

## Unexpected Magnetic Behaviors in an Altermagnet Candidate RuO<sub>2</sub>

Jae Hyuck Lee, San Kang, and Changyoung Kim

*Department of Physics and Astronomy, Seoul National University, Seoul 08826, Korea*

Suyoung Lee\*

*The Research Institute of Basic Sciences, Seoul National University, Seoul 08826, Korea*

(Received 28 October 2024, Received in final form 31 October 2024, Accepted 31 October 2024)

RuO<sub>2</sub> is a prototypical altermagnet candidate that has attracted much attention due to its potential in spintronic applications. Despite the extensive research, however, the exact nature of its magnetic ground state has not yet reached a full consensus. In hopes of clearing out some of the ambiguity surrounding the magnetism of this material, we have performed temperature dependent magnetic susceptibility and magnetic transport measurements on high quality single crystal RuO<sub>2</sub>. Two stable phases with different stoichiometries are found via X-ray diffraction, and an unexpected splitting between Zero-Field-Cooled (ZFC) and Field-Cooled (FC) magnetic susceptibility data is observed at  $T^* = 230$  K. We also report an extreme magnetoresistance of 6,800% at 2 K. Such results suggest that a combination of careful characterization of sample quality and a rigorous study on its electronic structures is necessary to determine the exact magnetism of this material, on top of studying its apparent magnetic properties.

**Keywords :** RuO<sub>2</sub>, altermagnetism, extreme magnetoresistance, topology

### 대표적인 교자성 후보 이산화루테늄에서 관측된 비정상적 자기 특성들

이재혁 · 강산 · 김창영

서울대학교 물리천문학부 물리학과, 서울시 관악구 관악로1, 08826

이수영\*

서울대학교 기초과학연구원, 서울시 관악구 관악로1, 08826

(2024년 10월 28일 받음, 2024년 10월 31일 최종수정본 받음, 2024년 10월 31일 게재확정)

이산화루테늄(RuO<sub>2</sub>)은 최근 새롭게 제시된 자성 상인 교자성의 대표적인 후보물질로서 큰 주목을 받고 있으나 그 자성 바닥 상태가 명확하게 규명되지 않은 상태이다. 본 연구에서는 해당 물질 자성의 모호함을 해결하기 위해 온도에 따른 자기 감수율의 변화와 자기 수송 특성 측정을 고품질의 RuO<sub>2</sub>에 진행하였다. 이를 통해 우리는 RuO<sub>2</sub> 단결정에 화학 조성비가 다른 두 개의 안정적인 상이 공존함을 확인하였으며,  $T^* = 225$  K에서 field-cooled(FC) 자기 감수율이 zero-field-cooled(ZFC) 자기 감수율보다 작아지는 변칙점을 발견하였다. 나아가  $T = 2$  K에서 6,800%의 큰 자기저항을 발견하였다. 이러한 결과는 해당 물질의 자성을 규명하기 위해서는 자성 측정뿐만 아니라 통제된 결정 성장 연구 및 전자구조 연구가 다각적이고 복합적으로 이루어질 필요성을 시사한다.

**주제어 :** 이산화루테늄, 교자성, 극한자기저항, 위상

## I. 서 론

일반적인 공선자성(collinear magnetism)을 가진 물질들은 강자성(ferromagnetism)을 지니거나 반강자성(antiferromagnetism)을 지니는 것으로 알려져 있다. 특히 반강자성체는 반평행한 스핀 부격자(spinn sublattice) 사이를 연결하는 반전 변환(inversion operation) 또는 병진 이동 변환(translation operation)이 존재하여, 물질의 유효 시간 반전 대칭성(effective time-reversal symmetry)이 보존된다. 이에 따라 크래머 축퇴 정리(Kramers theorem)에 의하여 전자 구조는 모든 운동량에서 스핀 축퇴(spinn-degenerate) 되어 있으며 이상 홀 효과(anomalous Hall effect) 등의 거시적 시간 반전 대칭성 깨짐 현상 역시 기대되지 않는다[1].

그런데 최근 몇 년간 공선 반강자성을 가지는 물질군에서 스핀-궤도 결합(spinn-orbit coupling) 효과를 고려하지 않고도 스핀이 갈라진 전자구조가 예측되거나 이상 홀 효과가 관측되는 등 유효 시간 역전 대칭이 붕괴된 공선 반강자성 물질들이 지속적으로 예측 또는 발견되었다[2-7]. 해당 물질들은 이웃하는 스핀 부격자의 스핀 성분이 서로 반평행하여 전체 자화는 없으나, 기존의 공선 반강자성체와는 달리 이웃하는 스핀 부격자가 병진 이동 변환이나 반전 변환이 아닌 회전 변환에 의해 연결된다. 이러한 유효 시간 반전 대칭성의 부재로 인해 크래머 축퇴성이 깨져 전자구조상 스핀 갈라짐(spinn splitting)이 나타나게 된다[8]. 최근의 다양한 보고들은 이러한 공선 자성체들을 기존의 반강자성이 아닌 교차성(altermagnetism)이라는 새로운 자성상으로 분류하고 있으며, 이 중 루타일(rutile) 구조[Fig. 1(a)]의 이산화 루테늄( $\text{RuO}_2$ )은 큰 스핀 갈라짐 밴드 구조와 이상 홀 효과 등 시간 역전 대칭 붕괴의 증거를 보이는 유력한 교차성 후보 물질로 잘 알려져 있다[6-8].

