,l,g) + O_2(g) \quad (2)$$

$$In(s,l) \rightleftharpoons In(g) \quad (3)$$

式中, s 为固体, l 为液体, g 为气体。在晶体生长速度较快的情况下, 由于产生的气体尚未完全排出, 这些气体随着熔体的结晶而保留在晶体中, 进而产生了气泡缺陷, 导致晶体失透。

图 2(a)为失透 β-Ga_2O_3:9%In、透明 β-Ga_2O_3:9%In、透明 β-Ga_2O_3:15%In 晶体的 XRD 图谱, 其衍射峰位与 β-Ga_2O_3 标准卡片(JCPDS No.41-1103)完全吻合, 表明三种晶体样品仍然保持单斜晶系(空间群 C2/m)β 相, 掺入 In^{3+}离子并没有产生杂相。由于 In^{3+}离子的半径(0.081 nm, 配位数 6)大于 Ga^{3+}离子的半径(0.062 nm, 配位数 6), 当 In^{3+}离子进入晶格时, 会导致晶格常数增大。根据布拉格方程(式(4)), 晶格常数增大会使得晶面间距增大, 衍射峰向小角度方向移动。

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (4)$$

式中, d 为晶面间距, θ 为入射角, n 为衍射级数, λ 为入射波长。图 2(b)为晶体样品(400)晶面的衍射峰, 图中虚线为标准卡片 2θ=30.095°的(400)晶面峰位。与之相比, 三种样品的峰位均存在一定程度的偏移, 其中失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体偏移最大, 衍射峰位于 29.97°, 这与其 In^{3+}离子的实际掺杂量最高有关。另外两个样品的衍射峰均位于 30.01°, 说明 In^{3+}离子成功取代了 Ga^{3+}离子进入 β-Ga_2O_3 晶格中。

2.2 缺陷分析

2.2.1 失透样品缺陷形貌

对失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体的(400)晶面抛光样品进行光学显微镜观察, 以探究晶体失透的原因。图 3 为失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体的具体形貌特征。结果显示, 在失透晶体内部存在大量气泡缺陷, 这些气泡的形状不规则, 其中条状气泡的长度在 50~200 μm 之间, 大多沿[010]晶向延伸, 另伴有较小的球状气泡缺陷。

为了探究气泡缺陷形成的原因, 对生长得到的晶体样品进行 SEM 和 EDS 测试, 结果见图 4。在图 4(a)中, 不规则的坑洞为球状气泡缺陷的截面, 图 4(b~e)为各元素分布和含量, 可以观察到, Ga、O、In 三种元素的分布相对均匀, 没有明显的富集现象, 并且在缺陷周围未发现其他杂质元素。这表明该缺陷的形成与杂质无关, 而是晶体生长过程中 In_2O_3 高温分解产生的气体未能及时从熔体中排出所致。

2.2.2 透明样品表面形貌

通过适当提高籽晶与料棒的对转速度, 并降低晶体的生长速度至 2.5 mm/h, 成功消除了这些气泡缺陷。经过工艺改进后, 生长出的透明 β-Ga_2O_3:9%In 样品在光学显微镜下的形貌如图 5 所示, 通过观察晶体不同部位表面和内部形貌, 未发现与失透晶体样品中类似的气泡缺陷, 这表明透明晶体的结晶质量较高。

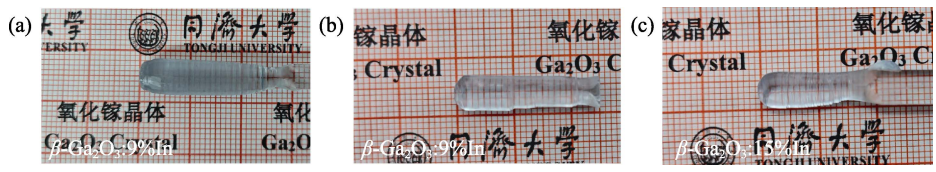

图 1 β-Ga_2O_3:In 晶体照片

Fig. 1 Images of as-grown β-Ga_2O_3:In crystals

(a) Opaque β-Ga_2O_3:9%In; (b) Transparent β-Ga_2O_3:9%In; (c) Transparent β-Ga_2O_3:15%In

