压力诱导的金属-绝缘体相变和金红石 OsO_2 单晶中的顺磁体-交替磁体相变

Guojian Zhao[1,6,#], Ziang Meng[1,6,#], Wencheng Huang[2,8,#], Peixin Qin[1,6,*]、Shaoheng Ruan[3]、、Liang Ma[3]、、Lin Zhu[3]、、Yuzhou He[3]、、Li Liu[1,6]、、Zhiyuan Duan[1,6]、、Xiaoning Wang[7]、、Hongyu Chen[1,6]、、Sixu Jiang[1,6]、、Jingyu Li[1,6]、Xiaoyang Tan[1,6]、、K. Ozawa[5]、、Bosen Wang[3]、、Jinguang Cheng[3]、、Qinghua Zhang[3,*]、Jianfeng Wang[4,*]、Chaoyu Chen[2,*]、Zhiqi Liu[1,6,9,*]

[1]材料科学与工程学院，北京航空航天大学，北京 100191，中国[2]松山湖材料实验室，东莞 523808，中国[3]北京凝聚态物理国家研究实验室，中国科学院物理研究所，北京 100190，中国[4]物理学院，北京航空航天大学，北京 100191，中国[5]材料结构科学研究所，高能加速器研究机构（KEK），筑波，茨城 305-0801，日本[6]热带海洋工程材料及评价国家重点实验室，北京航空航天大学，北京 100191，中国[7]分析测试中心，北京航空航天大学，北京 100191，中国[8]物理系和量子功能材料国家重点实验室，南方科技大学，深圳 518055，中国[9]主要联系人 *通信：qinpeixin@buaa.edu.cn; zqh@iphy.ac.cn; wangjf06@buaa.edu.cn; chenchaoyu@sslab.org.cn;zhiqi@buaa.edu.cn[#]这些作者对本项工作作出了同等贡献。

摘要

具有补偿自旋结构和非相对论自旋劈裂的交变磁体已成为一类新型磁性材料。理论预测金红石 OsO_2 具有交替磁性，但合成方面的挑战限制了实验研究。我们成功合成了高质量的金红石 OsO_2单晶。电输运研究表明，OsO_2 具有很高的导电性，并呈现出明显的费米液体行为，说明电子-电子散射很强。磁学测量显示，这些单晶呈各向同性顺磁性。密度泛函理论计算表明，体相 OsO_2 呈半金属态，具有共存的电子口袋和空穴口袋，其磁基态强烈依赖于位点库仑关联U。角分辨光电子能谱研究发现，体能带尚未呈现交变磁性自旋劈裂。有趣的是，电阻率对压力相当敏感：在 44 吉帕下发生了明显的金属-绝缘体转变。杂化泛函计算表明，施加压力会显著增大 Hubbard U 值，驱动体系从顺磁金属转变为交变磁金属，并最终转变为交变磁绝缘体。这些发现表明，调节外加压力能够有效调控 OsO_2, 的磁基态，为在该材料中实现交替磁性提供了一条途径。

关键词

OsO_2, 交变磁体、费米液体、金属氧化物、压力效应

引言

交变磁体不同于铁磁体和传统反铁磁体，是一类新兴的磁有序材料，其特征是晶体对称性导致实空间和动量空间中的自旋极化交替变化。这类材料的反铁磁磁矩彼此抵消，但具有较大的非相对论自旋劈裂。[1–3] 金红石型金属氧化物 RuO_2 是首个在理论上预测的交变磁体。[4] Šmejkal 等人的这一开创性预测基于块体 RuO_2[5] 和薄膜 RuO_2,[6] 中反铁磁序的实验证据，并由此推动了后续研究。

然而，块体 RuO_2 中是否存在长程磁序一直存在激烈争论。[7–15] 另一方面，薄膜 RuO_2 材料的情况更为复杂，因为表面/界面处的对称性破缺、应变、表面/界面载流子耗尽以及更高的缺陷密度，都可能显著改变其磁基态。因此，针对薄膜 RuO_2, 的一系列实验结果，包括反常霍尔效应、[16–19] 自旋劈裂力矩、[20–22] 角分辨光电子能谱（ARPES）检测到的自旋劈裂、[23] 光学二次谐波产生[24] 和自旋极化的光激发、[25] 逆自旋劈裂效应、[26,27] X射线磁线二色性、[28] 依赖于 Néel 矢量的隧穿磁电阻[29] 以及最新发现的自旋劈裂磁电阻效应，[30] 都与交错磁图像完全一致。

OsO_2, 与 Ru 元素属于同一族的 Os 元素，其性质与 RuO_2, 十分相似，通常以金红石结构结晶（图 1A）。尽管 RuO_2 已得到广泛研究，并应用于能源领域，例如作为析氧反应的电催化剂，[31] 关于 OsO_2 单晶的实验研究仍然有限[32,33]。这在一定程度上是由于单晶合成过程中间产物 OsO_4 具有挥发性和毒性。OsO_2 颇具吸引力之处在于近期的一项理论研究[34] 预测其具有与 RuO_2相似的交错磁行为。该理论研究预测了由晶体对称性驱动的反铁磁性和自旋劈裂。因此，实验合成 OsO_2 单晶并探索其各种物理性质，具有重要意义。

在本研究中，我们通过两步化学气相输运法成功合成了高质量金红石 OsO_2 单晶（图 1B），克服了其挥发性且有毒中间产物所带来的长期挑战。通过全面的电输运测量，我们证实 OsO_2 具有优异的金属导电性，且明显的费米液体行为可持续至 140 K，表明存在强电子-电子关联。磁性表征显示其具有顺磁行为，未发现长程磁序的证据。密度泛函理论计算结合角分辨光电子能谱进一步表明，OsO_2 的磁基态对位点库仑关联U高度敏感，使其处于顺磁-交变磁相边界附近。此外，在金刚石对顶砧施加 44 吉帕压力时，OsO_2 的电阻率呈现显著的金属-绝缘体转变。 根据杂化泛函计算，该压力显著增大U，从而诱发一系列相变：首先由顺磁金属转变为交变磁金属，随后转变为交变磁绝缘体。我们的研究确立了外加压力是调控 OsO_2 磁基态并诱导交替磁性的一种有效而直接的手段。更广泛地看，与基于 RuO_2的体系类似，要在 OsO_2 中实现交替磁性，需要对其磁序进行外部调控，而压力、化学掺杂、缺陷工程、外延应变或异质结构化等多种方法均可实现这种调控。

结果与讨论

图 1C 展示了几块 OsO_2 样品的光学图像，其典型尺寸为 0.5–2 毫米，呈闪亮的金色。几乎所有样品都具有一个或多个发育良好的平坦晶面，这是单晶的典型特征。图 1图 1D 所示的单块样品的 X 射线衍射图谱展现了其单晶特征，主要衍射峰与金红石 OsO 的 (101)晶面完全吻合$_2$。这表明金红石 OsO_2 单晶已成功合成。Rietveld精修（图 1E）得到的晶格常数为 $a = b = 4.4955$ Å，且 $c =$

3.1827 Å。这些数值与我们的密度泛函理论弛豫结构（a = b = 4.522 Å，c = 3.217 Å）34,35以及此前报道的金红石 OsO_2, 晶格参数（包括 a = b = 4.4968 Å，c = 3.1820 Å[32] 和 a = b= 4.500 Å，c = 3.184 Å，[33] ）非常吻合，证实了样品的结构一致性和高结晶度。透射电子显微镜表征（图 1F-M），包括选区电子衍射、高分辨原子成像、电子能量损失谱、高角环形暗场成像和元素映射，进一步证实了样品的金红石相，并表明该单晶质量很高。

此外，我们还利用 X 射线光电子能谱和拉曼光谱分析了 OsO_2 单晶（图 1N-Q）。在约 51.0 eV 和 53.85 eV 的结合能处分别观察到 Os $4f_{7/2}$ 和 $4f_{5/2}$ 芯能级峰，证实了 Os^{4+} 价态。这些数值与此前针对 OsO_2 单晶的 XPS 实验研究 [33,36] 结果一致，表明样品接近化学计量组成。值得注意的是，O 1*s* 谱在 ~532.5 eV 处也出现了一个较高结合能的组分，该组分可能因空气暴露和表面清洁等表面敏感效应而增强，因此应归因于表面相关氧物种，而非体相非化学计量。位于 544、683 和 725 cm^{-1} 的拉曼位移峰分别对应金红石 OsO_2的 E_g、A_{1g}和 B_{2g}振动模式。这些数值与针对 OsO_2 单晶开展的偏振拉曼测量结果吻合良好，其中 E_g = 544 cm^{-1}、A_{1g} = 685 cm^{-1}和 B_{2g} = 726 cm^{-1}.[37] 由于我们的拉曼光谱是在未进行偏振选择的情况下采集的，因此未能分辨出 184 cm^{-1} 附近较弱的 B_{1g} 振动模式，这与非偏振拉曼测量的预期一致。所有这些数据均证实了我们的单晶具有正确的物相。

图2A 展示了沿 *a* 轴测得的温度依赖线性四探针电阻率（晶体学轴是根据对聚焦离子束铣削制备的单晶微区进行透射电子显微镜选区电子衍射确定的）。如图所示，典型 OsO_2 单晶的室温电阻率约为 30。7 μΩ·cm，对于一种氧化物而言相对较低。该数值低于早期关于 OsO_2 单晶的研究报道值（~60。0 μΩ·cm），[32] 但高于先前工作报道的约16 μΩ·cm 的室温电阻率。[33] 这些数值基本处于同一数量级。因此，我们认为不同研究中 OsO_2 单晶电阻率的差异主要源于生长条件、缺陷散射和测量配置的不同，而非本征电子性质存在定性差异。其数值也与块体 RuO_2 单晶的室温电阻率（~35。2 μΩ·cm）相当。[38] 此外，在 300 至 2 K 的整个温度范围内，金属输运行为始终存在；剩余电阻率比（*RRR*）定义为 ρ(300K)/ρ(2 K)，约为 13.2。

