物理学报 Acta Physica Sinica



基于毫米级单晶石墨烯的倍频器性能研究

高庆国 田猛串 李思超 李学飞 吴燕庆

Gigahertz frequency doubler based on millimeter-scale single-crystal graphene

Gao Qing-Guo Tian Meng-Chuan Li Si-Chao Li Xue-Fei Wu Yan-Qing

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 217305 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.217305 在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.217305 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I21

您可能感兴趣的其他文章 Articles you may be interested in

硅烯中受电场调控的体能隙和朗道能级

Electric field controlled energy gap and Landau levels in silicene 物理学报.2015, 64(8): 087302 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.087302

一维石墨烯超晶格上的氢吸附

Hydrogen adsorption on one-dimensional graphene superlattices 物理学报.2014, 63(19): 197301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.197301

单层与双层石墨烯的光学吸收性质研究

Optical absorptions in monolayer and bilayer graphene 物理学报.2013, 62(18): 187301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.187301

旋转双层石墨烯的电子结构 Electronic structure of twisted bilayer graphene

物理学报.2013, 62(15): 157302 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.157302

二维Li+BC3结构高储氢容量的研究

Study of the high hydrogen storage capacity on 2D Li+BC₃ complex 物理学报.2013, 62(13): 137301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.137301

专题: 与硅技术融合的石墨烯类材料及其器件研究

基于毫米级单晶石墨烯的倍频器性能研究*

高庆国¹⁾²⁾ 田猛串¹⁾²⁾ 李思超¹⁾²⁾ 李学飞¹⁾²⁾ 吴燕庆¹⁾²⁾†

1)(华中科技大学光学与电子信息学院,武汉 430074)
 2)(华中科技大学,国家脉冲强磁场科学中心(筹),武汉 430074)

(2017年8月28日收到;2017年10月10日收到修改稿)

石墨烯作为一种拥有高电子迁移率和高饱和速度的二维材料,在射频电子学领域具有很大的应用潜力, 引起了人们广泛的研究兴趣. 近些年随着化学气相沉积制备石墨烯技术的发展,高质量大尺寸的单晶石墨烯 生长技术也愈加成熟.本文基于化学气相沉积生长的毫米级单晶石墨烯,在高介电常数介质上制备出高性能 的石墨烯倍频器,并且对其倍频特性做了系统的研究.研究结果表明:在输入信号频率为1 GHz时,倍频增益 可以达到 –23.4 dB,频谱纯度可以达到94%.研究了不同漏极偏压以及输入信号功率下倍频增益的变化特 性,随着漏极偏压以及输入信号功率的增加,倍频增益增加.对具有不同跨导和电子空穴电导对称性的器件 的倍频增益和频谱纯度随输入信号频率 f_{in}的变化关系进行了研究.结果表明,跨导对于倍频增益影响显著, 在 f_{in} = 1 GHz时器件的频谱纯度差别不大,均大于90%,但是随着 f_{in}增加至4 GHz,电子空穴电导对称性 较差的器件频谱纯度下降至42%,电子空穴电导对称性较好的器件仍能保持85%的频谱纯度.这是电子空穴 电导对称性和电子空穴响应速度共同作用的结果.本文的研究结果对于高性能石墨烯倍频器设计具有一定的 指导意义.

关键词:单晶石墨烯,倍频器,倍频增益,频谱纯度 PACS: 73.22.Pr, 73.40.Qv, 73.50.Mx, 73.63.-b

1引言

石墨烯具有极高的电子迁移率以及高饱和速 度等特性,在射频电子学领域具有很大的应用潜 力^[1].因此关于石墨烯的射频特性研究一直是其 应用研究的一个重要方向.现阶段,文献中报道 的石墨烯射频晶体管的截止频率已经可以超过 300 GHz^[2],最大振荡频率也可以达到200 GHz^[3]. 同时,基于石墨烯晶体管的倍频器^[4-8]、混频 器^[9,10]和相位探测器^[11]等具有实用功能的电路 也已有许多文献报道.在石墨烯射频集成电路方 面,Han等^[12]使用互补金属氧化半导体兼容的工 艺过程制作了石墨烯射频接收机,通过放大、滤波、 下变频三级电路实现了射频接收机的无线通信功

