氩离子铣削引起的超导量子电路退相干机制

J. Van Damme[1,2], Ts. Ivanov[1], P. Favia[1], T. Conard[1], J. Verjauw[1,3], R. Acharya[1,2], D. Perez Lozano[1], B. Raes[4], J. Van de Vondel[4], A. M. Vadiraj[1], M. Mongillo[1], D. Wan[1], J. De Boeck[1,2], A. Potočnik[1*], K. De Greve[1,2]

[1]Imec，比利时鲁汶 Kapeldreef 75，B-3001

[2]鲁汶大学电气工程系（ESAT），比利时鲁汶，B-3000

[3]鲁汶大学材料工程系（MTM），比利时鲁汶，B-3000

[4]鲁汶大学物理与天文学系，比利时鲁汶，B-3000

超导电路的制造需要经过多次沉积、刻蚀和清洗步骤，而每个步骤都可能引入材料性质变化和微观缺陷。在本研究中，我们特别考察了氩离子铣削这一可能限制相干性的工艺步骤，并采用铌和铝超导谐振器作为量子比特表面限制行为的替代对象。我们发现，经过表面氩离子铣削后，铌微波谐振器的品质因数降低了一个数量级，而铝谐振器则能抵御相同工艺的影响。对铌表面的全面分析表明，氩离子铣削并未改变亚氧化物组成；然而，双音谱学测量显示，双能级系统的电偶极矩增加了，这表明铌氧化物的结构发生了改变，并形成了具有更大电偶极矩的双能级系统缺陷。不过，短时干法刻蚀可以完全恢复氩离子铣削在铌中引起的损耗，为实现采用铌电路的先进重叠式约瑟夫森结量子比特提供了一条潜在途径。

I. 引言

超导量子电路在实现量子信息处理器方面展现出巨大潜力。该技术具有设计灵活性，可将电容器、电感器、谐振器和约瑟夫森结（JJ）等多种结构组合成复杂系统。然而，在进一步扩大规模并实现实用化应用的道路上仍面临诸多障碍，其中材料缺陷是亟待解决的主要挑战之一 [1,2]。超导量子器件会因与由缺陷形成、存在于超导体周围的非晶材料、氧化物和界面中的双能级系统（TLS）相互作用，而产生不必要的弛豫和退相干 [3,4]。有限的量子比特相干性会影响门保真度，并需要更复杂的纠错方案。此外，这些相同的TLS还会导致量子比特参数随时间发生随机波动，因此需要主动反馈和调谐 [5–7]。在大型超导量子处理器中，如此频繁地重新校准系统将带来巨大的额外开销。因此，深入了解TLS缺陷的起源，并采用合适的材料开发适当的制造工艺以将其最小化，至关重要。

数十年来对难以捉摸的 TLS 缺陷开展的实验研究揭示，它们主要位于器件的外表面和界面 [8–11]。金属沉积前衬底清洗技术的进步，成功降低了衬底-金属界面的损耗 [12–14]， ，而表面氧化物去除实验 [15,16] 则证明了衬底-空气界面和金属-空气界面的重要性。另一个重要考量是制造工艺对不同材料中缺陷形成的影响。离子铣削是一种值得关注的制造工艺，常用于改善两层金属层之间的欧姆接触，或用于采用重叠工艺制造约瑟夫森结 [17–19]。先前研究表明，金属沉积前通过离子铣削清洗衬底会劣化金属-衬底界面 [12,14,20,21]。在高真空或 NH_3 钝化环境中进行全局表面离子铣削 [22] 会增加谐振器损耗并缩短量子比特寿命，这表明金属-空气界面和/或衬底-空气界面可能会因离子铣削而受到不利影响。然而，铣削诱导损耗的根本性质尚不完全清楚。此外，氧化离子铣削超导体的影响——而这在制造重叠式约瑟夫森结时不可避免 [17–19]，——尚未得到充分研究。

目前，所有最先进的量子比特均采用 Al/AlOx/Al 约瑟夫森结制备[23–25]。然而，为了获得更高的超导临界温度 T_c （如铌[14]），或利用低损耗、自限性天然氧化物的特性（如 TiN[26],或 Ta[23]），其他电路结构（如电容器焊盘、馈线和谐振器）通常采用其他超导材料制备。在本研究中，我们对使用最广泛的两种超导材料——铌和铝——在氩离子铣削后产生的衬底-空气界面和金属-空气界面损耗进行了表征。由于超导量子比特和谐振器具有相同的表面损耗机制，**谐振器常被用作研究量子比特表面及界面损耗的"短-环路"替代对象**[20,27]。我们制备了超导谐振器，并在不同的氩离子铣削条件下对其进行处理。我们表征并比较了它们的微波损耗机制，并通过扫描透射电子显微镜（STEM）、能量色散X射线分析（EDS）、电子能量损失谱（EELS）、原子力显微镜（AFM）、X射线光电子能谱（XPS）和温度依赖性分析研究了相应的材料变化。我们发现，氩离子铣削条件对铝器件的影响并不显著，而铌器件的微波损耗则增加了一个数量级。我们提供的证据表明，氩损伤的氧化铌中形成了具有更大偶极矩的双能级系统（TLS）。

II. 实验描述

本研究使用三维超导腔内的平面集总元件谐振器（LER）开展材料损耗研究。与应用更广泛的共面波导谐振器相比，[28,29]，LER无需粘附或引线键合，因此能够对经过多轮表面处理的单个芯片进行表征[15]。每个芯片上都有六个采用不同设计的LER（Res 1 – 6，频率为 3.9 GHz – 5.5 GHz），这些谐振器置于一个铝腔中（TE_{101} 模式频率为 8 GHz），腔体配有可调

* 通讯作者：anton.potocnik@imec.be

输入/输出（I/O）端口，用于调节腔体-LER耦合。有关器件设计的更多信息，请参见附录 B 和 [15]。通过将广义洛伦兹模型拟合到在 10 毫开尔文下使用矢量网络分析仪（VNA）测得的传输散射参数 S_{21}，提取LER的谐振频率和品质因数。所有报告的拟合结果均使用 Python lmfit软件包[30]获得。腔耦合谐振器所用的实验装置和拟合模型分别在附录 A 和附录 B 中介绍。

本研究中使用的 LER 器件是在 Imec 的晶圆厂标准洁净室中于 300 毫米晶圆上制备的 [15]。在溅射 100 nm 超导金属（铌或铝）之前，先用氢氟酸（HF）清洗高电阻率（>3 kΩcm）硅衬底。器件采用光刻工艺图形化，并使用 SiO_2 硬掩模和氯基干法刻蚀。去除光刻胶和硬掩模后，在晶圆上涂覆保护性光刻胶并进行切割（之后用丙酮剥除光刻胶）。随后进行两分钟的氧灰化，以去除有机残留物，并使所有外表面上的氧化物生长达到饱和。这是氩离子铣削的参考基准研究（参考样品）。其他样品还要接受覆盖整片芯片的氩等离子体物理溅射处理；该等离子体由射频场产生，气体流量为 20 cm^3/min，压强为 4.6 mTorr（使用 Pfeiffer Spider 630设备）。这些样品经过 15 分钟的氩离子铣削，等离子体射频功率分别设为 10 W、50 W 或 100 W[图1 (a)]。其中，100 W 的功率设置足以完全去除铝和铌的表面氧化物，对应于 [17]中所述的重叠式约瑟夫森结制备条件。最后，对经过不同铣削处理的样品按相同的两分钟氧灰化配方进行有意重新氧化，以确保表面氧化物厚度相近，从而将氩离子铣削引入的损耗与参考样品进行比较。氩离子铣削导致的铌或铝消耗量不超过 20 nm，而向硅中的刻蚀深度则从约 50 nm 增至 100 nm。此外，经过 100 W 氩处理的铌样品在表征后，进一步用 $SiCl_4$ 干法刻蚀 10 秒，以去除氩离子铣削形成的顶层，随后进行两分钟氧灰化。所有经过不同处理的 LER样品及其他加工细节汇总于表I。

表I. 测量样品概览。从左至右依次为：样品名称、衬底/金属堆叠结构、器件制备后进行的处理，以及对这些样品进行的不同类型表征。单音（ST）饱和实验、双音（TT）饱和实验、扫描透射电子显微镜、X射线光电子能谱、原子力显微镜、电阻的温度依赖性（在经过相同处理的输运桥器件上测量）以及谐振频率（见附录 C）。

Name	基底/金属	处理	所进行的表征					
			ST	TT	STEM	XPS	AFM	温度
Nb参考样品	硅/铌	O_2 等离子体（2 分钟）	x	x	x	x	x	x
铌 10 瓦氩气	硅/铌	10 瓦氩离子铣削（15 分钟）+ O_2 等离子体（2 分钟）	x	x		x		
铌 50 瓦氩气	硅/铌	50 瓦特氩离子铣削（15 分钟）+ O_2 等离子体（2 分钟）	x	x		x		
铌 100 瓦氩气	硅/铌	100 瓦特氩离子铣削（15 分钟）+ O_2 等离子体（2 分钟）	x	x	x	x	x	x
铌 100 瓦氩气 + 刻蚀	硅/铌	100 瓦氩气铣削（15 分钟）+ 氧等离子体（2 分钟）+ $SiCl_4$ 刻蚀（10 秒）+ 氧等离子体（2 分钟）	x					
铝参考	硅/铝	O_2 等离子体（2 分钟）	x	x				
铝样品，100 W氩离子研磨	硅/铝	100 W氩离子铣削（15 分钟）+ O_2 等离子体（2 分钟）	x	x				

如我们先前的研究所示，参考LER器件的微波损耗受表面界面的限制；使用氢氟酸去除表面氧化物后，损耗降低了近一个数量级 [15]。因此，氩离子铣削处理对衬底-空气界面和金属-空气界面的任何影响，都会导致可观测到的微波损耗变化。图中展示了所有经过不同处理的 LER样品