值得注意的是，OsO_2 单晶的低温电阻率呈现出明显的二次温度依赖。这是费米液体输运[39] 的标志，表明低温下电子-电子散射在OsO_2 中起主导作用。氧化物是强关联电子体系，其自旋、电荷、轨道和晶格自由度相互竞争并相互纠缠。在某些金属氧化物中，低温下电子-电子散射可能占据主导，从而导致费米液体行为。例如，电子掺杂钙钛矿$SrTiO_3$,[40] 、电子掺杂铜氧化物$Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-x}$、[41]以及非寻常超导体$Sr_2RuO_4$,[42] 也同样表现出费米液体行为。

如图2B所示，图中绘出了140 K以下电阻率随温度平方的变化关系。明显的线性曲线表明，OsO_2 单晶在较宽的温度范围内（最高可达140 K）呈现费米液体行为，这远高于$SrTiO_{3-x}$ (~80 K)[40] 和超导Sr_2RuO_4 (~30 K)的费米液体温度上限。[42] 这表明OsO_2 中的电子-电子散射相当强，并且在140 K以下占主导；高于这一温度时，电子与声子的散射超过电子-电子散射，导致电阻率的T^2 依赖关系偏离线性。拟合得到的费米液体输运线性系数约为3。24×10^{-4} μΩ· cm· K^{-2}，比非强关联金属的费米液体系数大一个数量级

Pd[43] (~3.1×10^{-5} μΩ· cm· K^{-2})。值得注意的是，这一数值也显著高于块体RuO_2单晶的报道值（~5×10^{-5} μΩ· cm· K^{-2}），[44] 表明OsO–中的电子-电子关联更强，且有效准粒子质量更大[45]。由于费米液体系数与有效质量的平方成正比，系数的增大反映了OsO_2中更强的关联效应。此外，利用物性测量系统的氦-3模块进行的更低温电阻率测量显示，从2.3 K降至0.37 K期间，OsO_2单晶的电阻率几乎保持恒定，没有出现超导等电学相变的迹象（图2C）。

随后进行的最高达 8 T 的霍尔测量表明，在 300 至 10 K 的整个温度范围内，主要载流子均为空穴。如图2D 所示，室温下的载流子浓度为~4。45×10^{22} cm^{-3}。随着温度降低，载流子浓度略有下降，在 10 K 时达到~2。72×$10^{22}$$cm^{-3}$。该数值高于块体 RuO_2 单晶（10 K 时为~8。5 × 10^{21} cm^{-3} ）的载流子浓度[15]，进一步凸显了这两种金红石氧化物在电子结构和输运机制方面的差异。冷却过程中载流子浓度并未呈指数下降，即未出现载流子冻出效应，这表明载流子并非主要来自热激活缺陷掺杂。[46]因此，高达10^{22} cm^{-3} 量级的空穴载流子浓度应源于费米能级处较大的空穴口袋态密度。

相应的迁移率 μ 随温度的变化如图2E所示。室温迁移率为 ~4.57 $cm^2·V^{-1}·s^{-1}$，与基于 $SrTiO_3$ 的 Ti 3d电子体系的室温迁移率相近。[40,47,48] 迁移率随温度降低而升高，这与声子散射减弱相一致，也是金属和导电氧化物体系中的常见趋势。10 K 时，迁移率达到约 92.83 $cm^2·V^{-1}·s^{-1}$ 。这一数值远低于文献报道的块体 RuO_2 单晶在 10 K 时约为 5500 $cm^2·V^{-1}·s^{-1}$ 的迁移率，[15] 这与 OsO_2, 中较高的载流子浓度和更强的电子-电子散射相一致，其起源可由增强的费米液体系数反映出来。它也远低于基于 $SrTiO_3$ 的电子体系所具有的高迁移率（> 10, 000 $cm^2·V^{-1}·s^{-1}$），[40,47,49,50] 这可能源于较高的载流子浓度以及低温下较强的电子-电子散射，后者可由费米液体输运行为得到证实。

系统测量了10至300 K范围内的面外磁阻（MR），磁场最高达到8 T（图2F）。仅在100 K以下，磁阻才呈现显著的正值。在8 T下，10 K时为~120%，并逐渐降低至100 K时的~8%。这可以通过洛伦兹力引起的轨道散射来理解。这种纵向磁输运的一个显著特征是，在100 K以下的所有温度下均表现出线性磁阻效应。线性磁阻对于磁场传感器应用十分有用，但其内在机制可能较为复杂，涉及量子和经典解释[40,51] ，正如在非磁性银硫族化合物、[52] 半金属、[53] 以及密度波材料中所讨论的那样。[54] 对于OsO_2, ，磁阻显著的温度依赖性与载流子迁移率的变化密切一致，表明与洛伦兹力相关的经典轨道效应发挥着重要作用。[39] 在100 K以上，迁移率大幅降低，这与高温下增强的非弹性散射（例如来自声子）相一致；由此导致的迁移率降低会强烈抑制轨道磁阻。[16,40,55]

由于长程反铁磁序是新兴交替磁性的前提，在讨论了上述所有奇异的电输运性质之后，我们将关注点转向另一个关键方面–磁性。沿不同晶体学方向测量了OsO_2 单晶的磁矩随温度的变化。同时进行了场冷和零场冷测量。如图2G所示，磁化强度沿不同方向呈各向同性。更重要的是，它表现出典型的居里-外斯行为，表明其为顺磁性。此外，场冷与零场冷测量之间的差异可忽略不计，这与顺磁性图像一致。随后的磁场依赖的磁化测量得到如图2H所示的线性曲线，进一步支持了OsO_2 单晶的顺磁性。

为解释长程磁序的缺失，并评估 OsO_2 与理论提出的交替磁态的接近程度，我们进行了自旋极化密度泛函理论计算，考察了有无

自旋轨道耦合（SOC）的情况，重点研究体能带结构，并系统考察位点库仑相互作用 *U*的影响。如图3A-F所示，较小的 *U*值（0和1 eV）会产生非磁态，而较大的 *U*值（2 eV）则会形成交替磁相，这与 RuO_2的情形一致。[4,16] 与 RuO_2,[4,16] 类似，交替磁相的能带沿 ΓM 方向及 ZA线具有较大的自旋劈裂，布里渊区内出现多个节点线能带交叉。与 RuO_2, 相比，更强的自旋轨道耦合效应使能带交叉或简并产生较大的局域能隙。此外，在不同 *U*值和 SOC 情况下，所有能带结构均呈现半金属情形，在费米能级处同时存在电子口袋和空穴口袋，这证实了我们通过实验确定的较高空穴浓度。

为基准评估电子结构并约束密度泛函理论的描述，尤其是自旋轨道耦合和位点库仑相互作用的影响*U*，我们对OsO_2单晶进行了角分辨光电子能谱测量。与单晶X射线衍射结果一致，解理表面对应于金红石OsO_2的(101)晶面。该表面布里渊区可视为沿ΓZRX 方向投影[101] 平面所得，其有效高对称路径为$\bar{\Gamma}-\bar{X}$~0.7 $Å^{-1}$ 和$\bar{\Gamma}-\bar{Z}$~0.57 $Å^{-1}$。事实上，图3所示的角分辨光电子能谱费米面映射G遵循这一周期性，表现为$\bar{\Gamma}$ 处强度交替增强，而$\bar{R}$处强度较弱。为进一步证实对角分辨光电子能谱的解读，我们将实验谱与包含和不包含自旋轨道耦合的密度泛函理论计算结果进行了比较。如图S2所示，包含自旋轨道耦合的计算更准确地描述了角分辨光电子能谱中观测到的低能色散，而不包含自旋轨道耦合的结果则存在明显偏差，尤其是在费米能级附近。这一比较表明，自旋轨道耦合是准确描述OsO_2 电子结构的关键因素，因此应纳入角分辨光电子能谱–密度泛函理论的对应分析中。

尽管特征并不尖锐，但仍可分辨出扩展表面布里渊区中心至少有一个椭圆口袋。我们将体能带投影到(101)表面后得到的密度泛函理论模拟费米面（叠加于图3G第一表面布里渊区中）不仅与测量结果吻合良好，还展现出更多细节。根据图3G和3H所示沿高对称路径获得的角分辨光电子能谱谱线切割，该口袋来自一条以$\bar{\Gamma}$为中心的电子型抛物线能带，其能带底约位于~ -0.5至-0.7 eV，沿k_y （k_x）方向的费米波矢约为±0.4（±0.3）$Å^{-1}$ 。从图3A-F所示的密度泛函理论计算中，可以找到以Γ为中心的对应电子型能带。随着U增大，其能带底向费米能级移动（图3D-F）；因此，通过角分辨光电子能谱识别这条能带，有助于为密度泛函理论模拟选取实际的U值。如图3H和3I所示，在角分辨光电子能谱上叠加的密度泛函理论计算能带投影表明，对于非磁态，取U = 1.0 eV时能够很好地重现实验结果。我们进一步检验了这种比较对位点库仑相互作用U的稳健性。如图S3所示，当U值约为1.0–1.2 eV时，整体费米面拓扑和低能色散仍与角分辨光电子能谱数据一致；而增大U会逐渐增强能带劈裂，并最终稳定交错磁基态。因此，我们在比较中采用U = 1 eV，结果表明，所研究的OsO_2单晶虽然不具有交替磁性，但接近顺磁–交替磁相边界。