DOI: 10.7498/aps.66.217305

能. Yu等^[13]基于SiC外延石墨烯制作了单片微波 集成电路,在Ku波段实现了3.4 dB的小信号增益. Habibpour等^[14]基于SiC外延石墨烯制作了晶圆 级毫米波集成电路,可以对千兆比特每秒的载波信 号进行解码和编码,实现了高速率石墨烯收发机. 其中,基于石墨烯双极性输运特性的石墨烯倍频 器,使用单个晶体管就可以实现高频谱纯度的倍频 功能,相较于传统的二极管和晶体管倍频器,可以 省去一些复杂的滤波电路简化电路结构,具有明显 的电路结构优势^[4].

作为一种大面积可控的高质量石墨烯制备方法,化学气相沉积(CVD)生长石墨烯一直是研究的热点.因为单晶石墨烯具有晶格缺陷少、无晶界、质量高等特点,CVD大单晶石墨烯生长成为近些年的研究热点^[15-18]. Zhou等^[16]使用惰性气体气

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 61390504, 61574066, 11404118)资助的课题.

[†]通信作者. E-mail: yqwu@hust.edu.cn

^{© 2017} 中国物理学会 Chinese Physical Society

氛退火显著降低了石墨烯在铜箔上的成核密度,实现了5 mm尺寸的单晶石墨烯生长,测试得到的载流子迁移率为16000 cm²/(V·s);并且对单晶和多晶石墨烯晶体管进行了统计研究,表明单晶石墨烯晶体管进行了统计研究,表明单晶石墨烯晶体管具有更高的平均迁移率和开态电流,且具有更加均一的性能. Hao等^[17]在生长过程中通入氧气降低了成核密度,生长出1 cm尺寸的大单晶石墨烯,电学测试表明在温度为1.7 K的情况下,载流子迁移率可以达到65000 cm²/(V·s),室温下载流子迁移率可以达到30000 cm²/(V·s). Wu等^[18]使用局域供碳技术,在铜镍合金上成功生长出1.5 in (1 in = 2.54 cm)的单晶石墨烯,室温下的霍尔迁移率可达20000 cm²/(V·s).

随着研究的深入,高质量的大单晶石墨烯生长 技术越来越成熟. 但是, 目前关于大单晶石墨烯的 射频特性研究仍然局限于晶体管的截止频率以及 最大振荡频率^[19],缺少功能性电路研究.高介电常 数介质上的石墨烯晶体管的直流电学特性研究结 果表明,采用HfO2作为介质材料相较于采用传统 的SiO2作为介质材料有助于提升石墨烯晶体管的 迁移率^[20].本文基于高质量的毫米级单晶石墨烯, 采用高介电常数HfO2介质, 对毫米级单晶石墨烯 的倍频性能进行了研究. 在频率为1 GHz 的输入信 号下,得到了-23.4 dB的倍频增益和94%的频谱 纯度. 本文研究了漏极偏压以及输入信号功率对倍 频增益的影响,对比了具有不同跨导和电子空穴电 导对称性的晶体管的倍频特性. 分析表明, 石墨烯 倍频器的增益主要受晶体管跨导的影响, 而频谱纯 度则受到电子空穴电导对称性和响应速度的共同 影响.