表I中的样品将在下一节中讨论，使用稀释制冷机内10毫开尔文下的单音和双音[31–33]　微波功率饱和实验对其微波损耗进行比较。随后，根据样品的微波损耗选取部分样品进行进一步的表面分析（已在表I中标出）。

III. 结果

A. 单音损耗饱和谱学

S毫开尔文温度下测量的超导谐振器

温度下，由于与 TLS 缺陷热库的相互作用，会出现依赖于微波功率的损耗 [34]。所有隧穿 TLS 缺陷都与声子模耦合，而关键缺陷还具有电偶极矩，因此会与附近谐振器或量子比特的电场耦合 [4,35,36]。TLS 形成了一种损耗通道，会使谐振器线宽增宽，表现为品质因数降低（$Q = f_r/\kappa$，其中 κ 为半高全宽线宽，f_r 为谐振器频率）。当谐振器中的光子占据数较高时，跃迁能量接近LER's 共振频率的 TLS 会被驱动至饱和状态，即基态与激发态的占据数相等，因而无法再从谐振器吸收能量。对于均匀的能量分布的 TLS，其品质因数对光子数的依赖关系由式（1）描述，该式针对非相互作用 TLS 和均匀电场推导而得（$\phi = 1$）[34]

$$\frac{1}{Q_\mathrm{i}} = \frac{1}{Q_\mathrm{TLS}} \frac{\tanh \frac{hf_r}{2k_\mathrm{B}T}}{\sqrt{1 + \left(\frac{\bar{n}}{n_\mathrm{c}}\right)^{\phi}}} + \frac{1}{Q_\mathrm{r}}. \tag{1}$$

TLS对总损耗的贡献由参数 $1/Q_\mathrm{TLS}$表示，其中 $\bar{n}$ 是谐振器内的平均光子数，n_c 是决定TLS开始饱和的临界光子数，T 是温度（10毫开尔文），所有剩余的（非TLS）损耗则由参数$1/Q_\mathrm{r}$表示。实验中通常会发现较缓慢的功率依赖性（$\phi < 1$），这被归因于相互作用TLS模型[37], 或几何相关电场[38,39]。我们测量了表I中所有样品的逆品质因数随微波功率的变化。图1(b)展示了每个芯片上选取的三个谐振器（Res 2、Res 3和Res 5）的结果。实线是对式（1）的TLS饱和模型进行拟合得到的曲线，提取出的损耗参数 $1/Q_\mathrm{TLS}$ 和 $1/Q_\mathrm{r}$ 在图1(c)中按样品进行了比较。我们的数据与 $\phi = 0\ 44 \pm 0\ 08$ 拟合良好。.

与铝谐振器相比，氩离子铣削对铌的影响呈现出显著差异。铌谐振器的损耗从参考样品到 100 W 氩样品增加了一个数量级，而铝则能抵御同样的处理。铌样品的双能级系统损耗（$1/Q_\mathrm{TLS}$）和微波功率无关残余损耗（$1/Q_\mathrm{r}$）均有所增加，并且随研磨功率增大而增大，如图所示。

1 (b, c)。由于铝谐振器和铌谐振器均制备在名义上相同的高电阻率硅衬底上，因此可以排除氩离子铣削在衬底-空气界面造成的损伤是微波损耗增加的主要原因。氩离子铣削引入的损耗必然源自铌表面。进一步的佐证是，在铌谐振器经过铣削和氧化后，使用 10 秒干法刻蚀去除顶层表面，其 Q 因子完全恢复；该样品为图1 (b, c) 中的 [铌 100 瓦氩气+ 刻蚀样品]。

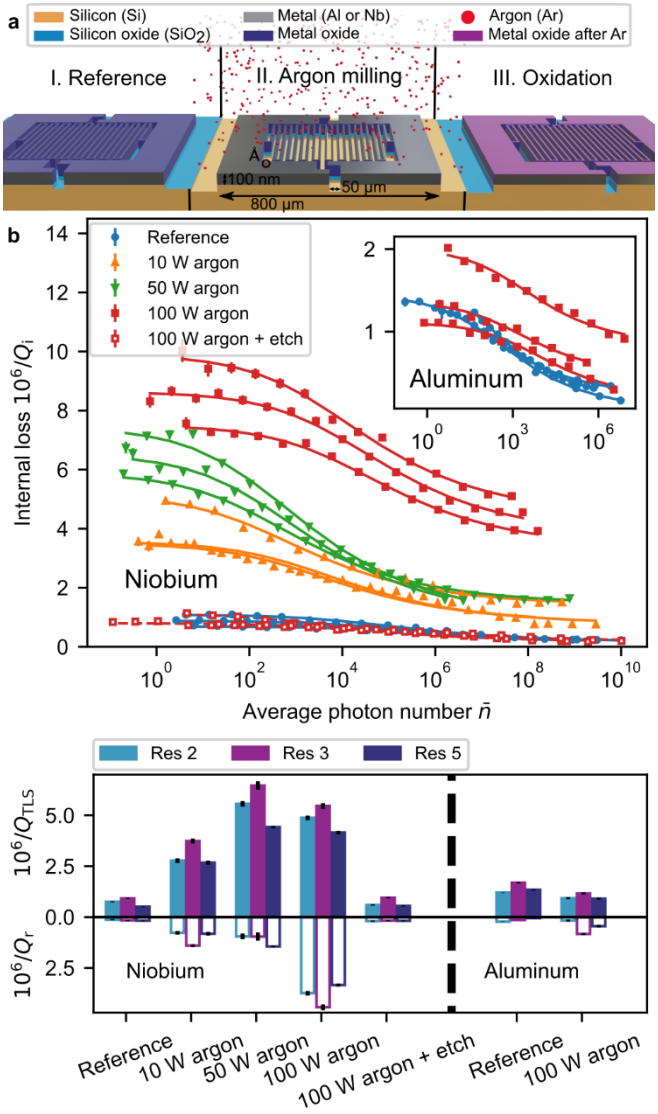

图1。（a）对经过表面氩离子铣削处理并随后进行等离子体氧化的谐振器横截面进行示意性展示。（b）比较了不同样品在氧化前接受不同氩离子铣削功率处理时内部损耗 $1/Q_i$ 对微波功率的依赖关系。每个样品均展示了相同的三个器件（Res 2、Res 3 和 Res 5）。误差线对应于从谐振器线形拟合中提取的一个标准差不确定度。连续线是使用公式（1）进行的拟合。主图包含铌器件的数据，插图显示铝器件的数据。（c）从功率扫描中提取的双能级系统损耗（$1/Q_{TLS}$）和残余损耗（$1/Q_r$），误差线表示拟合参数不确定度的一个标准差。

铌表面与铝表面的不同之处在于，它能够形成的低价氧化物混合物更为复杂 [40,41]。铝会氧化形成 Al_2O_3，，而铌天然表面氧化物通常是由 NbO、NbO_2, 和 Nb_2O_5, 组成的层状结构，它们分别具有超导体（$T_c \cong 1.3$ K）、半导体（带隙　~0.1 eV）和介电性质 [16,40,42]。不同的氧化铌可能通过多种机制造成微波损耗。例如，表面金属层（如 NbO）的近邻效应 [43] , 或磁性杂质（如顺磁性间隙氧和 Nb_2O_5中的氧空位）导致准粒子增多 [44–47]。此外，不同低价氧化物中存在的 TLS缺陷可能有很大差异。由于额外的电子散射，金属玻璃（如非晶一氧化铌）中的 TLS 预计具有低几个数量级的弛豫时间和相干时间，因此更难达到饱和 [4]。因此，低价氧化物的重新分布、结构重构以及杂质的掺入，很可能导致了观测到的氩离子铣削诱导损耗。为进一步探究损耗来源，我们接下来使用 XPS 和扫描透射电子显微镜，对铌参考样品和铌100瓦氩处理样品进行了表面分析。

B. 铌表面表征

[illegible]（~ 4 - 5 nm）[图2（a、b）]，，这表明观察到的额外损耗源于氧化层本身，而不是由可能不同厚度的有损氧化层所导致。氩刻蚀铌氧化物中不同亮度层的外观存在显著差异[图2（b）]，，表明氧化物密度发生了变化。通过 EDS 提取的原子浓度显示，氩刻蚀样品中含有少量硅（氧化层中的硅含量为 5.2 at%）；在铣削过程中，硅可能从附近暴露的基底区域溅射到金属表面。

为进一步了解铌-空气界面处样品之间的差异，我们对氧化层的横截面进行了电子能量损失谱分析，并提取了 O:Nb 浓度比 [16,48], , 其结果由图2 (c, d)中的色彩图≤ 1展示。两个样品在铌界面处均显示出一氧化铌亚氧化物（O:Nb 比值为 [15,16]），且向表面移动时氧含量增加，这与文献报道一致。$_2$氩离子铣削样品的表面明显以 Nb_5 O > 2（O:Nb 比值为 < 2）为主，而参考样品的 EELS 映射显示 O:Nb 比值较低 [15,49] ，即使在最外层表面也是如此。然而，表面敏感的 X 射线光电子能谱测量$_2$表明，无论氩离子铣削条件如何$_5$ ，所有铌样品表面均以 Nb[O]为主（图2 (f)）。$_2$其他低价氧化物（埋藏在 Nb_5 O< 2 顶层之下）在 XPS 中的浓度较低，且无法提取出其与氩离子研磨功率之间的明确关联。参考样品的 O:Nb~ 40 EELS 映射结果不一致，可能是由于参考样品的表面粗糙度较高。聚焦离子束（FIB）样品厚度方向上的粗糙度（[nm）会使薄氧化层的检测信号与下方铌及顶部碳的信号相互混杂，从而导致 O:Nb 比值降低。与表面更平滑的氩离子铣削样品相比，这种表面粗糙度也可以解释 EDS 能谱曲线中界面处浓度变化过渡区变宽的现象，而氩离子铣削样品的过渡则更为锐利（图2(a, b)）]。