鉴于我们的密度泛函理论+角分辨光电子能谱分析表明，OsO_2 接近顺磁–交替磁相边界，因此压力/应变是调控其电子和磁性基态的天然手段。[35, 56–58]近期理论计算表明，应变可作为有效的调控参数，使 OsO_2中的交替磁相得以稳定。[35] 由于 OsO_2 单晶的合成困难，相关研究鲜有报道，因此我们也很有兴趣探索不同金刚石对顶砧压力下 OsO_2 单晶的电输运性质。在这项实验中，我们采用了通过破碎毫米级单晶获得的薄片样品，其厚度仅为数个 μ 米，并在其上制备线性四探针电接触，如图 4A 所示。不同金刚石对顶砧压力下的温度相关电阻曲线如图 4B 所示。总体而言，OsO_2 薄片的电阻对金刚石对顶砧压力十分敏感，并随施加压力的增大而升高。从 10 吉帕增至 44 吉帕时，室温电阻升高了三个数量级以上。从 44 吉帕起，出现了有趣的压力诱导金属-绝缘体转变。在金刚石对顶砧中施加的压力

预计会改变原子间距、电子的轨道重叠和关联强度。这种压力敏感特性确实有助于构建基于 OsO_2、由电场/压电应变控制的电子器件。[56, 57, 59–64] 尽管我们的金刚石对顶砧实验探测的是电输运而非磁响应，但电阻率对压力的强烈依赖性凸显了 OsO_2 对晶格扰动的显著敏感性。这些结果促使我们在未来开展应变工程以及压力依赖的磁性或光谱研究，以探索理论提出的交错磁态。

理论计算预测的 OsO_2 潜在的奇异交替磁性基于预测的反铁磁序。从理论角度来看，这种反铁磁序可以通过调节位点库仑排斥势 U，[34] 这也与我们的理论计算结果一致。如图4C所示，我们的计算表明，块体 OsO_2 可以在 U > 1.2 eV 的条件下实现交替磁性的稳定。由此获得的交替磁性得益于简单金红石结构较低的晶体对称性。尽管遗憾的是，我们尚未在单晶中探测到反铁磁序，但一旦能够建立磁序，仍有望在 OsO_2 中实现交替磁性，例如通过外加压力，或采用类似于 RuO_2 的其他方法。

为了深入了解在金刚石对顶砧测量中观察到的压力诱导的输运演变和金属-绝缘体转变，我们进行了高压电子结构计算。图4D-I展示了在50 GPa下、针对不同哈伯德 U 值计算得到的块体 OsO_2 的自旋极化能带结构。与常压下的能带结构（图3）相比，采用 U = 1 eV 和 U = 2 eV 得到的能带（图4D和图4E）呈现出更宽的色散，这与压缩条件下预期增强的轨道重叠相一致。值得注意的是，当 U > 1 eV 时，始终可以观察到交错磁分裂（图4E-I）。随着 U 值增加，带宽变窄，导致导带与价带之间逐渐分离。在 U 为3–3.5 eV的范围内发生金属-绝缘体转变（图4F和图4G）。我们的电阻率测量表明，块体 OsO_2 在50 GPa下已转变为绝缘态（图4B）。杂化泛函计算预测出具有0.8 eV直接带隙的绝缘相（图4I），这与采用 U = 3.8 eV 的PBE+U计算结果（图4H）一致。这些计算结果共同表明，施加的压力增强了电子关联，推动块体 OsO_2 从金属转变为绝缘体，同时也实现了从非磁态到交替磁态的转变。

结论

总而言之，受近期关于 OsO_2, 可能存在交替磁相的理论预测所启发，我们开发了一种有效的两步法，成功合成了高质量的 OsO_2 单晶。这类单晶极难制备，因此鲜有研究。本研究揭示了 OsO_2 的若干引人关注的特性：(1) 费米液体行为持续至 140 K，表明电子-电子散射很强；(2) 其金属电导率优于 RuO_2 单晶，有望用于开发适用于多种能源应用的优异电催化剂；(3) 显著的低温线性磁阻机制仍未明了，但可能有助于传感器应用；(4) OsO_2 呈半金属态，在费米能级处同时存在电子口袋和空穴口袋，其磁基态强烈依赖于库仑关联U；(5) 对压力敏感的电输运性质，使其在与压电/铁电材料集成后有望应用于未来的低功耗电子器件。关于最初的研究动机——交替磁性，尽管我们的块体 OsO_2 单晶中不存在长程反铁磁序和交替磁自旋劈裂，但实现交替磁性的关键或许在于人为调控其磁基态，通过实验调节库仑关联U，从而实现长程反铁磁序。在此背景下，我们证实 OsO_2 单晶中存在明确的压力诱导金属-绝缘体相变。此外，高压电子结构计算表明，外加压力会显著增强U，驱动磁性和电子相变依次发生，使体系从顺磁金属转变为交变磁金属，最终转变为交变磁

绝缘体。[35] 这些发现共同确立了压力是调控 OsO_2 磁基态的关键物理参数，并为理解关联氧化物中交替磁性的出现提供了基础见解。

方法

材料与方法

OsO_2 单晶采用通用的两步法合成（图 1B）。首先，将 2 g 纯度为 99.8% 的锇粉与 1.06 g 纯度为 99.5% 的 $NaBrO_3$ 粉末均匀混合。该质量比根据 OsO_2 中 Os 和 O 的摩尔比推算得出，而 $NaBrO_3$ 是一种强氧化剂。随后，将混合粉末置于石英管中并抽真空密封，压力为 10^{-5} Torr。之后，将真空密封的石英管放入管式炉中。首先在300 °C 下预热 2 天，然后升温至650 °C 进行化学反应。化学反应时间设为 2 天。之后，将石英管冷却至室温。在任何温度变化过程中，升温速率均保持为1 °C/min。此步骤结束时，多晶 OsO_2 粉末聚集在石英管的一端。

随后开始第二步，将经过上述第一步处理并抽真空密封的石英管进一步放入双温区管式炉中。装有生成的多晶 OsO_2 粉末的石英管一端保持在 950 °C，另一端保持在 875 °C。保持这些温度 14 天，以获得通过化学气相传输法制备的 OsO_2 单晶。之后，将石英管两端冷却至室温。在此步骤中，加热时，低于 800 °C 时的升温速率为 50 °C/h，高于 800 °C 时为 10 °C/h。冷却时，两端的降温速率均为1 °C/min。

表征技术

X射线衍射

使用配备 Cu-*K*α 辐射（λ = 1.54184 Å）的 Bruker D8 Advance 衍射仪进行 X射线衍射测量。

透射电子显微镜

透射电子显微镜测量采用球差校正型 JEOL JEM NeoARM200 显微镜进行，加速电压为 200 kV。以 75–310 mrad 的收集角采集高角环形暗场扫描透射电子显微镜图像。电子能量损失谱（EELS）测量的收集半角为 111 mrad。使用配备 K3直接电子探测相机的 GIF Continuum光谱仪采集 EELS 光谱。

X射线光电子能谱

X射线光电子能谱（XPS）测量在室温下使用 Thermo Fisher Scientific ESCALAB Xi+ 系统进行，该系统配备单色化 Al *K*α X射线源。光斑尺寸约为 600 μm，测量采用法向发射几何。结合能以 284.8 eV 的 C 1*s* 峰为基准进行校准。

拉曼光谱

使用共聚焦显微拉曼系统在室温下采集拉曼光谱，采用532纳米激光激发，激光功率为4毫瓦。测量采用非偏振配置，使用 50× VIS LWD 物镜和 600线/毫米光栅。激光聚焦于样品表面，光斑尺寸约为 1–2 μm。

电学与磁学测量

电输运测量中，使用铝线键合机制作电接触，并使用物性测量系统进行测量。磁矩由配备振动样品磁强计选件的 Quantum Design VersaLab 系统测量。 电输运、磁阻、霍尔效应和磁化强度的测量几何示意图见图 S1。

高压输运测量

高压输运测量是在氦-4低温恒温器中进行的，使用配备有直径为 200 μm 砧面金刚石的金刚石对顶砧，并以溴化钾作为传压介质。

密度泛函理论计算

密度泛函理论（密度泛函理论）计算采用 Vienna 从头算模拟程序[65] ，使用投影缀加波方法[66] 以及 Perdew-Burke-Ernzerhof[67] 交换关联泛函的广义梯度近似。采用 520 eV 的截断能和以 12 × 12 ×18 Γ 为中心的 *k* 点网格。对 OsO_2 的晶体结构进行充分弛豫，直至每个原子的剩余力小于 0.005 eV/Å。常压下的最优晶格常数为 *a* =4.522 Å 和 *c* = 3.217 Å。在电子结构计算中考虑了自旋轨道耦合效应。采用密度泛函理论+ *U* 方法[68] 处理 Os-*d* 轨道的现场库仑关联，并测试有效哈伯德参数*U*；结果表明，非磁态下*U* = 1.0 eV 时可再现实验测量结果。为模拟压力诱导金属-绝缘体转变，还采用了杂化泛函计算[69]。基于 Os-*d* 和 O-*p* 轨道最大局域化瓦尼尔函数[70] 构建紧束缚哈密顿量，并使用 WannierTools程序包[71]进一步计算费米面和体能带的表面投影。

角分辨光电子能谱测量

角分辨光电子能谱测量在日本 KEK 的 Photon Factory（PF）BL-28A 光束线上进行。我们使用了能量为 100 eV 的线偏振光。能量分辨率优于 30 meV，角分辨率优于 0.1°。角分辨光电子能谱测量期间的温度设定为 12 K。样品在四方结构内沿（101）晶面进行原位解理。探测器狭缝平行于由入射光束和样品表面法线定义的角分辨光电子能谱测量平面。光斑尺寸小于 15 μm × 15 μm。