2 毫米级单晶石墨烯的生长和器件 制备工艺

2.1 毫米级单晶石墨烯的生长和转移

本文使用低压 CVD 的方法, 在铜箔上生长毫 米级单晶石墨烯. 在生长过程中, 采用氩气退火和 降低甲烷分压两种方式来降低石墨烯的成核密度. 首先, 对铜箔用 0.15 mol/L 的过硫酸铵溶液处理 6 min, 随后用去离子水浸泡除去残留的过硫酸铵. 接着将铜箔包成铜盒子放进 3 in 的石英管中, 在氩 气氛围下升温至 1070 °C. 然后在氩气氛围下退火 1 h来降低石墨烯的成核密度. 接着通入 60 sccm 的氢气和 0.4 sccm 的甲烷开始石墨烯生长, 生长 10 h 后将炉体移开快速降温.

石墨烯的转移采用聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA)辅助转移的方式,以过硫酸铵作为铜箔 的刻蚀剂.首先在生长有石墨烯的铜箔上均匀旋 涂一层PMMA,然后用热板120°C加热5 min将 PMMA烘干.随后将铜箔放进准备好的过硫酸铵 溶液(0.15 mol/L)里刻蚀6 h左右,待铜箔刻蚀完 全后将石墨烯捞到待转移的衬底上晾干.然后将 样品放进盛有丙酮的培养皿中,浸泡8 h将PMMA 除掉.图1(a)为转移到HfO₂/Si衬底上的毫米级 单晶石墨烯的扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)照片.图1(b)为HfO₂/Si上的 石墨烯拉曼谱, *I*_{2D}/*I*_G > 2并且没有明显的D峰, 表明生长转移得到了高质量的石墨烯.



图 1 (a) 转移到 24 nm HfO₂/Si 衬底上的毫米级单晶石墨烯 SEM 照片, 比例尺 500 μm; (b) 24 nm HfO₂/Si 衬底上的 石墨烯拉曼表征

Fig. 1. Characterization of millimeter-scale single-crystal graphene transferred on 24 nm HfO_2/Si substrates: (a) SEM image, scale bar 500 μ m; (b) Raman spectrum.

2.2 器件制备工艺

首先,将石墨烯转移到原子层沉积(ALD)生长 24 nm HfO₂的高阻硅(>10000 Ω·cm)衬底上.随 后,采用传统的自上而下的工艺过程制备石墨烯晶 体管.第一步,采用电子束曝光图形化源漏区域, 接着使用电子束蒸发沉积10 nm/50 nm的Ti/Au 作为源漏接触金属.第二步,使用电子束曝光对沟 道区域进行开窗,接着依次使用电子束蒸发生长 2 nm Al作为种子层,ALD生长15 nm Al₂O₃作为 顶栅介质.最后,使用和源漏电极相同的工艺过程 制作栅极.图2给出了沟道长度为1 μm的器件完 成后的光学显微镜照片以及沟道区域的SEM照片, 通过SEM照片可以看出器件的对准误差可以忽略 不计.



图 2 (a) 沟道长度为 1 μm 的石墨烯晶体管的光学显微 镜照片; (b) 沟道区域的 SEM 图像

Fig. 2. (a) Optical microscope image of graphene transistor with a gate length of 1 μ m; (b) SEM image of the channel region.

3 电学测试结果

3.1 DC电学测试结果

器件的转移特性曲线以及对应的跨导随 V_g 的 变化如图 3 所示.器件A的栅极长度为1 µm,最大 跨导接近 300 µS/µm.如图 3 (a)所示,器件A 狄拉 克点接近 0 V,这有助于降低器件在倍频器测试时 所需的偏置电压.根据石墨烯倍频器的工作原理, 如果狄拉克点为 0 V则不需要加偏置电压就可以 完成倍频功能^[4].器件B的栅极长度为0.28 µm, 如图 3 (b)所示在狄拉克点两侧具有较好的电子空 穴电导对称性,最大跨导约为130 µS/µm.器件A 和B具有不同程度的电子空穴电导对称性,我们认 为是器件工艺过程中的掺杂程度不同导致的.为 了得到石墨烯晶体管的迁移率,本文对栅极长度 $L_g = 40 \ \mum$ 和 $W = 12 \ \mum$ 的器件进行了拟合^[21], 得到的载流子迁移率为3300 cm²/(V·s). 此外,在 4.3 K的温度下,毫米级单晶石墨烯的霍尔迁移率 可以超过10000 cm²/(V·s). 本文使用传输线模型 提取的接触电阻约为130 Ω·μm. 为了避免受到大 气中水分子和氧原子的掺杂,器件的测试均在真空 下进行.