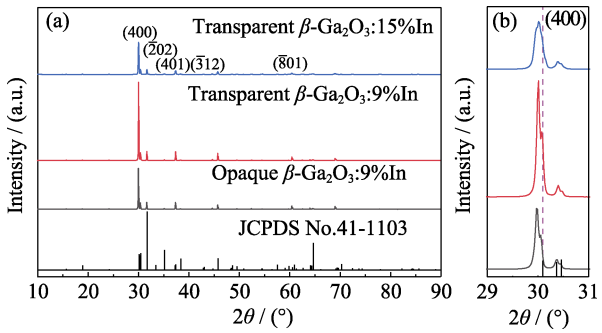

图 2　β-Ga_2O_3: In 晶体粉末的 XRD 图谱

Fig. 2　XRD patterns of β-Ga_2O_3:In crystal powders

(a) XRD patterns in the range of 2θ=10°–90°; (b) XRD diffraction peak of (400) crystal surface at 2θ=30.095°

图6(a)为优化生长工艺后得到的透明β-Ga_2O_3:9%In晶体的表面 SEM 照片, 可以清晰地看到样品表面没有气泡等缺陷。图 6(b~e)展示了样品的 EDS 测试结果, 图 6(b)插图中列出了 Ga、O、In 元素的具体含量。可以看到, 各元素分布较为均匀, 与失透β-Ga_2O_3:9%In 晶体相比, In 元素的测试强度降低, 质量分数从 5.62%降至 1.18%, 相应的原子分数也从 1.94%降至 0.41%。这表明在相同的配料浓度下, 生长速度较慢的晶体中 In 的实际掺杂量更低, 这一现象与 In_2O_3 的分解挥发有关, 慢速生长时熔体暴露在空气中的时间更长, 导致分解挥发现象更严重。

为了确定透明 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 晶体样品中 In^{3+}离子的实际掺杂浓度, 将生长的部分晶体样品研磨成粉末后进行电感耦合等离子体原子发射光谱(ICP-AES)测试, 结果见表 1。可以看到,

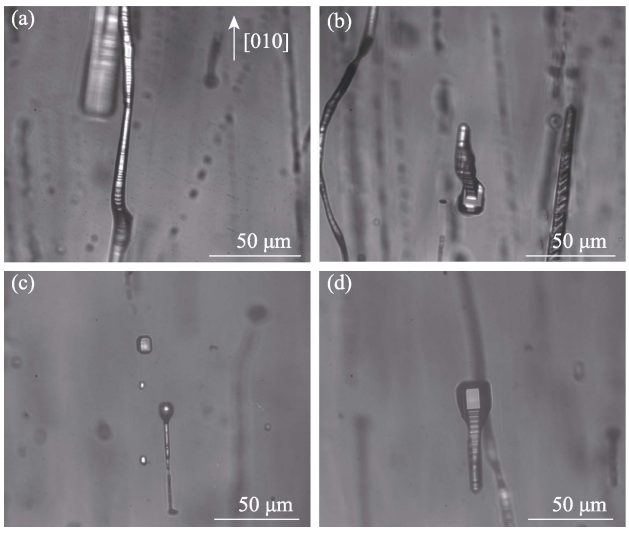

图 3　光学显微镜下失透 β-Ga_2O_3:9%In 气泡缺陷形貌

Fig. 3　Optical microscope morphologies of bubble defects in opaque β-Ga_2O_3:9%In

(a) Long strip bubble; (b) Short strip bubble; (c) Spherical bubble; (d) Short strip bubble

对于慢速生长得到的 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 透明晶体, In^{3+}离子的实际含量明显低于配料浓度, 其实际质量分数分别为 1.76%和 1.87%, 表明在高温下 In_2O_3 发生强烈的分解挥发, 导致晶体中 In^{3+}离子的实际掺杂浓度大幅降低。