资源可用性

主要联系人

- 如需更多信息和资源，请联系主要联系人 Zhiqi Liu（zhiqi@buaa.edu.cn）；相关信息和资源将由其提供。

材料可用性

- 本研究生成的材料可应要求提供。

数据和代码可用性

- 重新分析本文所报告数据所需的任何其他信息，均可应要求向主要联系人获取。

致谢

P.Q. 感谢国家自然科学基金委员会的资助（编号：52401300）。Z.M. 感谢国家自然科学基金委员会的资助（编号：524B2003）。L.L. 感谢国家自然科学基金委员会的资助（编号：525B2008）。Z.L. 感谢国家自然科学基金委员会（编号：52425106、52121001 和 52271235）、国家重点研发计划（编号：2022YFA1602700 和 2022YFB3506000）以及北京市自然科学基金（编号：JQ23005）的资助。C.C. 感谢国家重点研发计划（编号：2025YFA1411200）和国家自然科学基金委员会

委员会（编号：12574068）。J.W. 感谢国家自然科学基金委员会（编号：12474217）和北京市自然科学基金（编号：1242023）的资助。Q.Z. 感谢国家自然科学基金委员会（编号：52322212）和国家重点研发计划（编号：2023YFA1406300 和 2024YFA1409500）的资助。J.C. 感谢国家自然科学基金委员会（编号：12025408）和国家重点研发计划（编号：2023YFA1406100）的资助。本研究获得国家自然科学基金委员会（编号：U25A20244）的资助。本研究获得中央高校基本科研业务费的资助。作者感谢北京航空航天大学分析测试中心协助进行氦-3低温测量。作者感谢在协同极端条件用户设施（SECUF）的 CAC站开展高压实验。[https://cstr.cn/31123.02.SECUF]。作者感谢高压科学技术先进研究中心（HPSTAR），北京的黄业华先生和苟慧阳博士协助开展范德堡几何构型下的初步金刚石对顶砧压力测量。

作者贡献

概念构思：Z.L.、G.Z.、Z.M 和 P.Q.；方法学：G.Z、P.Q.、Z.M. 和 W.H.；形式分析：G.Z.、Z.M.、P.Q.、J.W.、C.C. 和 Z.L.；调查研究：G.Z.、Z.M. 和 W.H.；数据整理：G.Z.、Z.M.、W.H.、P.Q.、S.R.、L.M.、L.Z.、S.J.、J.L.、X.T.、K.O.、B.W.、J.C. 和 Y.H.；可视化：G.Z.、C.C.、J.W.、L.L.、D.Z.、X.W. 和 H.C.；监督指导：Z.L.、C.C. 和 J.W.；撰写——初稿：G.Z.、Z.M. 和 P.Q.；撰写——审阅与编辑：Z.L.、C.C. 和 J.W.；Z.L. 领导并协调了该项目。

利益声明

作者声明不存在利益冲突。

补充信息 文档S1。图S1–S3

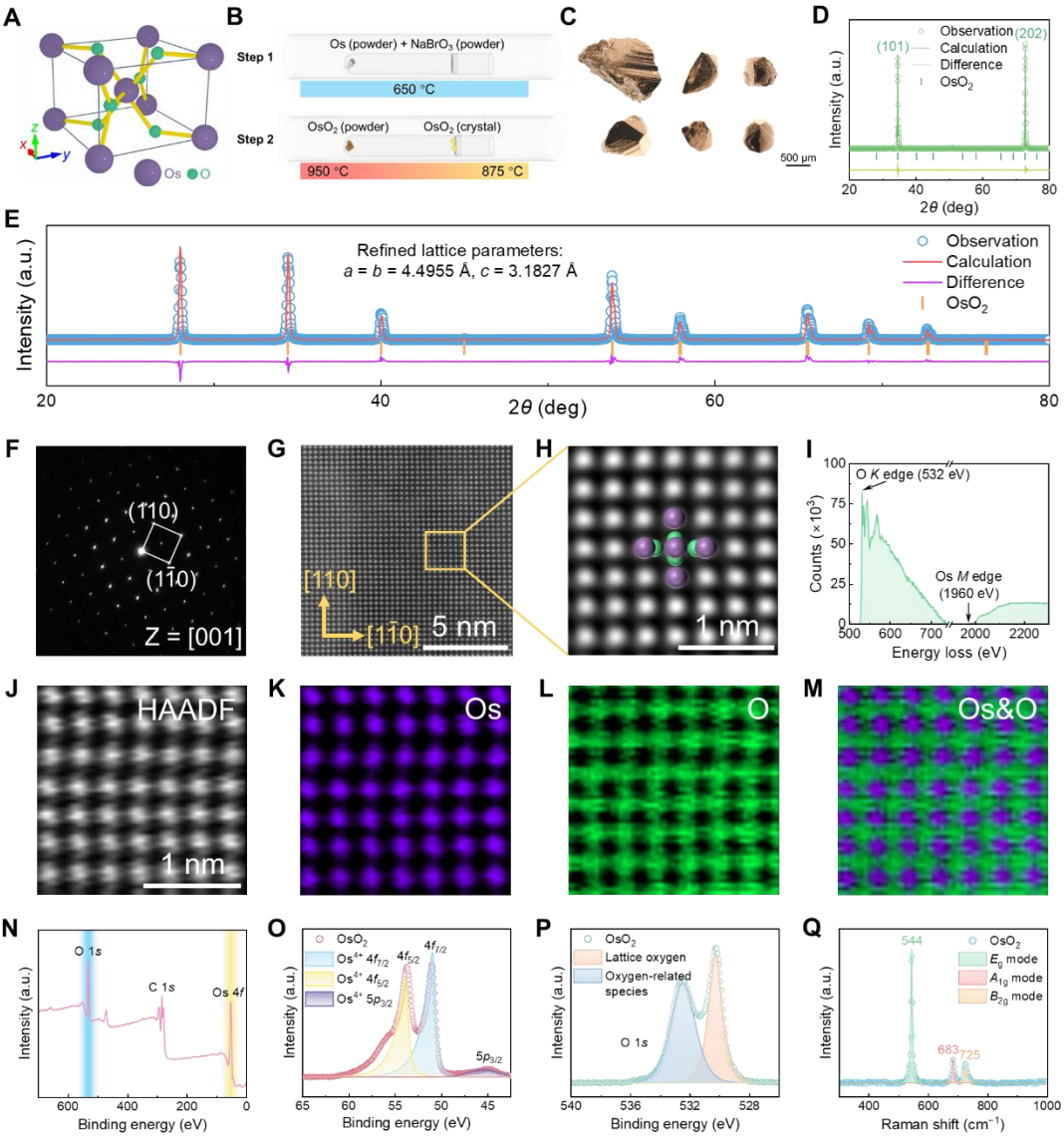

图 1. OsO_2 单晶的晶体结构、合成过程及全面的结构表征。

（A）OsO_2 的晶体结构，其中紫色和绿色球体分别代表 Os 和 O 原子。（B）OsO_2 单晶的两步合成过程：步骤 1，将 Os 粉末与 $NaBrO_3$ 粉末在 650 °C 下反应，生成 OsO_2 粉末；步骤 2，在 950 °C 至 875 °C 的温度梯度下生长 OsO_2 晶体。(C) 具有代表性的 OsO_2 单晶的光学图像。(D) 从一颗 OsO_2 单晶采集的 X射线衍射图谱。(E) 将 OsO_2 单晶研磨后得到的 OsO_2 粉末的 X射线衍射图谱的 Rietveld精修。(F) 沿 [001] 带轴拍摄的 OsO_2 单晶选区电子衍射图谱。(G) 沿[001] 带轴拍摄的高角环形暗场扫描透射电子显微镜图像。(H) (G) 中方框区域对应的放大高角环形暗场扫描透射电子显微镜图像，并叠加了 OsO_2 的原子结构。(I) 电子能量损失谱显示了 O *K* 边和 Os *M* 边。(J–M) OsO_2 的电子能量损失谱元素映射：(J) 高角环形暗场图像；(K) 锇元素分布图；(L) 氧元素分布图；(M) 锇和氧的合并分布图。(N) OsO_2 的 XPS 全谱，显示 O 1*s*、C 1*s*和 Os 4*f*的特征峰。(O) 高分辨率X射线光电子能谱，显示 Os^{4+} $4f_{7/2}$、$4f_{5/2}$和 $5p_{3/2}$ 峰。(P) O 1*s*区域的高分辨率X射线光电子能谱，显示晶格氧和含氧物种峰。(Q) OsO_2 的拉曼光谱，显示归属于 E_g (544 cm^{-1})、A_{1g} (683 cm^{-1})和 B_{2g} (725 cm^{-1}) 的振动模式。