图 3 $V_{\rm d} = -1.5$ V 时石墨烯晶体管的转移特性曲线以及 对应的跨导随 $V_{\rm g}$ 的变化关系 (a) 器件 A, $L_{\rm g} = 1$ µm; (b) 器件 B, $L_{\rm g} = 0.28$ µm

Fig. 3. Transfer characteristic and corresponding trans-conductance $g_{\rm m}$ of graphene transistor at $V_{\rm d} = -1.5$ V: (a) Device A, $L_{\rm g} = 1$ µm; (b) device B, $L_{\rm g} = 0.28$ µm.

3.2 倍频器测试

倍频器的测试电路示意图见图4.通过在栅极 施加一个DC偏置电压使器件偏置在狄拉克点,同 时通过偏置器在栅极施加特定频率的射频输入信 号,由于石墨烯的双极性转移特性,在漏极就可以 得到频率翻倍后的输出信号.在图4中输入信号、 石墨烯的晶体管转移特性曲线和输出信号分别用 不同颜色的实线表示.在测试过程中使用的信号源 为安捷伦N5183B信号发生器,示波器和频谱仪分 别为安捷伦DSA90804A和N9020A.





Fig. 4. Test circuit for graphene frequency doublers.

在完成基本的直流表征后,本文首先对器件A 的倍频性能进行了测试. 图5(a)和图5(b)分别 为时域和频域的测试结果,其中输入信号频率 $f_{in} = 1$ GHz, 输入功率 $P_{in} = 10$ dBm, 漏极偏压 $V_{\rm d} = 1.5$ V. 在图 5 (a), 输入信号用红色实线表示, 倍频后的信号用蓝色实线表示,可以看出完好的倍 频波形. 根据图 5(b) 中 f = 2 GHz 的信号峰的功 率,考虑到线缆的损耗情况,器件A的倍频增益为 -23.4 dB. 倍频后的信号峰高于 f = 1 GHz 的信号 峰12 dB. 通过公式 $Purity = P_{2out}/P_{out}$,可以计 算得到倍频后的频谱纯度为94%^[5].表1为与文献 中报道的工作频率相近器件的倍频增益和频谱纯 度的直接比较,可以看出,器件A倍频增益超过了 同等频率下多数文献中报道的结果,同时频谱纯度 可以达到94%. 这是采用高质量的毫米级单晶石墨 烯作为沟道材料以及高介电常数介质作为介电材 料共同作用下的结果.

表1 与文献相近工作频率石墨烯倍频器比较 Table 1. Comparison of graphene frequency doubler work at similar frequency.

	$f_{\rm in}/{\rm GHz}$	$f_{ m out}/ m GHz$	Conversion gain/dB	Spectral purity/%
Ref.[5]	0.7	1.4	-30	> 90
Ref.[7]	1.05	2.1	-46	> 90
Ref.[8]	1	2	-28	—
Our work (device A)	1	2	-23	94



图 5 输入信号频率 $f_{in} = 1$ GHz 时器件 A 的倍频测试 结果 (a) 通过示波器测试出的时域波形图; (b) 通过频谱 仪测试出的频域频谱图

Fig. 5. Measurement results of graphene frequency doubler for device A at $f_{\rm in} = 1$ GHz: (a) Time domain result measured by an Agilent DSA90804A oscilloscope; (b) corresponding frequency domain result measured by an Agilent N9020A spectrum analyzer.