2.3　吸收光谱

图 7(a)为 UID β-Ga_2O_3、失透 β-Ga_2O_3:9%In、透明 β-Ga_2O_3:9%In、透明 β-Ga_2O_3:15%In 晶体的吸收光谱, 其中 UID β-Ga_2O_3 为使用光学浮区法在流

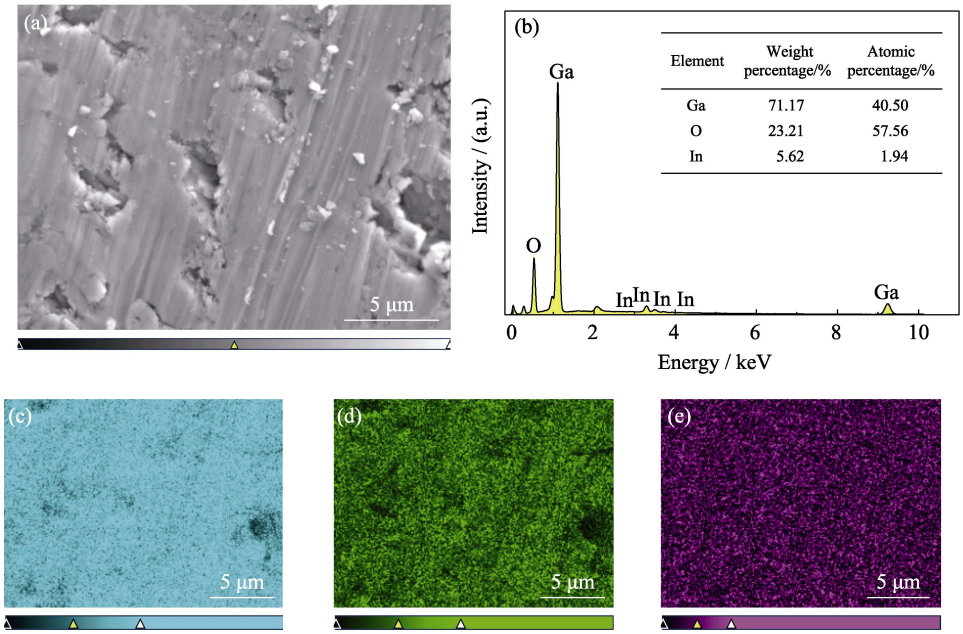

图 4　失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体 SEM 照片、EDS 能谱和对应的元素分布

Fig. 4　SEM image, EDS pattern and corresponding elemental mappings of the opaque β-Ga_2O_3:9%In crystal

(a) SEM image; (b) EDS pattern and elemental contents; (c-e) Elemental mappings of (c) Ga, (d) O and (e) In

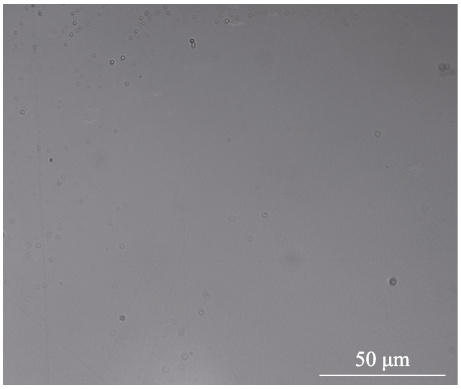

图 5 光学显微镜下透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体形貌

Fig. 5 Transparent β-Ga_2O_3:9%In crystal morphology under optical microscope

动空气气氛下生长得到的非故意掺杂样品。四种晶体样品的吸收截止边均位于 260 nm 左右，失透 β-Ga_2O_3:9%In 样品中气泡折射导致出射光强急剧降低，吸收系数在 260~2500 nm 范围内明显大于另外三个样品。透明 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 晶体的吸收系数在波长小于 1000 nm 时与 UID β-Ga_2O_3 接近，而在近红外波段略有增加，这是载流子浓度增加导致等离子体吸收增强的结果。