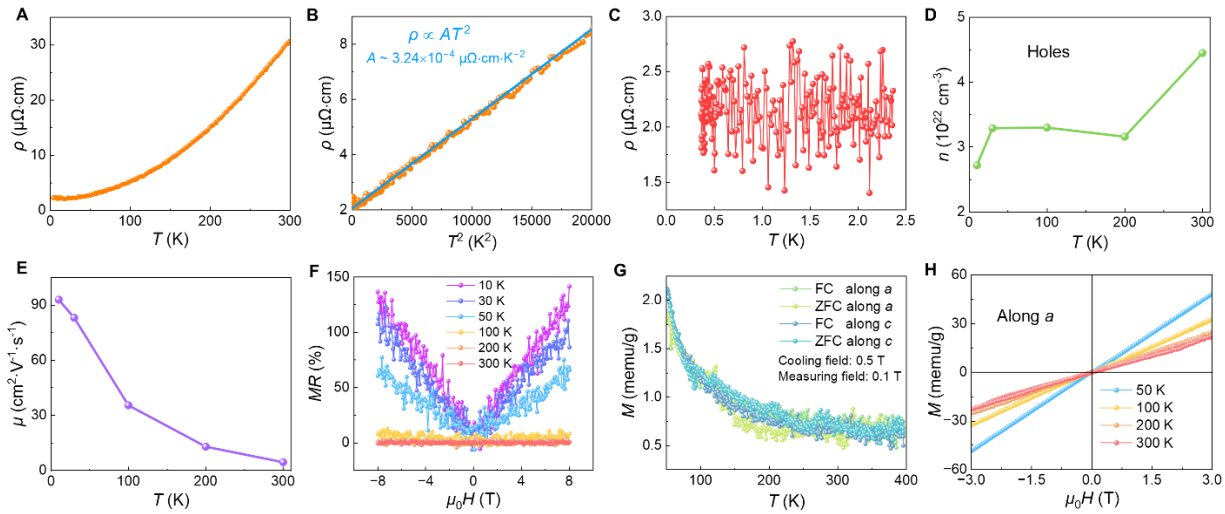

图2。OsO_2 单晶的电输运和磁输运性质。(A) 2 K 至 300 K 范围内 OsO_2 单晶电阻率（ρ）的温度依赖性。(B) 低温电阻率随T^2, 的变化关系，呈现出与费米液体行为一致的线性关系。(C) 使用氦-3模块测量的 2.3 至 0.37 K 之间电阻率随温度的变化。(D) 载流子浓度（n）的温度依赖性。(E) 迁移率（μ）随温度的变化。(F) 在不同温度（10、30、50、100、200 和 300 K）下测量的磁阻（MR）曲线。(G) 在沿a轴和c轴的零场冷却（ZFC）和场冷却（FC）条件下测量的温度依赖性磁化强度M（T）。施加了 0.5 T 的冷却场和 0.1 T 的测量场。(H) 在不同温度下沿a轴测量的场依赖性磁化强度M（μ_0H）曲线。

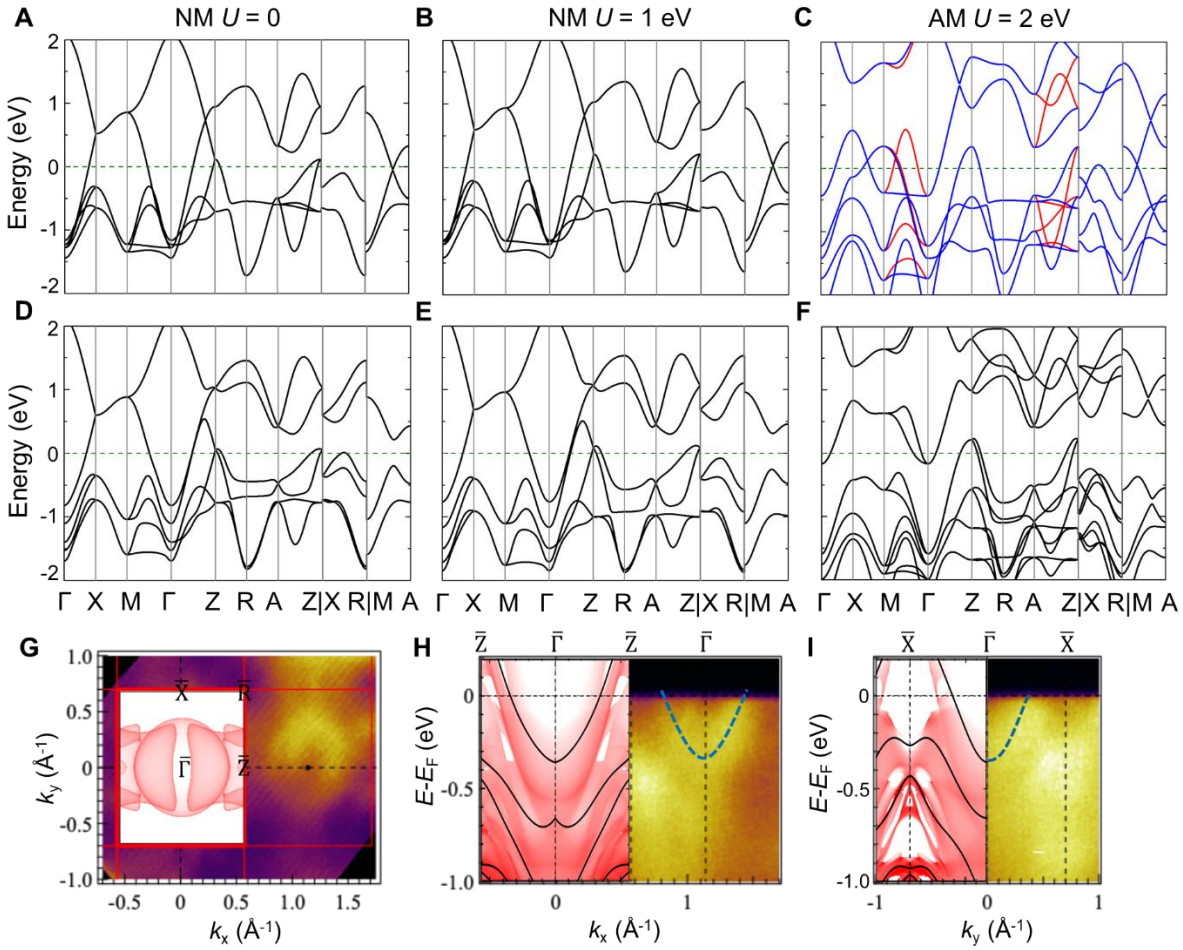

图3. OsO_2 单晶的能带结构与角分辨光电子能谱表征。(A-C) 分别采用0、1和2 eV的位点库仑关联*U*计算的不含SOC的能带结构。前两者的基态为非磁性（NM），而*U* = 2 eV时，基态为交错磁性（AM）。(D-F) 分别采用0、1和2 eV的位点库仑关联*U*计算的含SOC的能带结构。(G) 使用100 eV光子能量测得的OsO_2 (101)平面角分辨光电子能谱费米面。图中叠加了第一布里渊区内密度泛函理论模拟并投影至(101)表面的费米面。(H, I) 沿高对称路径测得的角分辨光电子能谱能带谱。图中还叠加了投影至(101)表面的计算能带投影。

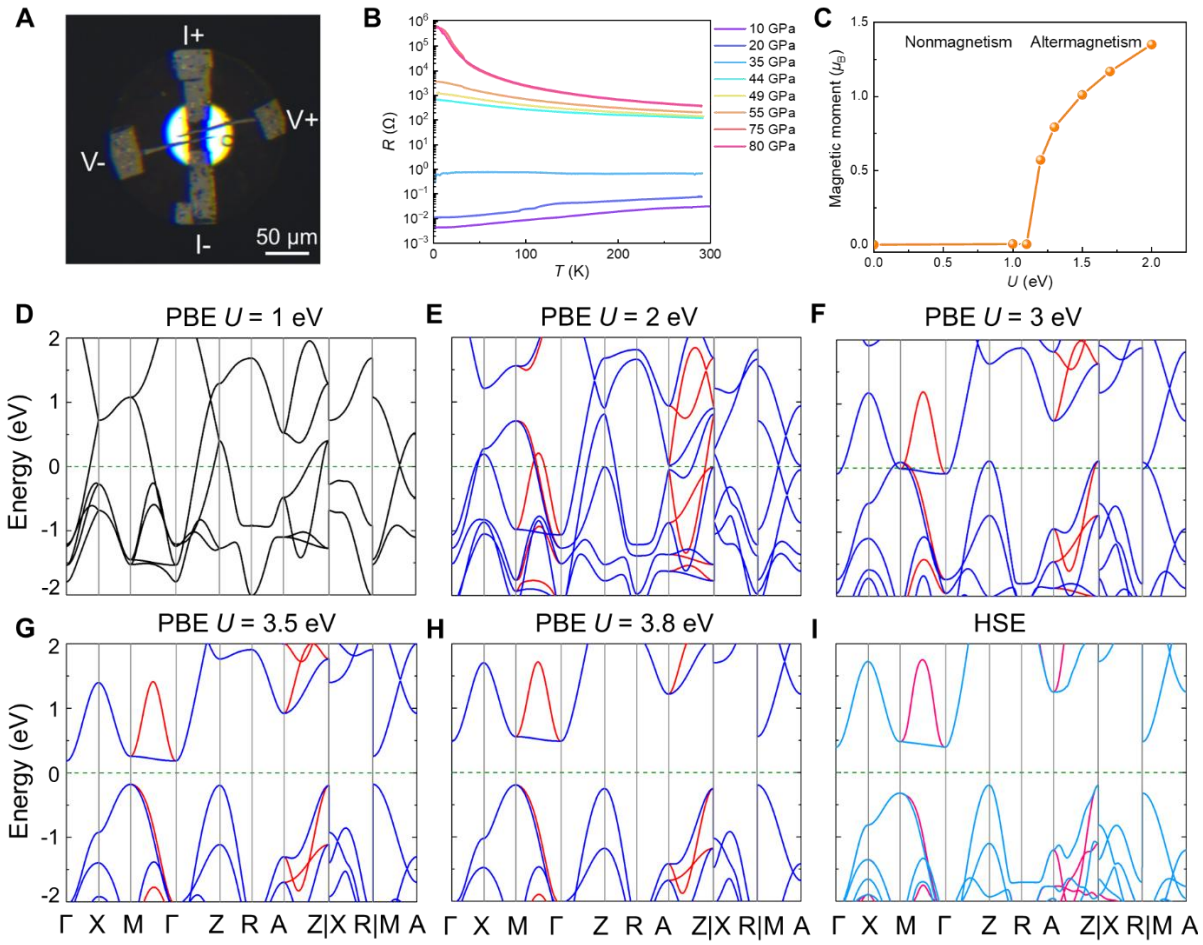

图 4. OsO_2 单晶的高压电输运与关联驱动的磁性转变。

(A) 金刚石对顶砧（DAC）内带有线性四探针电接触的数微米厚 OsO_2 单晶薄片的光学图像。(B) OsO_2 薄片在10 至 80 GPa 不
砧压力下的温度依赖电阻。 (C) 体相 OsO_2 的计算磁矩随位点库仑关联*U*的变化。不同区域标示了各磁基态。(D–H) 在 50 GP
PBE_2 U+方法计算得到的体相 *OsO_2* 能带结构，其中*U* = 1分别为 2、3、3.5 和 3.8 eV。 (I) 在 50 GPa 下，采用 HSE 杂化泛函
相 OsO_2 能带结构。(D) 中的黑线表示非磁态，而 (E–I) 中的红／蓝线表示交替磁态。