本文对不同*V*_d和不同*P*_{in}下石墨烯倍频器A的倍频增益进行了研究.图6(a)为在保持*P*_{in}以及

f_{in}不变的情况下, 倍频增益随着 V_d 的依赖关系. 从图 6 (a) 中可以看出, 随着 V_d 的增加, 器件的倍频 增益增加.根据之前文献 [5] 的研究结果, 这是因为 随着 V_d 的增加器件跨导随之增加.图 6 (b) 为在保 持 f_{in}和 V_d不变的情况下, 倍频增益随 P_{in} 的依赖 关系.从图 6 (b) 可以看出, 随着 P_{in} 的增加, 器件的 倍频增益先增加后有所下降.本文认为这是由于随 着 P_{in} 的增加, 信号幅值增加, 在较小的幅值下器件 跨导随幅值增大而增大; 当信号幅值超过最大跨导 对应的电压点时, 随着信号幅值增加跨导会降低, 进而影响了倍频增益的提升.



图 6 器件 A 倍频增益随着 (a) 漏极电压以及 (b) 输入信号功率的变化

Fig. 6. (a) Conversion gain at $f_{\rm in} = 1$ GHz, $P_{\rm in} = 10$ dBm plotted against $V_{\rm d}$ for device A; (b) conversion gain at $f_{\rm in} = 1$ GHz, $V_{\rm d} = 1$ V plotted against $P_{\rm in}$ for device A.

在与器件A相同的 P_{in} 和 V_d 条件下,器件B 在 $f_{in} = 1$ GHz时倍频增益和频谱纯度分别为 -26.7 dB和95%. 倍频增益相对于器件A降低,但 是频谱纯度相对于器件A略有增加. 为了更系统地 对比器件A和B的倍频特性,本文在相同的 P_{in} 和 V_d 、不同的 f_{in} 下对两者进行了研究. 如图7(a)所 示,随着 f_{in}的增加,两个器件的倍频增益均下降并 且具有相似的下降趋势和幅度;器件A的倍频增益 性能高于器件B约4 dB,这与器件A具有较大的跨 导值相对应.图7(b)表示两个器件的频谱纯度随 着 f_{in}的依赖关系,可以看出,在输入信号为1 GHz 的情况下,器件A和B的频谱纯度相差不大,但是 随着频率的增加,器件A的频谱纯度急剧下降;在 输入信号为4 GHz的情况下,器件A的频谱纯度只 有42%,但是器件B仍然具有85%的频谱纯度.



图 7 器件 A 和 B 的倍频性能随输入信号频率 *f*_{in} 的变化 (a) 倍频增益; (b) 频谱纯度

Fig. 7. Frequency dependence of (a) conversion gain and (b) spectral purity for device A and B.

4 讨 论

根据文献 [5, 6] 中的理论分析以及仿真结果, 石墨烯晶体管的跨导以及电子空穴电导对称性对 倍频增益和频谱纯度影响显著.本文直接对比了两 个具有不同跨导和电子空穴电导对称性的器件,通 过实验验证了跨导对于倍频增益的显著影响.从 图 7 (b) 的测试结果来看,在1 GHz 频率下,频谱纯 度受到电子空穴电导对称性的影响不大.但是随着 输入信号频率的增加,在输入信号为4 GHz 的情况 下,器件A和B频谱纯度差别较大.表明在低频下 石墨烯晶体管频谱纯度对于电子空穴电导对称性 具有相对较大的容许度.随着输入信号频率增加至 4 GHz,器件A的频谱纯度下降明显,器件B则依 旧可以保持85%的频谱纯度,这是电子空穴电导对 称性以及不同栅极长度的晶体管的电子空穴响应 速度差异共同导致的^[22].鉴于石墨烯的高迁移率 和高饱和速度,石墨烯倍频器有希望在更高频段实 现应用.对于更高频段的石墨烯倍频器,首先应该 尽量避免在工艺过程中的掺杂,保持石墨烯的本征 输运特性,同时要把栅极长度缩短,提升电子空穴 的响应速度.在保持高频谱纯度的同时,提升倍频 增益也是同等重要的,选用高质量的石墨烯以及超 薄的栅介质材料可以显著提升器件的跨导进而提 升倍频增益.