对参考样品和氩离子铣削后的表面形貌进行原子力显微镜表征，证实了这一解释。氩离子铣削使铌表面更加平滑，同时使谷峰面积增加了 5.6 倍；该数值是根据表面高度相关长度在水平方向和垂直方向上的变化近似估算的[图2（e、g）]。表面粗糙度与损耗增加有关，这是由于表面电场的参与率提高所致 [50]。然而，在我们的结果中，这一效应被其他损耗贡献所掩盖，因为大部分损耗出现在最平滑的氩离子铣削样品中。

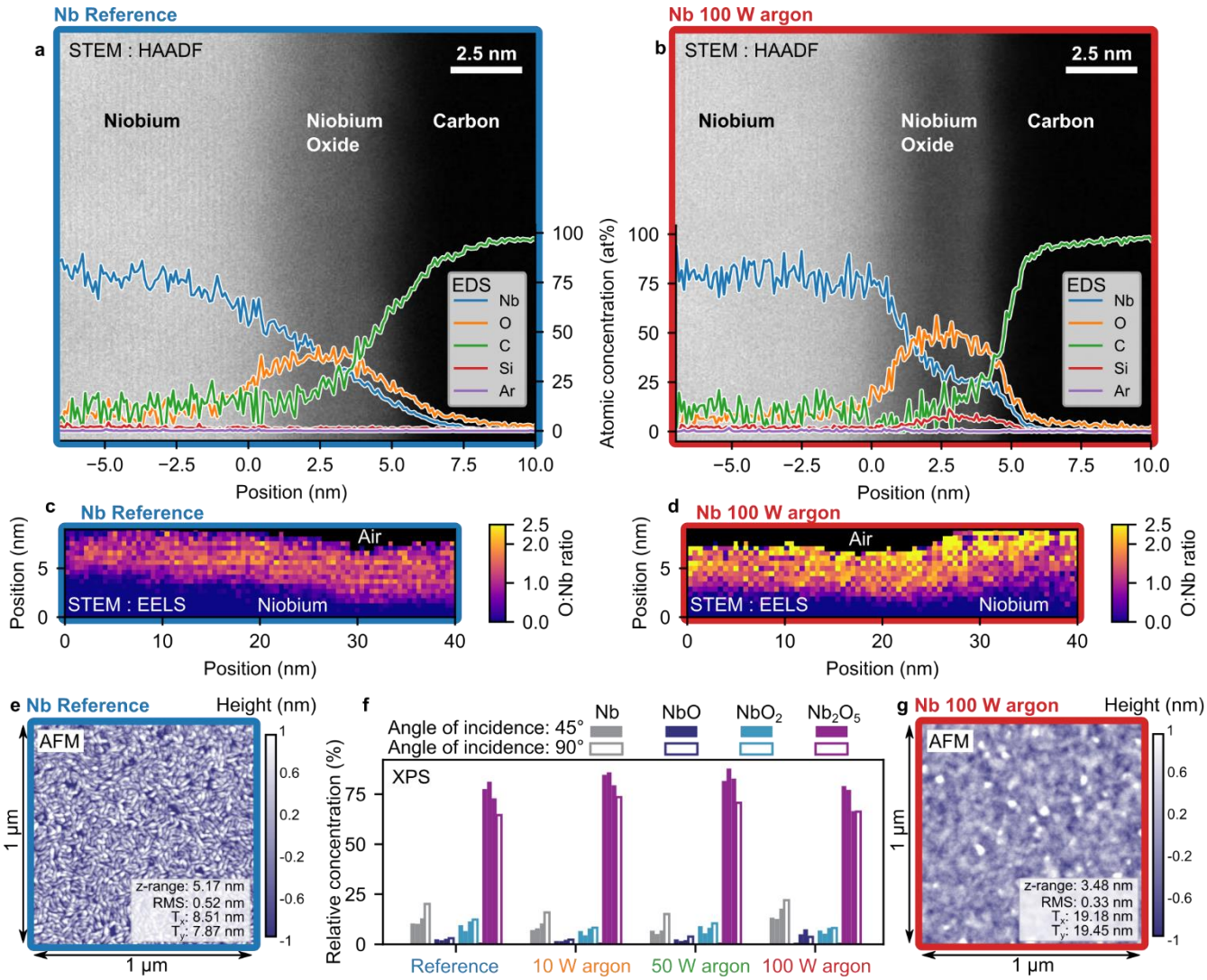

图2. 参考样品（a、c、e、f）和经过 100 W 氩离子铣削处理的样品（b、d、f、g）的铌-空气界面分析。高角环形暗场（HAADF）扫描透射电子显微镜图像（a、b）与各种元素随截面深度变化的原子浓度（实线）一同展示；原子浓度通过 EDS 从沿铌表面的 20 nm 长区域中提取。铌-空气界面截面的电子能量损失谱图（c、d）显示了整个氧化层中的氧铌比。通过原子力显微镜图像（e、g）展示铣削导致的铌表面形貌变化；图中显示了最大高度差（z 范围）、均方根粗糙度（RMS）以及水平和垂直相关长度（分别为 Tx 和 Ty）。通过拟合 Nb 3d XPS 谱（f）提取四种不同氩离子铣削条件下的亚氧化物浓度，示例见附录 D。相应的测量不确定度通过多个完全相同制备的样品重复实验加以说明（包括谐振器芯片和整片铌芯片）。

因此，氩离子铣削能够有效平滑铌表面，而对氧化层的化学成分影响很小，仅使硅含量略有增加。原子力显微镜和扫描透射电子显微镜图像显示出的显著外观变化，确实表明由于铣削过程中铌表面遭受损伤，非晶氧化层的粗糙度和密度发生了变化。我们将在讨论部分重新审视这些发现及其可能的影响。有关所采用表面分析方法的更多信息和细节，请参见附录 D。

C. 双音谱学

其他对氩离子铣削引起缺陷敏感的分析技术。通过双音饱和实验 [31–33]，，可以进一步了解 TLS 对损耗的贡献：其中一个信号用于探测谐振器线形，另一个信号（泵浦）则用于使泵浦音频率处的 TLS 饱和。后者可以偏离谐振频率（f_r），这与光谱孔烧类似 [51]。每个与谐振器耦合的 TLS 都会导致一个取决于 TLS 布居数的复数频移，可通过绝热消去计算得到 [31,32]:

$$\delta f_r = \sum_{j\in\{TLS\}} \frac{\Omega_{0,j}^2}{4} \frac{\langle \hat{\sigma}_z^{(j)} \rangle}{f_j - f_r + i\Gamma_2^{(j)}} \qquad (2)$$

其中 hf_j、 $\Gamma_2^{(j)}$, and $\Omega_{0,j}$ are the energy, decoherence 率以及与谐振器耦合的级系统的耦合率。复数频移的虚部对应于新增损耗，而实部则表示谐振频率的变化公式（2），饱和的双能级系统（$\langle \hat{\sigma}_z \rangle = 0$）不会给谐振器增加损耗，也不会引起图3(a)中的示意图说明了如何利用失谐泵浦音诱导共振频移。假设采用具有均匀双能量分布的标准隧穿模型（STM）[4]，弱探测信号和强泵浦信号，谐振器频移将成频率和功率的函数，如公式（3）所述 [31–33]

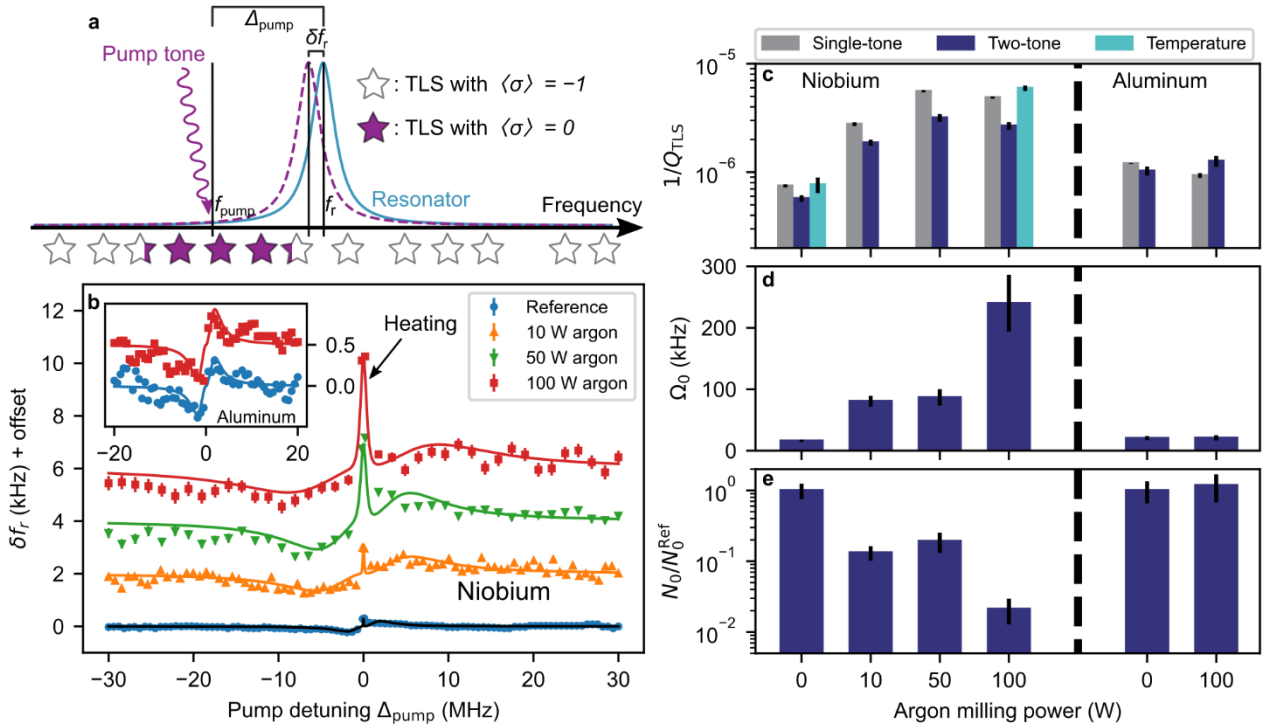

图3. 双音饱和测量结果。(a) 实验示意图：均匀能量分布的双能级系统缺陷（星号）被与谐振器频率失谐Δ 的微波频率泵浦音调部分饱和。(b) 在谐振器频率附近扫描泵浦失谐量，并绘出由此产生的谐振器频率偏移δf_r 。图中展示了 Res 2 在铌和铝（插图）上经不同氩离子铣削处理后的结果。为便于观察，数据沿 y 轴进行了偏移。实线是根据公式 (3) 进行的拟合，并加入了一个由样品自热产生的中心峰。(c) 对比了通过探测功率扫描（图1）、泵浦扫描（b）和温度扫描（附录 C）提取的各样品上 Res 2 的双能级系统损耗。(d) 从泵浦扫描拟合中提取的双能级系统与谐振器的平均耦合，以单光子拉比频率表示。(e) 双能级系统密度相对于氩离子研磨功率的变化。所有误差棒均表示拟合参数的一个标准差不确定度。