参考文献

1. Mazin, I. I.（2022年）。编者按：交替磁性——基础磁学的新亮点，《物理评论X》*12*，040002。2. Šmejkal, L., Sinova, J., Jungwirth, T.（2022年）。交替磁性的研究新图景，《物理评论X》*12*，040501。3. Šmejkal, L., Sinova, J., Jungwirth, T.（2022年）。超越传统铁磁性和反铁磁性：一种具有非相对论性自旋和晶体旋转对称性的相，《物理评论X》*12*，031042。4. Šmejkal, L., González-Hernández, R., Jungwirth, T., Sinova, J.（2020年）。共线反铁磁体中的晶体时间反演对称性破缺与自发霍尔效应，《科学进展》*6*，eaaz8809。5. Berlijn, T., Snijders, P. C., Delaire, O., Zhou, H.-D., Maier, T. A., Cao, H.-B., Chi, S.-X., Matsuda, M., Wang, Y., Koehler, M. R. 等（2017*118*，077201$_2$，）。RuO 中的巡游反铁磁性，《物理评论快报》。6. Zhu, Z. H., Strempfer, J., Rao, R. R., Occhialini, C. A., Pelliciari, J., Choi, Y., Kawaguchi, T., You, H., Mitchell, J. F., Shao-Horn, Y. 等（2019年）。通过共振X射线散射确定金属 RuO_2 中的反常反铁磁性，《物理评论快报》*122*，017202。7. Keßler, P., Garcia-Gassull, L., Suter, A., Prokscha, T., Salman, Z., Khalyavin, D., Manuel, P., Orlandi, F., Mazin, I. I., Valentí, R. 等（2024年）。RuO_2中磁序的缺失：来自 μSR 谱学和中子衍射的见解，《npj 自旋电子学》*2*，50。8. Kiefer, L., Wirth, F., Bertin, A., Becker, P., Bohatý, L., Schmalzl, K., Stunault, A., Rodríguez-Velamazan, J. A., Fabelo, O., Braden, M.（2025年）。单晶 RuO_2, 的晶体结构与磁序缺失，《凝聚态物质物理学杂志》*37*，135801。9. Liu, J., Zhan, J., Li, T., Liu, J., Cheng, S., Shi, Y., Deng, L., Zhang, M., Li, C., Ding, J. 等（2024年）。金红石型氧化物 RuO_2, 中不存在交替磁性自旋劈裂特征，《物理评论快报》*133*，176401。10. Osumi, T., Yamauchi, K., Souma, S., Shubhankar, P., Honma, A., Nakayama, K., Ozawa, K., Kitamura, M., Horiba, K., Kumigashira, H. 等（2025年）。RuO_2, 的自旋简并体能带与拓扑表面态，arXiv:2501.10649。11. Hiraishi, M., Okabe, H., Koda, A., Kadono, R., Muroi, T., Hirai, D., Hiroi, Z.（2024年）。μ子自旋旋转揭示 RuO_2 中的非磁性基态，《物理评论快报》*132*，166702。12. Wenzel, M., Uykur, E., Rößler, S., Schmidt, M., Janson, O., Tiwari, A., Dressel, M., Tsirlin, A. A.（2025年）。非交变磁性 RuO_2, 的费米液体行为，《物理评论B辑》*111*，L041115。13. Pawula, F., Fakih, A., Daou, R., Hébert, S., Mordvinova, N., Lebedev, O., Pelloquin, D., Maignan, A.（2024年）。RuO_2, 中的多能带输运，《物理评论B辑》*110*，064432。14. Wang, Z. Q., Li, Z. Q., Sun, L., Zhang, Z. Y., He, K., Niu, H., Cheng, J., Yang, M., Yang, X., Chen, G. 等（2024年）。逆自旋霍尔效应主导的 (101) 和 (110) 取向 RuO_2 薄膜中的自旋-电荷转换，《物理评论快报》*133*，046701。15. Peng, X., Liu, Z., Zhang, S., Zhou, Y., Sun, Y., Su, Y., Wu, C., Zhou, T., Liu, L., Li, Y., Wang, H. 等（2025*6*，177$_2$，）。非磁性 RuO 中输运性质的普适标度行为，《通讯·材料》。16. Feng, Z., Zhou, X., Šmejkal, L., Wu, L., Zhu, Z., Guo, H., González-Hernández, R., Wang, X., Yan, H., Qin, P. 等（2022*5*，735 743）。交替磁性二氧化钌中的反常霍尔效应，《自然·电子学》。17. Tschirner, T., Keßler, P., Gonzalez Betancourt, R. D., Kotte, T., Kriegner, D., Büchner, B., Dufouleur, J., Kamp, M., Jovic, V., Smejkal, L. 等（2023年）。交替磁性 RuO_2, 在高磁场下反常霍尔效应的饱和，《APL 材料》*11*，101103。

18. Jeong, S. G., Lee, S., Lin, B., Yang, Z., Choi, I. H., Oh, J. Y., Song, S., Lee, S. W., Nair, S., Choudhary, R., 等（2025）。外延应变原子级薄 RuO_2 薄膜中的金属性与反常霍尔效应，美国国家科学院院刊 122，e2500831122。19. Bose, A., Schreiber, N. J., Jain, R., Shao, D.-F., Nair, H. P., Sun, J., Zhang, X. S., Muller, D. A., Tsymbal, E. Y., Schlom, D. G., 等（2022）。共线反铁磁体二氧化钌产生的倾斜自旋流，《自然·电子学》5，267–274。20. Wang, M., Tanaka, K., Sakai, S., Wang, Z., Deng, K., Lyu, Y., Li, C., Tian, D., Shen, S., Ogawa, N., 等（2023）。重构金红石型反铁磁金属中的新兴零场反常霍尔效应，《自然·通讯》14，8240。21. Bai, H., Han, L., Feng, X. Y., Zhou, Y. J., Su, R. X., Wang, Q., Liao, L. Y., Zhu, W. X., Chen, X. Z., Pan, F., 等（2022）。在共线反铁磁体 RuO_2, 中观测到自旋劈裂力矩，《物理评论快报》128，197202。22. Karube, S., Tanaka, T., Sugawara, D., Kadoguchi, N., Kohda, M., Nitta, J.（2022）。在共线反铁磁 RuO_2, 中观测到自旋劈裂力矩，《物理评论快报》129，137201。23. Fedchenko, O., Minár, J., Akashdeep, A., D'Souza, S. W., Vasilyev, D., Tkach, O., Odenbreit, L., Nguyen, Q., Kutnyakhov, D., Wind, N., 等（2024）。在交变磁性 RuO_2, 能带结构中观测到时间反演对称性破缺，《科学进展》10，eadj4883。24. Jeong, S. G., Choi, I. H., Nair, S., Buiarelli, L., Pourbahari, B., Young, J., Bassim, N., Hirai, D., Seo, A., Choi, W. S., 等（2024）。超薄外延应变 RuO_2 薄膜中的交变磁极性金属相，arXiv:2405.05838。25. Weber, M., Wust, S., Haag, L., Akashdeep, A., Leckron, K., Schmitt, C., Ramos, R., Kikkawa, T., Saitoh, E., Kläui, M., 等（2024）。d波交错磁体中自旋极化的全光激发，arXiv:2408.05187。26. Guo, Y., Zhang, J., Zhu, Z., Jiang, Y., Jiang, L., Wu, C., Dong, J., Xu, X., He, W., He, B., 等（2024）。交变磁性 RuO_2, 中的直接与逆自旋劈裂效应，《先进科学》11，2400967。27. Liu, Y., Bai, H., Song, Y., Ji, Z., Lou, S., Zhang, Z., Song, C., Jin, Q.（2023）。逆交错磁性自旋劈裂效应诱导的 RuO_2, 太赫兹发射，《先进光学材料》11，2300177。28. Zhang, Y.-C., Bai, H., Zhang, D.-H., Chen, C., Han, L., Liang, S.-X., Chu, R.-Y., Dai, J.-K., Sawicki, M., Pan, F., 等（2025）。通过X射线磁线二色性探测交变磁性 RuO_2 薄膜中的奈尔序，《中国物理快报》42，027301。29. Noh, S., Kim, G.-H., Lee, J., Jung, H., Seo, U., So, G., Lee, J., Lee, S., Park, M., Yang, S., 等（2025）。基于交变磁性 RuO_2的磁性隧道结中的隧穿磁电阻，《物理评论快报》134，246703。30. Chen, H., Wang, Z., Qin, P., Meng, Z., Zhou, X., Wang, X., Liu, L., Zhao, G., Duan, Z., Zhang, T., 等（2025）。交变磁性 RuO_2 薄膜中的自旋劈裂磁电阻，《先进材料》37，2507764。31. Over, H.（2012）。多相催化与电催化中的二氧化钌表面化学：从基础研究到应用研究，《化学评论》112，3356–3426。32. Rogers, D. B., Shannon, R. D., Sleight, A. W., Gillson, J. L.（1969）。金红石相关结构金属二氧化物的晶体化学，《无机化学》8，841–849。33. Yen, P. C., Chen, R. S., Chen, C. C., Huang, Y. S., Tiong, K. K.（2004）。OsO_2 单晶的生长与表征，《晶体生长杂志》262，271–276。34. Raghuvanshi, P. R., Berlijn, T., Parker, D. S., Wang, S., Manley, M. E., Hermann, R. P., Lindsay, L., Cooper, V. R.（2025）。OsO_2中的交变磁行为：与 RuO_2, 的异同，《物理评论：材料》9，034407。35. Zhang, W., Zeng, M., Liu, Y., Zhang, Z., Xiong, R., Lu, Z.，（2025）。应变诱导的非相对论性交错磁性自旋劈裂效应，《物理评论B辑》112，024415。