5 结 论

本文基于HfO2介质上高质量的毫米级单晶石 墨烯,首次对毫米级单晶石墨烯的倍频性能做了 系统的研究,同时对不同直流特性的石墨烯晶体 管的倍频性能进行了比较.在1 GHz的输入信号 频率下,毫米级单晶石墨烯倍频器倍频增益高达 -23.4 dB, 同时保持着94%的频谱纯度, 超过同等 工作频率下多数文献中的性能. 对于不同输入信号 功率以及不同漏极偏压下的倍频增益研究表明石 墨烯晶体管的跨导对于倍频增益影响显著. 在输入 信号为1 GHz时,频谱纯度对于石墨烯晶体管的电 子空穴电导对称性具有较大的容许度. 但是随着输 入信号频率的增加,电子和空穴响应速度对于频谱 纯度的影响开始显著,频谱纯度受到器件电子空穴 电导对称性和电子空穴响应速度的共同影响.本文 对于毫米级单晶石墨烯的倍频性能研究为制备更 高性能的石墨烯倍频器提供了指导.

参考文献

[1] Schwierz F 2010 Nat. Nanotechnol. 5 487

- Wu Y, Jenkins K A, Valdes-Garcia A, Farmer D B, Zhu Y, Bol A A, Dimitrakopoulos C, Zhu W, Xia F, Avouris P 2012 Nano Lett. 12 3062
- [3] Wu Y, Zou X, Sun M, Cao Z, Wang X, Huo S, Zhou J, Yang Y, Yu X, Kong Y 2016 ACS Appl. Mater. Interfaces 8 25645
- [4] Wang H, Nezich D, Kong J, Palacios T 2009 IEEE Electron Dev. Lett. 30 547
- [5] Wang H, Hsu A, Kim K K, Kong J, Palacios T 2010 *IEEE International Electron Devices Meeting* San Francisco, USA, December 6–8, 2010 p23.6.1
- [6] Wang Z, Zhang Z, Xu H, Ding L, Wang S, Peng L M 2010 Appl. Phys. Lett. 96 173104
- [7] Liao L, Bai J, Cheng R, Zhou H, Liu L, Liu Y, Huang Y, Duan X 2011 Nano Lett. 12 2653
- [8] Lü H, Wu H, Liu J, Huang C, Li J, Yu J, Niu J, Xu Q, Yu Z, Qian H 2014 Nanoscale 6 5826
- [9] Andersson M A, Zhang Y, Stake J 2017 IEEE Trans. Microw. Theory Tech. 65 165
- [10] Wang H, Hsu A, Wu J, Kong J, Palacios T 2010 IEEE Electron Dev. Lett. **31** 906
- [11] Yang X, Liu G, Rostami M, Balandin A A, Mohanram K 2011 IEEE Electron Dev. Lett. 32 1328
- [12] Han S J, Garcia A V, Oida S, Jenkins K A, Haensch W 2014 Nat. Commun. 5 3086
- [13] Yu C, He Z, Liu Q, Song X, Xu P, Han T, Li J, Feng Z, Cai S 2016 *IEEE Electron Dev. Lett.* **37** 684
- [14] Habibpour O, He Z S, Strupinski W, Rorsman N, Zirath H 2017 Sci. Rep. 7 41828
- [15] Gan L, Luo Z 2013 ACS Nano 7 9480
- [16] Zhou H, Yu W J, Liu L, Cheng R, Chen Y, Huang X, Liu Y, Wang Y, Huang Y, Duan X 2013 Nat. Commun. 4 2096
- [17] Hao Y, Bharathi M, Wang L, Liu Y, Chen H, Nie S, Wang X, Chou H, Tan C, Fallahazad B 2013 Science 342 720
- [18] Wu T, Zhang X, Yuan Q, Xue J, Lu G, Liu Z, Wang H, Wang H, Ding F, Yu Q 2016 Nat. Mater. 15 43
- [19] Wei Z, Fu Y, Liu J, Wang Z, Jia Y, Guo J, Ren L, Chen Y, Zhang H, Huang R, Zhang X 2014 Chin. Phys. B 23 117201
- [20] Lakshmi Ganapathi K, Bhat N, Mohan S 2013 Appl. Phys. Lett. 103 073105
- [21] Kim S, Nah J, Jo I, Shahrjerdi D, Colombo L, Yao Z, Tutuc E, Banerjee S K 2009 Appl. Phys. Lett. 94 062107
- [22] Wu Y, Lin Y M, Bol A A, Jenkins K A, Xia F, Farmer D B, Zhu Y, Avouris P 2011 *Nature* 472 74