图 7(b)是 UID β-Ga_2O_3、透明 β-Ga_2O_3:9%In 和透明 β-Ga_2O_3:15%In 晶体由吸收光谱拟合计算的光学带隙，分别为 4.76、4.72 和 4.71 eV。由于透明 β-Ga_2O_3:9%In 和透明 β-Ga_2O_3:15%In 晶体中 In^{3+}离子的实际掺杂浓度相近，它们的光学带隙相差不大，但都小于 UID β-Ga_2O_3 晶体，表明掺入 In^{3+}离子会降低 β-Ga_2O_3 的禁带宽度，降低幅度与晶体中 In^{3+}离子的实际掺杂浓度有关。载流子浓度上升的原因可能是掺入 In^{3+}离子之后，带隙减小，使得导带最小值的能量降低，禁带中的浅施主能级更接近导带，从而更容易发生电离生成自由电子。

2.4 晶体结晶质量表征

为验证晶体的结晶质量，对晶体进行高分辨率 XRD 测试。图 8(a, b)分别为失透 β-Ga_2O_3:9%In 晶体

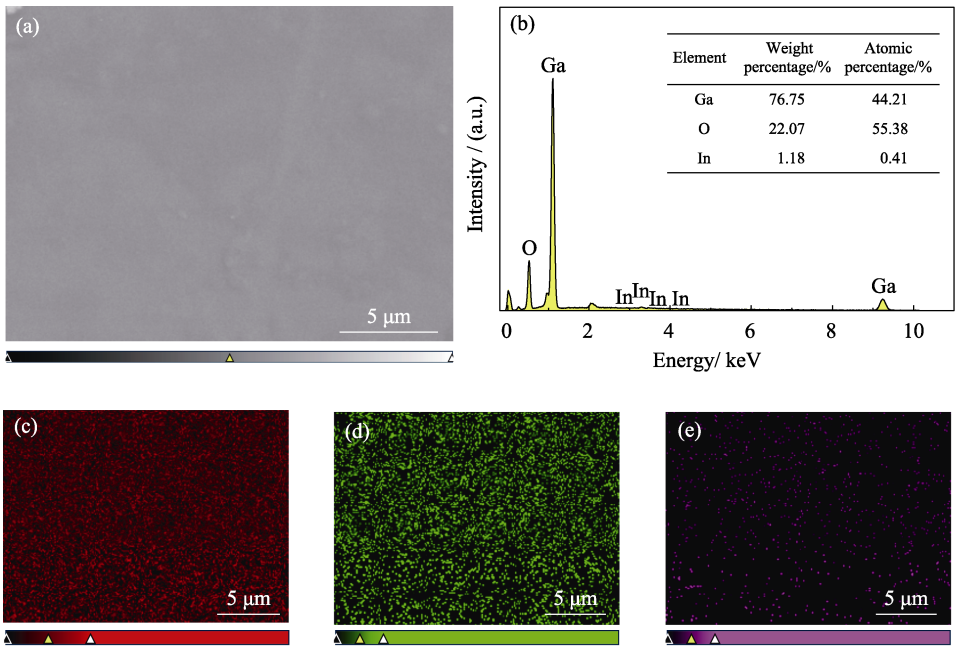

图 6 透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体 SEM 照片、EDS 能谱和对应的元素分布

Fig. 6 SEM image, EDS pattern and corresponding elemental mappings of transparent β-Ga_2O_3:9%In crystal

(a) SEM image; (b) EDS pattern and elemental contents; (c-e) Elemental mappings of (c) Ga, (d) O and (e) In

表 1 透明 β-Ga_2O_3:9%In、β-Ga_2O_3:15%In 晶体的 ICP-AES 测试结果(%, in mass)

Table 1 ICP-AES testing of transparent β-Ga_2O_3:9%In and β-Ga_2O_3:15%In crystals (%, in mass)

Element	β-Ga_2O_3:9%In	β-Ga_2O_3:15%In
In	1.76	1.87
Si	0.01	0.03
Al	0.01	0.01
Fe	0.01	0
Mg	0.02	0.02