36. Regoutz, A., Ganose, A. M., Blumenthal, L., Schlueter, C., Lee, T.-L., Kieslich, G., Cheetham, A. K., Kerherve, G., Huang, Y.-S., Chen, R.-S., 等（2019）。结合软、硬X射线光电子能谱与密度泛函理论，深入探究 OsO_2 的电子结构，《物理评论：材料》*3*，025001 37. Yen, P. C., Chen, R. S., Huang, Y. S., Chia, C. T., Chen, R. H., Tiong, K. K.（2003）。OsO_2, 的一阶拉曼光谱，《凝聚态物理杂志》*15*，1487–1494。38. Ryden, W. D., Lawson, A. W., Sartain, C. C.（1968）。RuO_2 和 IrO_2, 电阻率的温度依赖性，《物理快报A辑》*26*，209–210。39. v. Löhneysen, H., Rosch, A., Vojta, M., Wölfle, P.（2007）。磁性量子相变处的费米液体不稳定性，《现代物理评论》*79*，1015–1087。40. Liu, Z. Q., Lü, W. M., Wang, X., Huang, Z., Annadi, A., Zeng, S. W., Venkatesan, T., Ariando（2012）。$SrTiO_{3-x}$ 单晶中磁场诱导的电阻率极小值及费米液体的面内线性磁阻，《物理评论B辑》*85*，155114。41. Seng, P., Diehl, J., Klimm, S., Horn, S., Tidecks, R., Samwer, K., Hänsel, H., Gross, R.（1995）。$Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$ 薄膜中的霍尔效应与磁阻，《物理评论B辑》*52*，3071–3074。42. Maeno, Y., Yoshida, K., Hashimoto, H., Nishizaki, S., Ikeda, S., Nohara, M., Fujita, T., Mackenzie, A. P., Hussey, N. E., Bednorz, J. G., 等（1997）。超导体 Sr_2RuO_4, 的二维费米液体行为，《日本物理学会杂志》*66*，1405–1408。43. Schriempf, J. T., Schindler, A. I., Mills, D. L.（1969）。电子-电子散射对稀释钯-镍合金低温洛伦兹数的影响，《物理评论》*187*，959–973。44. Paul, S., Ikeda, A., Matsuki, H., Mattoni, G., Schmalian, J., Sow, C., Yonezawa, S., Maeno, Y,（2025）。RuO_2, 比热的非解析费米液体修正，arXiv：2512.03108。45. Andres, K., Graebner, J. E., Ott, H. R.（1975）。低温下 $CeAl_3$ 中的 4*f*虚束缚态形成，《物理评论快报》*35*，1779–1782。46. Liu, Z. Q., Leusink, D. P., Wang, X., Lü, W. M., Gopinadhan, K., Annadi, A., Zhao, Y. L., Huang, X. H., Zeng, S. W., Huang, Z., 等（2011）。冻结载流子诱导的 $SrTiO_{3-x}$ 薄膜金属-绝缘体转变，《物理评论快报》*107*，146802。47. Liu, Z. Q., Li, C. J., Lü, W. M., Huang, X. H., Huang, Z., Zeng, S. W., Qiu, X. P., Huang, L. S., Annadi, A., Chen, J. S., 等（2013）。$LaAlO_3/SrTiO_3$ 界面二维电子气的起源：氧空位与电子重构的作用，《物理评论X辑》*3*，021010。48. Feng, Z., Qin, P., Yang, Y., Yan, H., Guo, H., Wang, X., Zhou, X., Han, Y., Yi, J., Qi, D., 等（2021）。一种基于5*s*氧化物、具有高室温迁移率和应变敏感性的二维电子气，《材料学报》*204*，116516。49. Son, J., Moetakef, P., Jalan, B., Bierwagen, O., Wright, N. J., Engel-Herbert, R., Stemmer, S.（2010）。电子迁移率超过 30,000 $cm^2 V^{-1} s^{-1}$的外延 $SrTiO_3$ 薄膜，《自然·材料》*9*，482–484。50. Yue, J., Ayino, Y., Truttmann, T. K., Gastiasoro, M. N., Persky, E., Khanukov, A., Lee, D., Thoutam, L. R., Kalisky, B., Fernandes, R. M., Pribiag, V. S., Jalan, B.（2022）。高迁移率超导 $SrTiO_3$ 薄膜中的反常输运，《科学进展》*8*，eabl5668。51. Hu, J., Rosenbaum, T. F.（2008）。线性磁阻的经典与量子路径，《自然·材料》*7*，697。52. Xu, R., Husmann, A., Rosenbaum, T. F., Saboungi, M.-L., Enderby, J. E., Littlewood, P. B.（1997）。非磁性银硫族化合物中的巨大磁阻，《自然》*390*，57–60。53. Yang, J., Song, Z.-Y., Guo, L., Gao, H., Dong, Z., Yu, Q., Zheng, R.-K., Kang, T.-T., Zhang, K.（2021）。节点线半金属 ZrGeSe 中非平庸的巨大线性磁阻，Nano Lett. 2*21*，10139 10145 D层。

54. Feng, Y., Wang, Y., Silevitch, D. M., Yan, J.-Q., Kobayashi, R., Hedo, M., Nakama, T., Ōnuki, Y., Suslov, A. V., Mihaila, B. 等（2019）。密度波材料低场极限下的线性磁阻，《美国国家科学院院刊》116，11201–11206。55. Zhou, X., Liu, Z.（2021）。$LaAlO_3/SrTiO_3$ 界面处源于氧空位和极性灾难的电子本质，《凝聚态物理杂志》33，435601。56. Liu, Z., Chen, H., Wang, J., Liu, J., Wang, K., Feng, Z., Yan, H., Wang, X., Jiang, C., Coey, J. M. D. 等（2018）。室温以上非共线反铁磁体中拓扑反常霍尔效应的电切换，《自然·电子学》1，172–177。57. Yan, H., Feng, Z. X., Shang, S., Wang, X., Hu, Z., Wang, J., Zhu, Z., Chen, Z., Hua, H., Lu, W. 等（2019）。一种对磁场不敏感的压电应变调控反铁磁存储器，《自然·纳米技术》14，131–136。58. Sun, H., Huo, M., Hu, X., Li, J., Liu, Z., Han, Y., Tang, L., Mao, Z., Yang, P., Wang, B. 等（2023）。高压下镍酸盐中接近80 K的超导特征，《自然》621，493–498。59. Yan, H., Feng, Z. X., Qin, P., Zhou, X., Guo, H., Wang, X., Chen, H., Zhang, X., Wu, H., Jiang, C. 等（2020）。电场调控的反铁磁自旋电子器件，《先进材料》32，1905603。60. Guo, H., Feng, Z., Yan, H., Liu, J., Zhang, J., Zhou, X., Qin, P., Cai, J. L., Zeng, Z., Zhang, X. 等（2020）。非共线反铁磁金属中的巨大压电自旋电子效应，《先进材料》32，2002300。61. Qin, P., Feng, Z., Zhou, X., Guo, H., Wang, J., Yan, H., Wang, X., Chen, H., Zhang, X., Wu, H. 等（2020）。基于非共线反铁磁金属的反常霍尔效应、稳健的负磁电阻和存储器件，《ACS Nano》14，6242–6248。62. Chen, H., Feng, Z., Qin, P., Zhou, X., Yan, H., Wang, X., Meng, Z., Liu, L., Liu, Z.（2022）。基于反铁磁铬自旋密度波转变的阻变存储器，《物理评论应用》18，054046。63. Chen, H., Zhou, X., Meng, Z., Wang, X., Duan, H., Liu, L., Zhao, G., Yan, H., Qin, P., Liu, Z.（2024年）。Cu_2S的磁场响应与巨大电场调制，《纳米快报》24，584–591。64. Wang, X., Feng, Z., Qin, P., Yan, H., Zhou, X., Guo, H., Leng, Z., Chen, W., Jia, Q., Hu, Z. 等（2019）。将非共线反铁磁金属Mn_3Sn集成到铁电氧化物上以实现电场调控，《材料学报》181，537–543。65. Kresse, G., Furthmuller, J.（1996）。使用平面波基组进行从头算总能计算的高效迭代方案，《物理评论B辑》54，11169。66. Blöchl, P. E.（1994）。投影缀加波方法，《物理评论B辑》50，17953。67. Perdew, J. P., Burke, K., Ernzerhof, M.（1996）。广义梯度近似的简明形式，《物理评论快报》77，3865。68. Dudarev, S. L., Botton, G. A., Savrasov, S. Y., Humphreys, C. J., Sutton, A. P.（1998）。镍氧化物的电子能量损失谱与结构稳定性：LSDA+U研究，《物理评论B辑》57，1505。69. Paier, J., Marsman, M., Hummer, K., Kresse, G., Gerber, I. C., Ángyán, J. G.（2006）。应用于固体的屏蔽杂化密度泛函，《化学物理学杂志》124，154709。70. Souza, I., Marzari, N., Vanderbilt, D.（2001）。纠缠能带的最大局域化瓦尼尔函数，《物理评论B辑》65，035109。71. Wu, Q., Zhang, S., Song, H.-F., Troyer, M., Soluyanov, A. A.（2018）。WannierTools：用于新型拓扑材料的开源软件包，《计算物理学通讯》224，405。