SPECIAL TOPIC — Hybrid silicon/graphene and related materials and devices

Gigahertz frequency doubler based on millimeter-scale single-crystal graphene^{*}

Gao Qing-Guo¹⁾²⁾ Tian Meng-Chuan¹⁾²⁾ Li Si-Chao¹⁾²⁾ Li Xue-Fei¹⁾²⁾ Wu Yan-Qing^{1)2)†}

1) (School of Optical and Electronic Information, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

2) (Wuhan National High Magnetic Field Center, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

(Received 28 August 2017; revised manuscript received 10 October 2017)

Abstract

Graphene shows great potential applications in ultrahigh speed electronics due to its high carrier mobility and velocity. Nowadays, many radio frequency circuits based on graphene have been realized. For example, graphene frequency doubler is a promising option for signal generation at high frequencies. Graphene frequency doubler can achieve excellent spectral purity, because of its ambipolar transport and highly symmetric transfer characteristics. Here, we present high performance graphene frequency doublers based on millimeter-scale single-crystal graphene on HfO₂ and Si substrates. We achieve a high spectral purity degree of larger than 94% without any filtering and the conversion gain is -23.4 dB at $f_{\rm in} = 1$ GHz. The high conversion gain and spectral purity can be attributed to the high-quality millimeterscale single-crystal graphene and high-quality high- κ substrates. Furthermore, we investigate the relation of conversion gain to source-drain voltage $V_{\rm d}$ and input signal power $P_{\rm in}$. The results show that the conversion gain increases with source-drain voltage increasing, and the conversion gain also increases with input signal power increasing. The dependence of conversion gain on V_d and P_{in} can be attributed to the transconductance increasing with V_d and P_{in} . We compare the conversion gains and spectral purity degrees of graphene frequency doublers with different transconductances and electron-hole symmetries at different frequencies. The result shows that the conversion gain is larger for device with higher transconductance and the spectral purity has a moderate tolerance for the electron-hole symmetry of the graphene transistor at $f_{in} = 1$ GHz. As the working frequency increases to 4 GHz, the spectral purity of the device with weak electron-hole symmetry decreases dramatically, while the spectral purity of the device with better electron-hole symmetry is kept around 85%. We attribute this phenomenon to the different carrier transit times and different electron-hole symmetries of graphene transistors. In conclusion, the short channel graphene transistor with ultrathin gate dielectric and high electron-hole symmetry is needed in order to achieve high performance graphene frequency doubler.

Keywords: single-crystal graphene, high frequency doubler, conversion gain, spectral purity

PACS: 73.22.Pr, 73.40.Qv, 73.50.Mx, 73.63.-b

DOI: 10.7498/aps.66.217305

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61390504, 61574066, 11404118).

[†] Corresponding author. E-mail: yqwu@hust.edu.cn