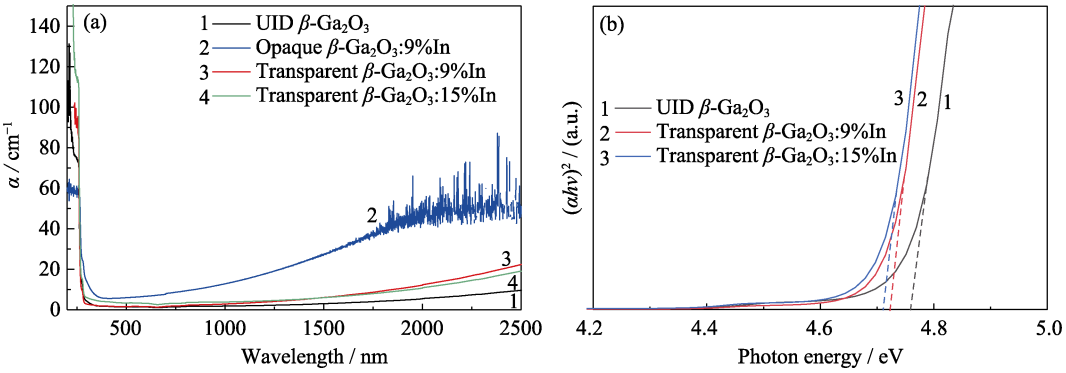

图 7　UID β-Ga_2O_3 和 β-Ga_2O_3:In 晶体的吸收光谱和光学带隙

Fig. 7　Absorption spectra and optical bandgaps of UID β-Ga_2O_3 and β-Ga_2O_3:In crystals

(a) Absorption spectra of UID β-Ga_2O_3, opaque β-Ga_2O_3:9%In, transparent β-Ga_2O_3:9%In and transparent β-Ga_2O_3:15%In crystals; (b) Optical bandgap fitting of UID β-Ga_2O_3, transparent β-Ga_2O_3:9%In and transparent β-Ga_2O_3:15%In crystals

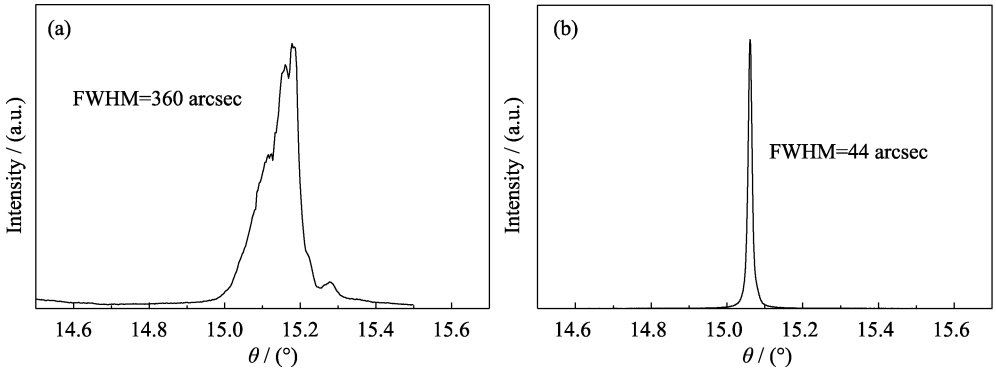

图 8　失透 β-Ga_2O_3:9%In 和透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体摇摆曲线

Fig. 8　Rocking curves of (a) opaque β-Ga_2O_3:9%In and (b) transparent β-Ga_2O_3:9%In crystals

和透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体(400)晶面的测试结果, 拟合计算出的摇摆曲线半峰宽(FWHM)可以反映氧化镓晶体的结晶质量。可以看到, 失透样品的衍射峰半峰宽为 360 arcsec, 且衍射峰发生劈裂, 结晶质量较差。相反, 对于慢速生长的透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体样品, 其衍射峰半峰宽为 44 arcsec, 峰形高度对称、无劈裂, 结晶质量良好, 无亚晶界、小角晶界, 说明适当提高籽晶与料棒的对转速度, 同时降低晶体的生长速度, 可以有效解决气泡导致的晶体失透问题, 获得高质量的 β-Ga_2O_3:In 晶体。