$$\delta f_r = \frac{3\sqrt{2}}{8}\frac{f_r \tanh\left(\frac{hf_r}{k_B T}\right)}{Q_{TLS}}\frac{\Delta}{\Omega_0\sqrt{\bar{n}}}\frac{\sqrt{1+\frac{\Omega_0^2\bar{n}}{2\Delta^2}}-1}{\sqrt{1+\frac{\Omega_0^2\bar{n}}{2\Delta^2}}+1}, \qquad (3)$$

其中包含实验可调参数：$\Delta = f_{pump} - f_r$泵浦音与谐振器之间的频率失谐，以及$\bar{n}$ 由泵浦驱动在谐振器内产生的平均光子数（光子数估算见附录 B）。谐振器频移取决于 TLS 损耗（$1/Q_{TLS}$）以及 TLS 的平均单光子拉比频率（Ω_0）。公式（3）的极值位于$\Delta = \mp\Omega_0\sqrt{\bar{n}}/\sqrt{6}$，其位置取决于谐振器与双能级系统之间的耦合。

谐振频移 δf_r 随泵浦失谐 Δ 的变化如图3（b）所示。在每个泵浦频率下，使用矢量网络分析仪测量线形，并确定谐振频率。根据式（9）估算泵浦在失谐 Δ 时谐振器内的平均光子数 $\bar{n}$ 。随后使用式（3）对数据进行拟合，从中提取拟合参数 $1/Q_{TLS}$ 和 Ω_0 。

所有铌器件在图3（b）中都显示出额外的频率蓝移，且在较小的泵浦失谐下，公式（3）的模型无法解释这一现象。当光子数较大时（即驱动频率接近共振时），谐振器样品会局部升温至 $k_B T > hf_r$，使 TLS 热库发生热饱和。公式（4） [34] 将观测到的频率上移解释为温度的函数（Ψ表示双伽马函数）。附录 C 展示了这种温度依赖性，其中绘出了铌参考样品和 100 W 氩离子铣削样品的谐振频率随温度的变化。我们在公式（3）中加入了一个用于考虑热效应的项（拟合后加入），以便在图3（b）的实线中呈现这一效应。

$$\delta f_r(T) = \frac{f_r}{\pi Q_{TLS}}\Re\left[\Psi\left(\frac{1}{2}-\frac{hf}{j2\pi k_B T}\right)-\ln\left(\frac{hf}{2\pi k_B T}\right)\right] \qquad (4)$$

将每个样品上 Res 2 的 TLS 损耗分量 $1/Q_{TLS}$ 与最多三种不同实验所得的结果进行比较，分别标记为单音、双音和温度实验 [图3（c）]。这些数值总体吻合良好，观察到的差异可归因于多种因素。在双音实验中，有限的探测功率（$\bar{n} \approx 10^2$）会导致 TLS 饱和不完全。另一个造成差异的原因是，谐振频率和品质因数对 TLS 热库的敏感度不同。这是因为公式（2）的实部和虚部对 TLS 失谐的依赖关系不同（$f_j - f_r$）。若存在少数主导TLS，或 TLS 能量分布不均匀 [52,53]，，则由共振频率偏移 δf_r 提取的 $1/Q_{TLS}$ 可能与品质因数数据不同。

平均 TLS 单光子拉比频率 Ω_0 随氩离子研磨功率的变化绘于图3 (d) 中。式 (3) 的模型对乘积 $\Omega_0\sqrt{\bar{n}}$较为敏感，其中 $\bar{n}$ 的估算值带有不确定的比例因子（见附录 B），这会导致 Ω_0绝对值的不确定性。这不会改变定性结果，也不会影响器件之间任何定量比值的比较。单光子拉比频率与电偶极矩成正比（$h\Omega_0\sqrt{\bar{n}} = \boldsymbol{E}_{pump}\cdot\boldsymbol{d}$）。尽管光子数存在不确定性，我们从参考样品中提取出的耦合率为 20 kHz（$d/e \in [0.08;\ 8]$ nm，估算方法见附录 E），与文献报道的数值相当 [31–33,54,55]。对于铌器件，我们观察到偶极矩随氩离子研磨功率增加而增大。事实上，偶极矩的增幅（Nb参考样品与 Nb 100 W氩离子铣削样品之间最高达十五倍）超过了说明观测到的损耗所需的增幅 Ω_0，而损耗与 TLS 密度（$\Omega_0\sqrt{\bar{n}}$）及偶极矩（$\bar{n}$）的平方均成正比 Ω_0。结合图3 (c, d) 中的 $\Omega_0\sqrt{\bar{n}} = \boldsymbol{E}_{pump}\cdot\boldsymbol{d}$和 $d/e \in [0$，我们估算 TLS 密度相对于参考样品有所降低 8] ( )[31(); 如图3 (e) 所示，这一降低足以补偿超过观测值的损耗（假设铣削未改变偶极取向分布）。此外，与损耗一样，铝表面上的 TLS 偶极矩在氩离子铣削后没有变化。

（Nb参考样品与 Nb 100 W氩离子铣削样品之间）最多相差十五倍，超过了说明观测到的损耗所需的增幅 $1/Q_{\mathrm{TLS}} \propto d^2 N_0$；损耗与 TLS 密度（$N_0$）及偶极矩（$d$）的平方均成正比 [31]。结合图3 (c, d) 中的 Ω_0 和 $1/Q_{\mathrm{TLS}}$，我们估算 TLS 密度相对于参考样品有所降低 $N_0/N_0^{\mathrm{Ref}} = Q_{\mathrm{TLS}}^{\mathrm{Ref}}\ \Omega_0^{\mathrm{Ref}}\ \ /(\ )^2 (Q_{\mathrm{TLS}}\Omega_0^2)$，如图3 (e) 所示；这一降低足以补偿超过观测值的损耗（假设铣削未改变偶极取向分布）。此外，与损耗一样，铝表面上的 TLS 偶极矩在氩离子铣削后没有变化。

IV. 讨论

铝器件对氩离子铣削工艺配方表现出的韧性，可能是近期全铝制备的重叠结约瑟夫森结量子比特寿命超过 0.1 ms [17] 的原因之一。我们的结果表明，若要用铌尝试类似的制备工艺，就需要格外谨慎。在约瑟夫森结顶部电极图案化过程中进行优化的过蚀刻，可以去除氩刻蚀铌造成的表面损耗，但该顶部电极与铌电路之间的小块接触区域除外。对于钽或氮化钛等其他有前景的超导材料，也需要开展类似研究 [23,24,27]。

对铌样品进行表面分析后发现，氩离子铣削并未改变铌亚氧化物组成。然而，表面粗糙度降低了 0.63 倍，并观察到分层密度变化，整个氧化物厚度中均存在硅的痕迹。参考样品和氩刻蚀样品的金属-氧化物界面铌侧均存在一氧化铌。我们推测，额外的残余损耗可能来自过量准粒子，而这些准粒子由结构发生改变的 Nb_2O_5 层中的磁性杂质（间隙氧和氧空位；已知它们具有净磁化）所致。该层是在氩离子铣削后观察到的 [45,46]。根据图 6(a)（附录 C）所示的结果，参考铌样品与氩刻蚀铌样品的临界温度测量值没有显著变化，因此，金属态一氧化铌引起近邻效应这一替代假设似乎不太可能。为验证我们的假设，未来可采用片上电子自旋共振技术 [56], 、点接触隧穿能谱 [42]，或超导量子干涉器件回路的磁通温度依赖性 [57]，进一步研究铌表面的磁性杂质。

氩离子铣削后，铌表面的 TLS 损耗显著增加。双音饱和实验显示，平均 TLS 的电偶极矩增大了 15 倍，而缺陷密度相应降低了一个多数量级。我们推测，在微观尺度上，平均隧穿缺陷从许多单个带电原子转变为数量更少、但规模更大的集体原子运动团簇，[58] 这是由额外的氩离子铣削表面损伤造成的。原子力显微镜数据也证实了这一观察结果：表面峰谷的面积增大，数量则减少。另一种可能是，氧化铌中的硅可能形成具有更大偶极矩的新型 TLS。然而，氩离子铣削后的铝器件中也存在硅，但其偶极矩并未发生变化。