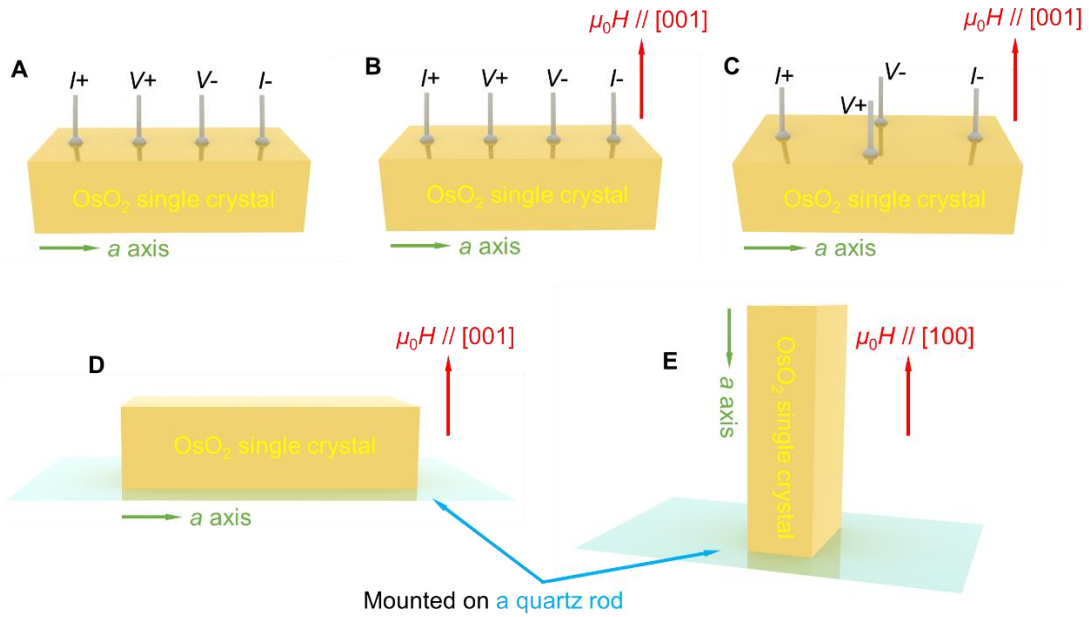

图 S1。 OsO_2 单晶的电输运和磁学测量几何构型。(A) 电流沿晶体学*a*轴施加时的电输运四探针配置。(B) 电流沿*a*轴、磁场垂直于样品表面施加时的磁阻测量几何构型。(C) 电流沿*a*轴、在样品平面内测量横向霍尔电压，且磁场沿 [001]施加时的霍尔测量几何构型。(D) 磁场垂直于样品表面施加时的面外磁化测量。(E) 磁场平行于[100] 方向施加时的面内磁化测量。

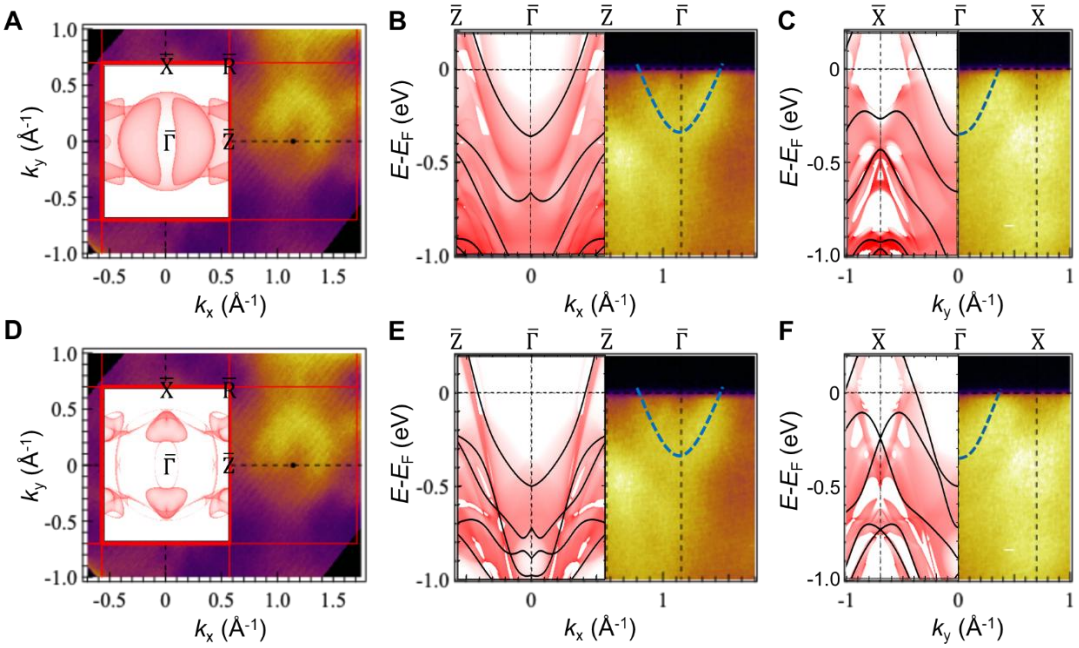

图 S2。 角分辨光电子能谱测量与有自旋轨道耦合和无自旋轨道耦合的密度泛函理论计算的比较。采用U = 1 eV的位点库仑相
有（A–C）和无（D–F）自旋轨道耦合时的角分辨光电子能谱数据与密度泛函理论计算结果。红色阴影区域表示体能带在(101
黑线则表示k_z = 0.25π/c'处的体能带，其中c'为垂直于(101)方向的晶格矢量。

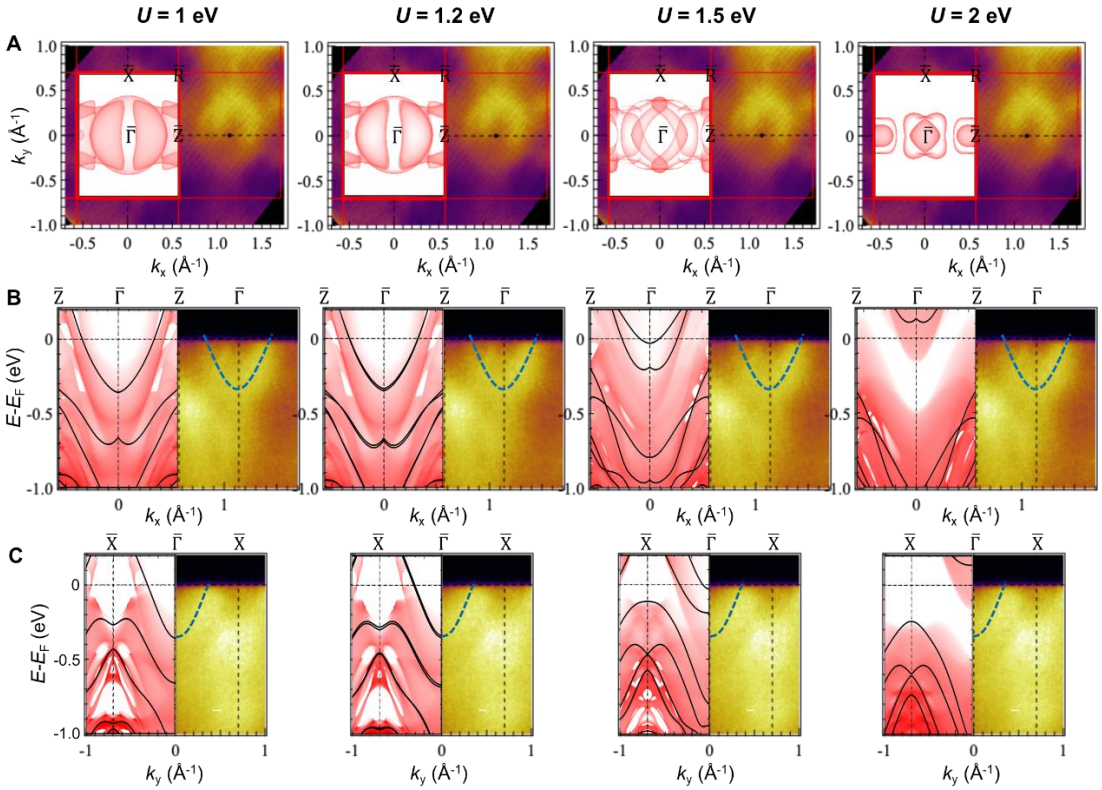

图 S3。 角分辨光电子能谱–不同位点库仑相互作用下的密度泛函理论对比 *U*。角分辨光电子能谱数据与采用不同*U*的密度泛函理论计算结果对比：费米面（A）、沿$\bar{Z}-\bar{\Gamma}-\bar{Z}$（B）以及沿$\bar{\Gamma}-\bar{X}-\bar{\Gamma}$（C）的能带结构。计算中考虑了自旋轨道耦合效应。红色阴影区域表示体能带在(101)表面上的投影，黑线对应于k_z = 0.25π/*c*′处的体能带，其中*c*′为垂直于(101)方向的晶格矢量。