3　结论

本研究采用光学浮区法生长了不同浓度铟掺杂氧化镓晶体。在生长速度为 5 mm/h、籽晶与料棒对转速度为 13 r/min 时, 得到的 β-Ga_2O_3:9%In 晶体存在大量缺陷, 主要为条状和球状的气泡, 其中条状气泡沿[010]晶体生长方向延伸, 长度在 50~200 μm 范围内。缺陷周围未观察到杂质元素富集, 这表明气泡的形成与 In_2O_3 在高温下的分解挥发有关。当生长速度较快时, 分解产生的气体无法及时从熔体中排出, 进而随熔体结晶产生气泡缺陷。通过适当提高籽晶与料棒的对转速度至 15 r/min, 并将晶体生长速度降低至 2.5 mm/h, 成功消除气泡缺陷, 获得了高质量的 β-Ga_2O_3:9%In 和 β-Ga_2O_3:15%In 透明晶体。透明 β-Ga_2O_3:9%In 晶体的摇摆曲线半峰宽可达 44 arcsec, 吸收光谱显示晶体的近红外吸收增强, 这与 In^{3+}离子掺杂提高了 β-Ga_2O_3 的载流子浓度有关。本研究通过光学浮区法成功实现了高质量铟掺杂氧化镓晶体的生长, 解决了因掺入 In^{3+}离子而导致的晶体失透问题, 对 β-Ga_2O_3:In 体块单晶在电子器件中的应用具有重要意义。

参考文献:

[1] ZHANG J, LI B, XIA C, *et al*. Growth and spectral characterization of β-Ga_2O_3 single crystals. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 2006, **67(12):** 2448.

[2] TIPPINS H H. Optical absorption and photoconductivity in the band edge of β-Ga_2O_3. *Physical Review*, 1965, **140(1A):** A316.

[3] MATSUMOTO T, AOKI M, KINOSHITA A, *et al*. Absorption and reflection of vapor grown single crystal platelets of β-Ga_2O_3. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1974, **13(10):** 1578.