V. 结论

我们研究了氩离子铣削对铌和铝这两种不同超导体的影响。铌谐振器的微波损耗增加了一个数量级，其中双能级系统损耗和残余损耗均随氩离子研磨功率增加。铝则能抵御相同的铣削条件。X射线光电子能谱分析显示，铌亚氧化物浓度没有变化；扫描透射电子显微镜图像显示，氩离子铣削后氧化铌发生改变，形成以 Nb_2O_5 为主的层状结构。双音谱学测量显示，平均 TLS偶极矩增加了十五倍，而原子力显微镜显示粗糙度降低，表面形貌峰谷面积增大。我们推测，残余损耗源于 Nb_2O_5，内的顺磁性间隙氧和氧空位，而双能级系统则由较大原子团簇的协同运动形成。通过短时干法刻蚀去除非晶氧化铌层，可有效消除所有由氩离子铣削引起的损耗，为采用重叠式约瑟夫森结和铌电路实现兼容代工厂的量子比特制造提供了一条途径。我们的研究结果说明了材料与制造工艺协同优化的重要性；所提出的结合损耗表征与表面分析的超导谐振器研究方法，有助于识别超导电路中的关键损耗机制。

致谢

作者感谢 imec P-line 提供工艺支持，并感谢 Danielle Vanhaeren、Olivier Richard、Laura Nelissen、Kris Paulussen 和 Ilse Hoflijk 提供计量支持。本研究部分经费来自 imec量子计算工业合作计划，以及 ECSEL联合事业（JU）根据拨款协议 No 101007322 提供的资助。JU 获得欧洲地平线2020 研究与创新计划以及德国、法国、比利时、奥地利、荷兰、芬兰和以色列的支持（请访问项目网站www.matqu.eu了解更多信息）。J. VD 感谢佛兰德斯研究基金会–FWO 通过 SB博士奖学金（1S15722N）提供的支持。作者还感谢 W. De Roeck 教授、N. de Leon 教授、R. McDermott 教授、J. Bejanin 博士和 T. Maeder 博士提出的宝贵意见并参与讨论，也感谢 A. Wallraff 教授提供集总元件谐振器设计。

参考文献

[1] N. P. de Leon, K. M. Itoh, D. Kim, K. K. Mehta, T. E. Northup, H. Paik, B. S. Palmer, N. Samarth, S. Sangtawesin, 和 D. W. Steuerman, 《量子计算硬件的材料挑战与机遇》, 《科学》372, eabb2823（2021年）。[2] S. E. de Graaf, S. Un, A. G. Shard, 和 T. Lindström, 《超导量子电路中材料缺陷的化学与结构鉴定》, 《材料量子技术》2, 032001（2022年）。[3] C. Müller, J. H. Cole, 和 J. Lisenfeld, 《理解非晶固体中的双能级系统——来自量子电路的见解》, 《物理学进展报告》82, 124501（2019年）。[4] W. A. Phillips, 《玻璃中的双能级态》（1987年）。[5] P. V. Klimov 等, 《超导量子比特能量弛豫时间的涨落》, 《物理评论快报》121, （2018年）。[6] C. Müller, J. Lisenfeld, A. Shnirman, 和 S. Poletto, 《相互作用的双能级缺陷：超导电路中高频噪声涨落的来源》, 《物理评论B辑》92, （2015年）。[7] T. Thorbeck, A. Eddins, I. Lauer, D. T. McClure, 和 M. Carroll, 《背景电离辐射引起的超导量子比特双能级系统动力学》, arXiv:2210.04780。[8] J. Gao, M. Daal, J. M. Martinis, A. Vayonakis, J. Zmuidzinas, B. Sadoulet, B. A. Mazin, P. K. Day, 和 H. G. Leduc, 《超导微谐振器中双能级系统噪声的半经验模型》, 《应用物理快报》92, 212504（2008年）。

[9] G. Calusine 等, 《开槽超导共面波导谐振器界面损耗的分析与抑制》, 《应用物理快报》112，062601（2018年）。[10] W. Woods, G. Calusine, A. Melville, A. Sevi, E. Golden, D. K. Kim, D. Rosenberg, J. L. Yoder, 和 W. D. Oliver, 《测定超导共面波导谐振器中的界面介质损耗》, 《物理评论应用》12, （2019年）。[11] A. Melville 等, 《氮化钛与铝超导谐振器中介质损耗的比较》, 《应用物理快报》117，124004（2020年）。[12] D. S. Wisbey, J. Gao, M. R. Vissers, F. C. S. da Silva, J. S. Kline, L. Vale, 和 D. P. Pappas, 《金属/衬底界面对超导共面波导射频损耗的影响》, 《应用物理学杂志》108，093918（2010年）。[13] J. Goetz 等, 《超导薄膜微波谐振器中的损耗机制》, 《应用物理学杂志》119，015304（2016年）。[14] A. Nersisyan 等, 《制造低耗散超导量子处理器》, 载于《2019年IEEE国际电子器件会议（IEDM）》（2019年），第31.1.1–31.1.4页。[15] J. Verjauw 等, 《氧化物再生长引起的高品质因数铌谐振器微波损耗研究》, 《物理评论应用》16，014018（2021年）。[16] M. V. P. Altoé 等, 《铌超导电路中损耗的定位与抑制》, 《PRX量子》3，020312（2022年）。[17] J. Verjauw 等, 《迈向可制造的超导量子比特：弛豫时间超过0.1毫秒》, 《npj量子信息》8，1（2022年）。[18] X. Wu, J. L. Long, H. S. Ku, R. E. Lake, M. Bal, 和 D. P. Pappas, 《用于实现高相干性的超导量子比特的重叠结》, 《应用物理快报》111，032602（2017年）。[19] A. Stehli, J. D. Brehm, T. Wolz, P. Baity, S. Danilin, V. Seferai, H. Rotzinger, A. V. Ustinov, 和 M. Weides, 《采用减材结制造工艺制备的相干超导量子比特》, 《应用物理快报》117，124005（2020年）。[20] A. Dunsworth 等, 《超导量子比特亚微米约瑟夫森结制造所致电容损耗的表征与降低》, 《应用物理快报》111，022601（2017年）。[21] C. M. Quintana 等, 《超导量子电路中微加工所致退相干的表征与降低》, 《应用物理快报》105，062601（2014年）。[22] M. Mergenthaler 等, 《表面处理对磁通可调跨蒙量子比特的影响》, 《npj量子信息》7，1（2021年）。[23] A. P. M. Place 等, 《用于超导跨蒙量子比特的新型材料平台：相干时间超过0.3毫秒》, 《自然通讯》12, （2021年）。[24] S. Kim, H. Terai, T. Yamashita, W. Qiu, T. Fuse, F. Yoshihara, S. Ashhab, K. Inomata, 和 K. Semba, 《在硅衬底上外延生长的全氮化物超导量子比特的相干性增强》, 《通讯·材料》2，1（2021年）。[25] C. Wang 等, 《迈向实用量子计算机：寿命接近0.5毫秒的跨蒙量子比特》, 《npj量子信息》8，1（2022年）。[26] J. B. Chang 等, 《使用氮化钛提升超导量子比特的相干性》, 《应用物理快报》103，012602（2013年）。[27] C. R. H. McRae, H. Wang, J. Gao, M. R. Vissers, T. Brecht, A. Dunsworth, D. P. Pappas, 和 J. Mutus, 《使用超导微波谐振器测量材料损耗》, 《科学仪器评论》91，091101（2020年）。[28] M. S. Khalil, M. J. A. Stoutimore, F. C. Wellstood, 和 K. D. Osborn, 《一种用于分析非对称谐振器传输特性的方法及其在超导器件中的应用》, 《应用物理学杂志》111，054510（2012年）。[29] S. Probst, F. Song, P. Bushev, A. Ustinov, 和 M. Weides, 《噪声条件下微波谐振器复杂散射数据的高效稳健分析》, 《科学仪器评论》86, （2014年）。[30] M. Newville, T. Stensitzki, D. B. Allen, 和 A. Ingargiola, 《LMFIT：用于Python的非线性最小二乘最小化与曲线拟合》（2014年）。[31] N. Kirsh, E. Svetitsky, A. L. Burin, M. Schechter, 和 N. Katz, 《利用耦合模式揭示隧穿双能级系统系综的非线性响应》, 《物理评论材料》1，012601（2017年）。[32] T. Capelle 等, 《通过非共振驱动腔体的频移探测双能级系统浴》, 《物理评论应用》13，034022（2020年）。[33] G. Andersson, A. L. O. Bilobran, M. Scigliuzzo, M. M. de Lima, J. H. Cole, 和 P. Delsing, 《双能级系统系综中的声学谱孔燃烧》, 《npj量子信息》7, （2021年）。[34] J. Gao, 《超导微波谐振器的物理》, 博士论文, 加州理工学院，2008年。[35] A. Bilmes, A. Megrant, P. Klimov, G. Weiss, J. M. Martinis, A. V. Ustinov, 和 J. Lisenfeld, 《确定超导量子比特中缺陷的位置》, 《科学报告》10，3090（2020年）。[36] J. Lisenfeld, G. J. Grabovskij, C. Müller, J. H. Cole, G. Weiss, 和 A. V. Ustinov, 《在非晶材料中观测到直接相互作用的相干双能级系统》, 《自然通讯》6，6182（2015年）。[37] L. Faoro 和 L. B. Ioffe, 《相互作用的双能级系统引起的超导谐振器内部损耗》, 《物理评论快报》109, （2012年）。[38] H. Wang 等, 《提高超导共面谐振器的相干时间》, 《应用物理快报》95，233508（2009年）。[39] J. M. Sage, V. Bolkhovsky, W. D. Oliver, B. Turek, 和 P. B. Welander, 《超导共面波导谐振器损耗研究》, 《应用物理学杂志》109，063915（2011年）。[40] J. Halbritter, 《铌的氧化与超导性》, 《应用物理·固体与表面》43，1（1987年）。[41] C. Nico, T. Monteiro, 和 M. P. F. Graça, 《氧化铌与铌酸盐的物理性质：综述与展望》, 《材料科学进展》80，1（2016年）。[42] T. Proslier, J. F. Zasadzinski, L. Cooley, C. Antoine, J. Moore, J. Norem, M. Pellin, 和 K. E. Gray, 《腔体级铌的隧穿研究：表面可能存在磁散射》, 《应用物理快报》92，212505（2008年）。[43] R. Barends, W. K.-G. Daalman, A. Endo, S. Zhu, T. Zijlstra, 和 T. M. Klapwijk, 《NbTiN/Au双层超导谐振器的频率与品质因数》, 《AIP会议论文集》1185，152（2009年）。[44] M. Kharitonov, T. Proslier, A. Glatz, 和 M. J. Pellin, 《含磁性杂质超导体的表面阻抗》, 《物理评论B辑》86，024514（2012年）。[45] T. Proslier, M. Kharitonov, M. Pellin, J. Zasadzinski, 和 Ciovati, 《铌表面顺磁性的证据及其对超导腔体表面阻抗的影响》, 《IEEE应用超导汇刊》21，2619（2011年）。[46] T. F. Harrelson 等, 《阐明非晶氧化超导铌薄膜的局域原子与电子结构》, 《应用物理快报》119，244004（2021年）。[47] E. Sheridan, T. F. Harrelson, E. Sivonxay, K. A. Persson, M. V. P. Altoé, I. Siddiqi, D. F. Ogletree, D. I. Santiago, 和 S. M. Griffin, 《超导铌薄膜中磁无序诱导退相干的微观理论》, arXiv:2111.11684。[48] D. Bach, R. Schneider, D. Gerthsen, J. Verbeeck, 和 W. Sigle, 《铌及化学计量比氧化铌相的EELS——第一部分：等离激元与近边精细结构》, 《显微与微量分析》15，505（2009年）。[49] X. Q. Jia, L. Kang, X. Y. Liu, Z. H. Wang, B. B. Jin, S. B. Mi, J. Chen, W. W. Xu, 和 P. H. Wu, 《用于超导热电子器件的高性能超薄铌膜》, 《IEEE应用超导汇刊》23，4（2013年）。

[50] C. T. Earnest、J. H. Béjanin、T. G. McConkey、E. A. Peters、A. Korinek、H. Yuan 和 M. Mariantoni, 《用于高质量硅/铝超导谐振器的衬底表面工程》, 《超导科学与技术》31，125013（2018年）。[51] A. Corney, 《光学共振与双能级原子》: L. Allen、J. H. Eberly, John Wiley，1975年，£10.80, 《光学与激光技术》8，281（1976年）。[52] L. Faoro 和 L. B. Ioffe, 《非晶材料中双能级系统的相互作用隧穿模型及其对退相干和超导微谐振器中噪声的预测》, 《物理评论B辑》91（2015年）。[53] S. E. de Graaf、L. Faoro、L. B. Ioffe、S. Mahashabde、J. J. Burnett、T. Lindström、S. E. Kubatkin、A. V. Danilov 和 A. Ya. Tzalenchuk, 《俘获准粒子导致超导量子器件中的双能级系统》, 《科学进展》6，eabc5055（2020年）。[54] R. Barends 等, 《适用于可扩展量子集成电路的相干约瑟夫森量子比特》, 《物理评论快报》111，080502（2013年）。[55] J. Lisenfeld、A. Bilmes、A. Megrant、R. Barends、J. Kelly、P. Klimov、G. Weiss、J. M. Martinis 和 A. V. Ustinov, 《利用电场光谱学研究跨蒙量子比特中的材料缺陷》, Npj Quantum Inf. 5，1（2019年）。[56] S. E. de Graaf、A. A. Adamyan、T. Lindström、D. Erts、S. E. Kubatkin、A. Ya. Tzalenchuk 和 A. V. Danilov, 《直接识别 Al 2 O 3 上的稀释表面自旋：量子电路中磁通噪声的起源》, 《物理评论快报》118（2017年）。 [57] S. Sendelbach、D. Hover、A. Kittel、M. Mück、J. M. Martinis 和 R. McDermott, 《毫开尔文温度下超导量子干涉器件中的磁性》, 《物理评论快报》100（2008年）。[58] V. Lubchenko 和 P. G. Wolynes, 《低温玻璃的内禀量子激发》, 《物理评论快报》87，4（2001年）。[59] D. F. Walls 和 G. J. Milburn, 《光学腔的输入–输出表述》, 载于《量子光学》, D. F. Walls 和 G. J. Milburn 编（施普林格，柏林、海德堡，2008年）, 第127–141页。[60] D. C. Mattis 和 J. Bardeen, 《正常金属和超导金属中的反常趋肤效应理论》, 《物理评论》111，412（1958年）。[61] J. M. Martinis 等, 《介质损耗导致约瑟夫森量子比特退相干》, 《物理评论快报》95，210503（2005年）。[62] B. Sarabi、A. N. Ramanayaka、A. L. Burin、F. C. Wellstood 和 K. D. Osborn, 《利用电路量子电动力学提取的单个双能级缺陷的投影偶极矩》, 《物理评论快报》116（2016年）。

附录 A：实验装置

本文报告的所有微波测量均在 Bluefors LD 稀释制冷机内进行，器件固定在 10 mK 混合室上。样品架、电缆和连接器均经过仔细的磁场测试，并在样品周围额外采用了低温磁屏蔽。图 4 展示了整个测量装置的示意图；通过连接到一条输入线和一条输出线的机械开关，我们可以在 6 个不同样品之间进行切换。

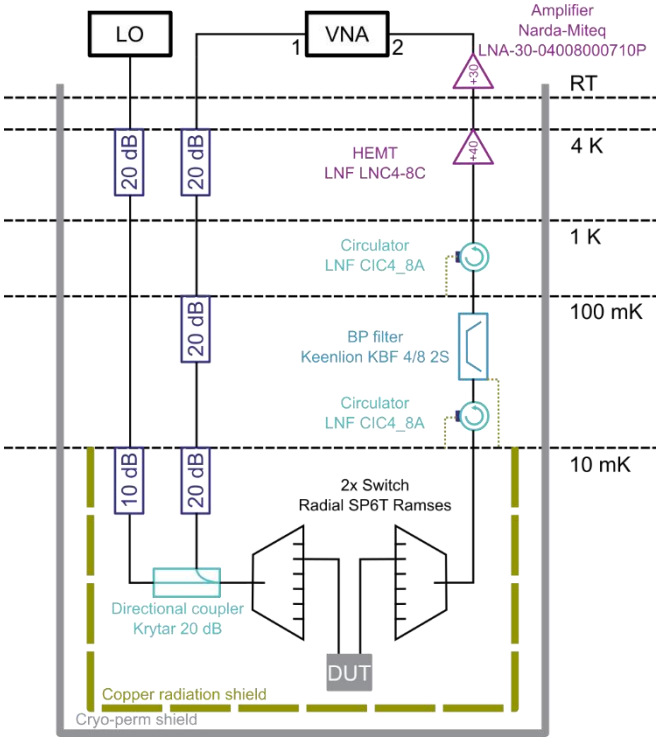

图 4. 本研究所用实验装置的示意图。

我们使用 Keysight P5004A 流线型 USB 矢量网络分析仪来探测谐振器，并使用 Keysight M9347A 本地振荡器 or 以产生泵浦音调信号。

附录 B：腔耦合谐振器

本研究测量的样品是尺寸为（7 mm × 4.3 mm）的硅芯片，上面有 6 种不同的平面集总元件谐振器结构，如图 5（a）中的显微镜图像所示。如图 5（b）所示，芯片未使用黏合剂或引线键合，直接置于铝腔内，腔体侧面设有两个输入-输出（I/O）端口。非磁性 SMA 面板安装连接器可旋接到腔体端口上，铜垫片（图中未示出）可用于调节中心针插入深度。腔体最低频率的 TE_{101} 模式通过这些 I/O 端口激发并读出，进而与芯片上的谐振器结构进行无线耦合。关于谐振器设计的更多细节，请参阅文献 [15]。

拟合模型腔耦合谐振器

系统由方程（5）给出的哈密顿量描述（其中采用了旋波近似），其中 $f_c = \omega_c/2\pi \approx 8$ GHz 为腔体 TE_{101} 谐振频率，$f_r = \omega_r/2\pi \approx 5$ GHz 为 LER 共振频率，$g/2\pi \approx 50$ MHz 为腔体与谐振器之间的耦合率。腔体 TE_{101} 模式和谐振器模式的产生与湮灭算符对易关系分别为 $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$ 和 $[\hat{b}, \hat{b}^\dagger] = 1$ 。

$$\hat{H} = \hbar\omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar\omega_r \hat{b}^\dagger \hat{b} + \hbar g\left(\hat{a}\hat{b}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{b}\right) \tag{5}$$

芯片上的谐振器与腔体之间的耦合通过腔模实现，并忽略了 I/O 端口已脱与小型谐振器结构之间的任何直接耦合。描述这些输入-输出关系的时域朗之万方程见方程（6），其中 κ_A 是与 I/O 端口 A 的耦合率，κ_B 是与 I/O 端口 B 的耦合率，γ_c 是腔体的内部损耗率，γ_r 是谐振器 [59] 的内部损耗率。

$$\begin{cases} \dfrac{d\hat{a}}{dt} = \dfrac{-i}{\hbar}[\hat{a}, \hat{H}] - \dfrac{\kappa_A + \kappa_B + \gamma_c}{2}\hat{a} + \sqrt{\kappa_A}\hat{A}_{in} + \sqrt{\kappa_B}\hat{B}_{in} \\ \dfrac{d\hat{b}}{dt} = \dfrac{-i}{\hbar}[\hat{b}, \hat{H}] - \dfrac{\gamma_r}{2}\hat{b} \end{cases} \tag{6}$$

在端口 A 和 B 处，边界条件 $A_{in} + A_{out} = \sqrt{\kappa_A}\hat{a}$ and $B_{in} + B_{out} = \sqrt{\kappa_B}\hat{b}$ 。该组方程可通过傅里叶变换求解，得到传输散射参数 S_{21} 的以下公式（7），其中我们假设对称