[4] RICCI F, BOSCHI F, BARALDI A, *et al*. Theoretical and experimental investigation of optical absorption anisotropy in β-Ga_2O_3. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2016, **28(22):** 224005.
[5] ONUMA T, SAITO S, SASAKI K, *et al*. Valence band ordering in β-Ga_2O_3 studied by polarized transmittance and reflectance spectroscopy. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2015, **54(11):** 112601.
[6] HE N, TANG H, LIU B, *et al*. Ultra-fast scintillation properties of β-Ga_2O_3 single crystals grown by floating zone method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2018, **888:** 9.
[7] GALAZKA Z, GANSCHOW S, SEYIDOV P, *et al*. Two inch diameter, highly conducting bulk β-Ga_2O_3 single crystals grown by the Czochralski method. *Applied Physics Letters*, 2022, **120(15):** 152101.
[8] UEDA Y, IGARASHI T, KOSHI K, *et al*. Two-inch Fe-doped β-Ga_2O_3 (010) substrates prepared using vertical bridgman method. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2023, **62:** SF1006.
[9] TANG H, HE N, ZHANG H, *et al*. Inhibition of volatilization and polycrystalline cracking, and the optical properties of β-Ga_2O_3 grown by the EFG method. *CrystEngComm*, 2020, **22(5):** 924.
[10] LI Z, CHEN J, TANG H, *et al*. Band gap engineering in β-Ga_2O_3 for a high-performance X-ray detector. *ACS Applied Electronic Materials*, 2021, **3(10):** 4630.
[11] ZHANG C, TANG H, LI J, *et al*. Boltzmann thermometer with broadband emission in Mn^{4+}-doped β-Ga_2O_3 crystals. *Journal of Luminescence*, 2024, **267:** 120334.
[12] XIAO H, SHAO G, SAI Q, *et al*. Wide Bandgap engineering of β-$(Al, Ga)_2O_3$ mixed crystals. *Journal of Inorganic Materials*, 2016, **31(11):** 1258.
[13] KPKUBUN Y, ABE T, NAKAGOMI S. Sol-Gel prepared $(Ga_{1-x}In_x)_2O_3$ thin films for solar-blind ultraviolet photodetectors. *Physica Status Solidi (a)*, 2010, **207(7):** 1741.
[14] SEACAT S, LYONS J L, PEELAERS H. Properties of orthorhombic Ga_2O_3 alloyed with In_2O_3 and Al_2O_3. *Applied Physics Letters*, 2021, **119(4):** 042104.
[15] SHAIK E B, KAMAL C S, SRINIVASU K, *et al*. Optical insights of indium-doped β-Ga_2O_3 nanoparticles and its luminescence mechanism. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2020, **31(8):** 6185.
[16] LIN T, XIE C, YANG S, *et al*. Investigation on the bandgap-adjustable $(Ga_{1-x}In_x)_2O_3$ film prepared by magnetron sputtering. *ACS Applied Electronic Materials*, 2024, **6(3):** 1858.
[17] SUN S M, LIU W J, WANG Y P, *et al*. Band alignment of In_2O_3/β-Ga_2O_3 interface determined by X-ray photoelectron spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 2018, **113(3):** 031603.
[18] TANG H, WU Q, LUO P, *et al*. Growth and property of In:Ga_2O_3 oxide semiconductor single crystal. *Journal of Inorganic Materials*, 2017, **32(6):** 621.
[19] GALAZKA Z, UECKER R, IRMSCHER K, *et al*. Melt growth, characterization and properties of bulk In_2O_3 single crystals. *Journal of Crystal Growth*, 2013, **362:** 349.
[20] OSHIMA T, FUJITA S. Properties of Ga_2O_3-based $(In_xGa_{1-x})_2O_3$ alloy thin films grown by molecular beam epitaxy. *Physica Status Solidi (c)*, 2008, **5(9):** 3113.
[21] ZHANG F, SAITO K, TANAKA T, *et al*. Wide bandgap engineering of $(GaIn)_2O_3$ films. *Solid State Communications*, 2014, **186:** 28.
[22] ZHANG F, SUN J, LI H, *et al*. Band-gap tunable $(Ga_xIn_{1-x})_2O_3$ layer grown by magnetron sputtering. *Frontiers of Information Technology & Electronic Engineering*, 2021, **22(10):** 1370.
[23] VASYLTSIV V I, RYM Y I, ZAKHARKO Y M. Optical absorption and photoconductivity at the band edge of β-$Ga_{2-x}In_xO_3$. *Physica Status Solidi (b)*, 1996, **195(2):** 653.
[24] WU Q, TANG H, SU L, *et al*. Growth and properties of β-Ga_2O_3:In single crystal by optical floating zone method. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2017, **45(4):** 548.
[25] LI Z, TANG H, LI Y, *et al*. Enhanced scintillation performance of β-Ga_2O_3 single crystals by Al^{3+} doping and its physical mechanism. *Applied Physics Letters*, 2022, **121(10):** 102102.
[26] TANG H, HE N, ZHU Z, *et al*. Temperature-dependence of X-ray excited luminescence of β-Ga_2O_3 single crystals. *Applied Physics Letters*, 2019, **115(7):** 071904.
[27] VARLEY J B, WEBER J R, JANOTTI A, *et al*. Oxygen vacancies and donor impurities in β-Ga_2O_3. *Applied Physics Letters*, 2010, **97(14):** 142106.
[28] WANG V, XIAO W, KANG L J, *et al*. Sources of n-type conductivity in $GaInO_3$. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2015, **48(1):** 015101.
[29] VÍLLORA E G, YAMAGA M, INOUE T, *et al*. Optical spectroscopy study on β-Ga_2O_3. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2002, **41:** L622.
[30] ISLAM M M, RANA D, HERNANDEZ A, *et al*. Study of trap levels in β-Ga_2O_3 by thermoluminescence spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 2019, **125(5):** 055701.