输入/输出耦合 $\kappa_A = \kappa_B = \kappa$，且超导腔壁（高纯铝）的损耗可忽略不计 $\gamma_c \ll \kappa$。我们定义了 $\Delta_c = \omega - \omega_c$ 和 $\Delta_r = \omega - \omega_r$。

$$S_{21} = \frac{B_{out}}{A_{in}}\bigg|_{B_{in}=0} = \frac{\kappa}{\kappa - i\Delta_c}\left(1 + \frac{g^2}{(\kappa - i\Delta_c)(\gamma_r/2 - i\Delta_r) + g^2}\right) \tag{7}$$

在 $\Delta_c \gg g, \kappa \gg \gamma_r, \Delta_r$ 这一工作区间内，我们可以从谐振器的角度定义有效耦合率 $\kappa_{eff} = \frac{g^2}{(\omega_r - \omega_c)_2}\kappa$，并将式 (7) 近似为：

$$S_{21} \approx \frac{-i\kappa}{\Delta_c} + \frac{i\kappa_{eff}}{\omega - \tilde{\omega}_r + i\frac{2\kappa_{eff} + \gamma_r}{2}} \tag{8}$$

$$\text{with } \tilde{\omega}_r = \omega_r + \frac{g^2}{\omega_r - \omega_c}$$

使用 V 输出线测量实验数据。我们在拟合公式中将由于阻抗失配、衰减和通过 transmission through the crystal input and 增益和相移，据此提取出两个关注的参数 ω_r 和 $\kappa_{tot} = 2\kappa_{eff} + \gamma_r$。

此外，我们调整输入/输出引脚以实现弱耦合 $\kappa_{eff} \ll \gamma_r$，使得加载半高全宽线宽完全由内部损耗决定（$\kappa_{tot} \approx \gamma_r$）。图 5 (c) 展示了应用于实验数据的拟合模型，其中幅值图中有明显的“峰和谷”，这是腔分量与谐振器分量相互干涉的结果。与耦合到馈线的悬挂式共面波导谐振器相比，弱耦合区会使低功率下的测量变得缓慢，这是此类腔耦合谐振器系统目前的一项显著缺点 [29]。

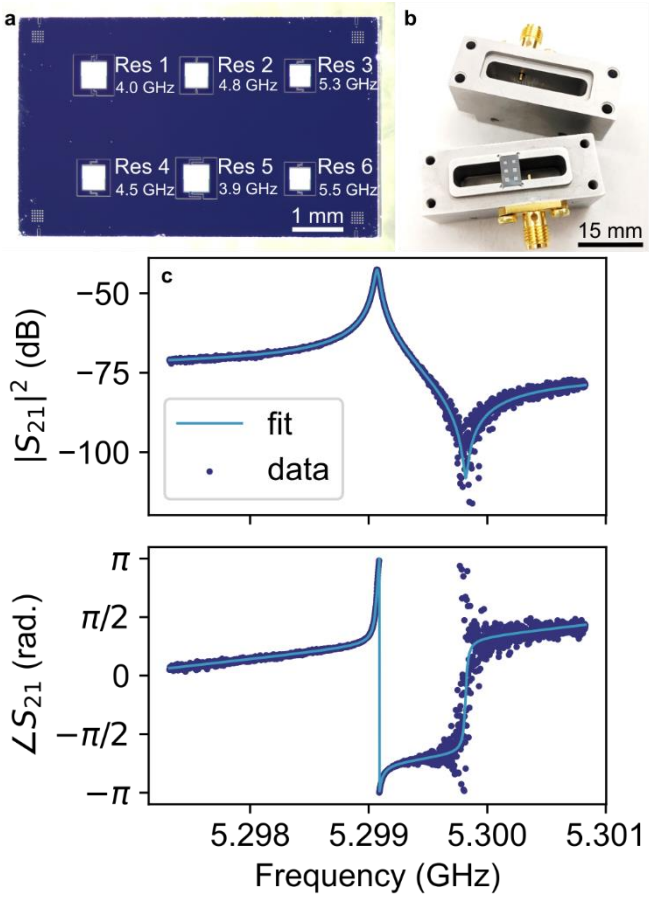

图 5. (a) 具有六种不同超导集总元件谐振器设计的硅芯片显微镜图像。该芯片装载在铝腔体 (b) 内，腔体配有可调节的输入/输出引脚，并在 8 吉赫兹处具有 TE_{101} 模式，从而便于进行欠耦合读出。(c) 使用矢量网络分析仪测量并通过方程（8）拟合的 S_{21} 示例迹线（幅度和相位）。

光子数提取谐振器内由

所施加输入微波产生的光子数根据方程（6）计算，并可近似表示为方程（9），其中 $P_{in} = \langle A_{in}^{\dagger} A_{in} \rangle \hbar\omega_r$ 为到达腔体 A 端口的微波功率。

$$\bar{n} = \langle \hat{b}^{\dagger}\hat{b} \rangle \approx \frac{P_{in}}{\hbar\omega_r}\frac{4\kappa_{eff}}{(2\kappa_{eff} + \gamma_r)^2 + 4(\omega - \omega_r)^2} \tag{9}$$

光子数估算取决于统计量（$P_{in} = G_{in}P_{VNA}$）和谐振器的耦合率 of the input line 在测量中对超导量子比特进行的其他实验结果（这些实验能够分辨光子数；数据未

提供，但可按要求获取），估算得到矢量网络分析仪输入线的输入衰减为 $\kappa_{\mathrm{eff}} = \kappa g^2/\Delta^2 \gg \gamma_{\mathrm{r}}$ dB，本振泵浦线的输入衰减为 g dB。在过耦合情形下，通过测量谐振器线宽，实验估算了谐振器的有效耦合率；此时输入/输出引脚完全插入腔体。根据这些测量结果，提取了每种谐振器设计的耦合率，并汇总于表 II。

表 II. 实验提取的片上谐振器与腔体 TE_{101} 模之间的耦合速率，如 图 5 所示。

谐振器名称 Res 1		Res 2	Res 3	Res 4	Res 5	谐振器 6
$g/2\pi$ （MHz）	55	30	25	45	35	40

本文全程使用了这些报告的 g 和 G_{in} 数值，并假定它们在不同降温过程和不同样品（设计及腔体尺寸相同）之间完全一致。输入线路衰减不准确或耦合率数值有误，可能会导致光子数估算出现误差，但不会改变本文得出的任何结论。

附录 C：温度依赖性

取自与本文测量的谐振器芯片相同的 300 毫米晶圆上的两个传输电桥结构（$L \times W \times H = 20 \times 0.2 \times 0.1\ \mu m^3$），分别采用参考工艺和 100 瓦氩气工艺制备。未发现铣削对铌的超导特性有显著影响。图 6(a)展示了两个样品在零外加磁场下的超导临界温度，为 9 K。随后在不同外加磁场下重复测量，并据此提取金兹堡-朗道（GL）相干长度 $\xi(T=0)$。在脏极限下，使用 BCS 相干长度 $\xi_0 = 38$ nm 计算电子平均自由程 l_{el} 。这些测量在鲁汶大学物理系进行，提取的参数值见表 III。

表 III. 采用参考后处理工艺或 100 W 氩离子铣削后处理工艺处理的铌薄膜传输电桥结构的超导参数比较。我们报告临界温度（T_{c}）、GZ 相干长度（$\xi(T=0)$）和电子平均自由程（l_{el}）

	铌参考样品	铌，100 W 氩
T_{c} (K)	9.04	9.00
$\xi(T=0)$（纳米）	11.6	12.3
l_{el} (nm)	4.84	5.44

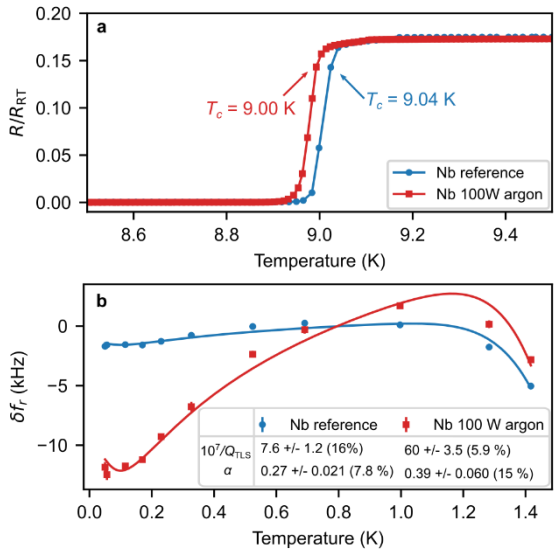

图 6. 参考铌和氩刻蚀铌的温度依赖性。(a) 使用与所测谐振器芯片采用相同工艺处理的传输电桥结构测得的电阻，并以室温电阻归一化。临界温度 T_{c} 取自超导转变中电阻达到 10 K 时电阻的 90% 处。(b) 各样品上 Res 2 的谐振频率随温度的变化。实线为使用公式 (10) 得到的拟合曲线；对应的 TLS 损耗（$1/Q_{\mathrm{TLS}}$）和动能电感比（α）拟合参数及其标准差列于图例中。

图 6 (b) 比较了铌参考样品和经过 100 W 氩铣削的样品中 Res 2 谐振频率偏移随温度的变化。温度由混合腔加热器控制，并通过温度传感器记录。根据式 (10) [34]，谐振频率的温度依赖性由双能级系统和准粒子贡献决定。

$$\delta f_{\mathrm{r}}(T) = \frac{f_{\mathrm{r}}}{\pi Q_{\mathrm{TLS}}} \Re\left[\Psi\left(\frac{1}{2} - \frac{hf}{j2\pi k_{\mathrm{B}} T}\right) - \ln\left(\frac{hf}{2\pi k_{\mathrm{B}} T}\right)\right] - \frac{\alpha f_{\mathrm{r}}}{2} \frac{X_S(T) - X_S(0)}{X_S} \tag{10}$$

其中 Ψ 为双伽马函数， α the kinetic inductance fraction X_S and the surface inductance L_{s} 为局域极限或脏极限，表面阻抗由 [34]给出：

$$Z_S = R_S + jX_S = \frac{j\mu_0\omega_r}{\sqrt{\frac{\omega_r l_{el}}{\sigma_n v_F \lambda_0^2}(\sigma_2(T) + j\sigma_1(T))}} \tag{11}$$

其中 v_F 为费米速度，λ_0 为伦敦穿透深度 $\sigma_1(T)$ penetration depth, and $\sigma_2(T)$ 由 Mattis-Bardeen 积分 [60]给出。在所关注的超导能隙较大 $\Delta_0 \gg \hbar\omega_r$ 的情形下，这些积分可以化为解析形式 k_BT [34]:

$$\frac{\sigma_1(T)}{\sigma_n} = \frac{4\Delta_0}{\hbar\omega} e^{-\frac{\Delta_0}{k_BT}} \sinh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_BT}\right) K_0\left(\frac{\hbar\omega}{2k_BT}\right) \tag{12}$$

$$\frac{\sigma_2(T)}{\sigma_n} = \frac{\pi\Delta_0}{\hbar\omega}\left(1 - \sqrt{\frac{2\pi k_BT}{\Delta_0}} e^{-\frac{\Delta_0}{k_BT}} - 2e^{-\frac{\Delta_0}{k_BT}} e^{\frac{-\hbar\omega}{2k_BT}} I_0\left(\frac{\hbar\omega}{2k_BT}\right)\right) \tag{13}$$

当 I_0 和 K_0 时，修改了 0th 阶 Bessel functions of the first and second kind respectively.

图 6 (b) 中的拟合采用方程 (10) - (13)，并将 $1/Q_{TLS}$ 和 α作为自由拟合参数。

附录 D：表面分析

XPS

在 Imec 使用 Ulvac - Phi VersaProbe III 仪器和 Ulvac – Phi QUANTES 仪器进行了多次 X射线光电子能谱测量。使用 QUANTES 仪器时，测量分别在 45°（表面灵敏度更高）和 90°（体相灵敏度更高）的角度下进行，采用能量为 1486.6 eV 的单色光子束，光斑尺寸为 50 微米。使用 VersaProbe III 仪器时，分析采用相同的 1486.6 eV 光子束，在 45°角下进行，光斑尺寸为 100 微米，并使用气体团簇离子束（GCIB）溅射枪进行表面清洁。我们对采用前文所述不同氩离子铣削功率（基准、10 W、50 W 和 100 W）制备的样品（谐振器芯片和整片铌芯片）的铌表面进行了 X射线光电子能谱测量。

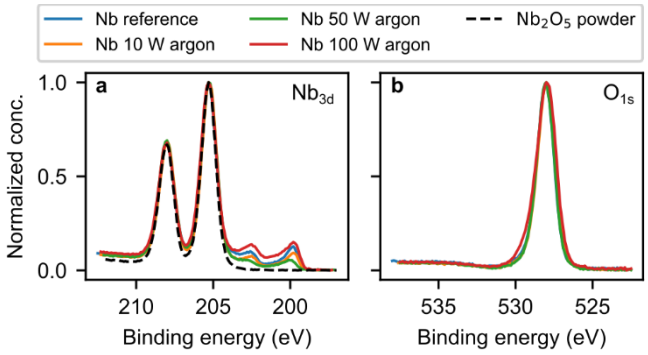

图 7. Nb_{3d} 和 O_{1s} 结合能处的 XPS 谱。对这些实验数据进行混合高斯-洛伦兹峰拟合，并调整混合百分比、峰宽和强度，以提取正文图2 (f) 中报告的相对亚氧化物浓度。所示数据对应于整片铌样品（分别经过不同氩离子铣削条件处理）以及用于仪器校准的高纯度（>99.99%）Nb_2O_5粉末。

我们尝试在 O_{1s} 峰中寻找间隙氧的证据，因为它可能会在 XPS 谱中表现为侧峰。然而，使用 GCIB 仔细清洁表面以去除吸附碳和氢（其氧化物通常具有不同的结合能）后，未观察到 O_{1s} 峰随氩离子铣削条件变化而发生显著变化。

扫描透射电子显微镜样品

在 Helios 450Hp 中，样品在室温下镀覆碳层，以便进行聚焦离子束提取。图像由工作电压为 200 kV 的 Titan G2 60-300 拍摄。

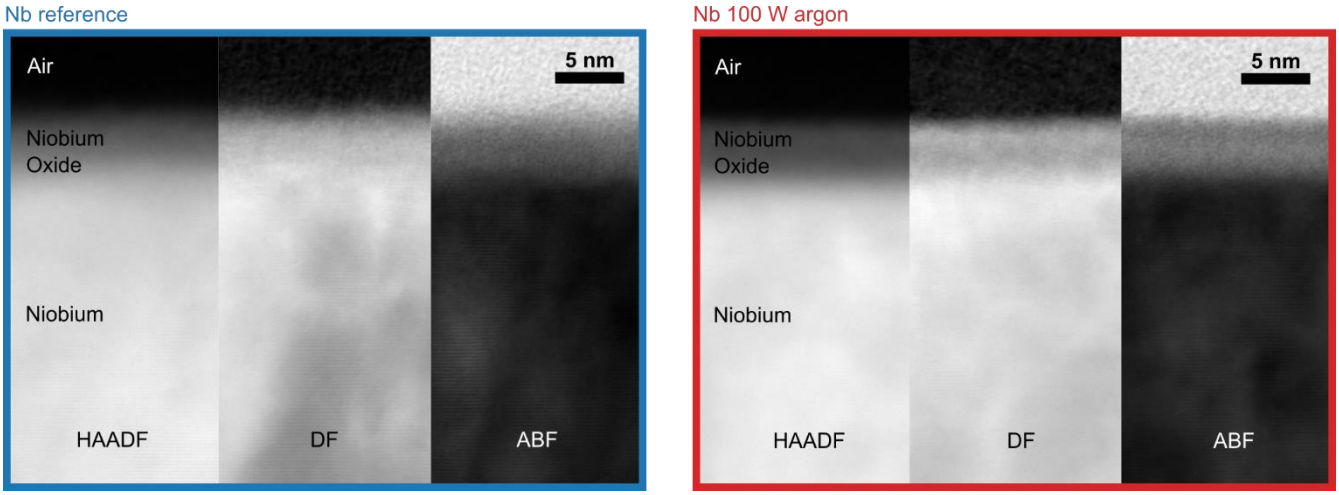

图 8. 参考样品（a）和经过前文所述 100 W 氩离子铣削工艺处理的样品（b）的铌-空气界面横截面扫描透射电子显微镜图像。通过三种模式检测散射电子：高角环形暗场（高角环形暗场）、中角暗场（暗场）和低角环形明场（环形明场）。

高角环形暗场图像的亮度在一阶近似下与〈Z〉² 成正比，其中 Z 是原子序数；亮度也与样品厚度呈线性关系。图2 (a, b) 的能量色散X射线能谱曲线显示，氩离子铣削处理后，氧化铌内部存在硅的痕迹。Si 的原子序数 ($Z = 14$) 介于 Nb ($Z = 41$) 和 O ($Z = 8$) 之间，而且 Si能量色散X射线谱含量贯穿整个氧化物**厚度，因此我们认为它并未**造成 100 W 氩样品中观察到的层状结构。这些层在中角度和低角度扫描透射电子显微镜图像中也清晰可见（其衬度对密度和结晶度的变化敏感），这表明氧化物中观察到的各层之间存在结构差异，而非成分差异。沿聚焦离子束样品厚度方向的表面粗糙度也会影响这些薄层的可见性。在 100 W 氩离子铣削样品较粗糙区域拍摄的图像中，不再能看到所示的层状氧化物（数据未展示，但可应要求提供）。

AFM

图2（e、g）所示的原子力显微镜测量，是使用 ICON PT 仪器和 OMCL-AC160TS-R3探针在谐振器结构的铌表面进行的。

附录 E：双能级系统偶极矩估算

我们使用 Ansys HFSS 的本征模求解器，对 Res 2 设计的电场分布进行了数值模拟，总场能量为一个谐振光子 $\mathrm{h}f_{\mathrm{r}} \approx 3.18 \times 10^{-24}\,J$。提取的场强在器件各处介于 0.01 V/m 至 1 V/m 之间（图 9）。我们可以利用这些场值估算平均双能级系统偶极矩，计算方式为 $d = \mathrm{h}\Omega_0/E_{(\vec{n}=1)}$，如表 IV所列。尽管光子数估算存在不确定性，且采用了粗略近似，我们仍得到了合理的双能级系统偶极矩数值 [55,61,62]。

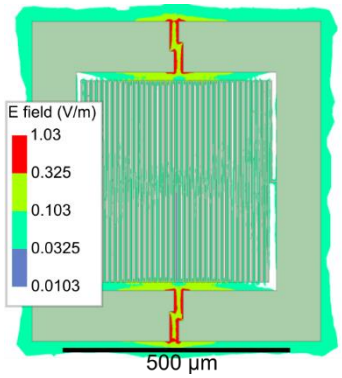

图 9. 在 4.8 吉赫兹下，一个谐振光子的总能量对应的 Res 2 模拟电场分布。

表IV. 使用正文（图3）中所述的双音光谱技术测量的各样品平均 TLS 缺陷的单光子拉比频率（Ω_0）。误差值对应于提取的拟合参数 Ω_0 的一个标准差不确定度。

	铝参考	铝样品，100 W氩离子研磨	Nb参考样品	铌 10 瓦氩气	铌 50 瓦氩气	铌 100 瓦氩气
Ω_0(千赫兹)	20.4 ± 3.4	20.9 ± 4.3	16.2 ± 1.9	80.4 ± 9.0	86.8 ± 13	240 ± 46
†d/e (纳米)	0.84	0.86	0.67	3.3	3.6	9.9

† 对于电场值 $E = 0.1$ V/m（见图 9）。