$\text{RuO}_2$ 는 대표적인 루타일 구조 물질 중 하나로, Figs. 1(a, b)에서 볼 수 있듯 루테늄 이온 주변 산소 이온들의 배치가 비등방적인 팔면체를 형성한다. 이러한 격자구조에서 루테늄 이온이 반평행한 스핀 배열을 가지게 되면 변형된 산소 팔면체가 두 스핀 부격자 사이의 반전 또는 병진 대칭성을 깨뜨리고 4회(4-fold) 회전 변환에 의해서만 연결될 수 있어 교차성의 대칭성 조건을 만족한다. 밀도 범함수 이론(density functional theory)을 이용한 선행 이론 연구들에 의하면 최대 1,400 meV 규모의 스핀 갈라짐 에너지를 가질 것으로 예측되었다[4]. 이리듬이 도핑된  $\text{RuO}_2$ 의 전자 구조에서의 디랙 마디선(Dirac nodal line)의 존재를 실험적으로 밝힌 기존 보고는 교차성과 비자명 위상의 공존으로부터 발견되는 다양한 물리 현상의 가능성을 제시한다[9]. 또한 이산화 루테늄의 큰 스핀 갈라짐 에너지와 스핀-궤도 결합

효과에 의해 스핀 가르개 토크(spinn splitter torque: SST), 기울어진 스핀 전류(tilted spinn current) 등 다양한 스핀트로닉스 현상이 지속적으로 보고되었다. 이렇듯  $\text{RuO}_2$ 는 대표적인 프로토타입 교차성 후보물질로서, 기존의 강자성 및 반자성 소재의 한계를 극복한 고성능 소자로서 응용될 수 있는 잠재성을 보유하여 큰 기대를 모으며 활발한 연구가 진행되고 있다[10,11].

이러한 연구 동향에도 불구하고 최근까지도  $\text{RuO}_2$ 의 자성 바닥 상태에 관한 논쟁이 지속되고 있다. 중성자 회절 실험[12], 공명 엑스선 산란 실험(resonant X-ray scattering)[13], 밀도 범함수 이론 계산[4,6]에 관한 보고 등이  $\text{RuO}_2$ 에 공선 반강자성이 존재함을 뒷받침하는 한편, 이에 상반되는 결과들이 최근 지속적으로 발견되고 있다. 불순물이나 결함이 없는 순수한 단결정 이산화 루테늄에 대해서 뮤온 스핀 회전과 풀림(muon spinn rotation and relaxation) 측정을 통하여 자성 바닥 상태를 관측한 결과 루테늄 이온의 반평행한 스핀 정렬에 의한 뮤온 스핀 신호가 검출되지 않아 상자성체(paramagnet)임을 시사하는 실험 결과가 보고되었다[14]. 또한 단결정  $\text{RuO}_2$ 의 홀 효과를 측정된 결과 비정상 홀 효과가 검출되지 않아, 박막 시료에서의 비정상 홀 효과를 통해 교차성의 존재를 주장한 기존의 보고[7]와는 상반되는 결과를 보였다[15]. 이에 더해 밀도 범함수 이론과 허버드 모델(Hubbard model)을 통해 계산한 결과,  $\text{RuO}_2$ 의 자성은 루테늄 결합 등으로 인한 홀 도핑과 Hubbard U 값에 따라 그 크기가 극히 민감하게 변함이 예측된 바 있다[16]. 기존  $\text{RuO}_2$ 의 실험적 보고들이 상충하는 결과를 보이는 것 역시 이러한 화학량론적(stoichiometric) 민감함이 원인일 것으로 보인다[16]. 이렇듯 순수한  $\text{RuO}_2$ 의 자성 바닥 상태가 교차성인지 상자성인지에 대한 논의가 끊임없이 이루어지고 있다.

앞서 언급했듯이  $\text{RuO}_2$ 는 대표적인 교차성 후보 물질로서 기초연구와 응용 측면에서 모두 큰 관심을 끌고 있음에도 불구하고, 그 바닥 자성 상태가 여러 물리 변수의 변화에 크게 민감한 성질이 있어,  $\text{RuO}_2$ 의 자성에 관하여 총의가 이루어지지 않은 실정이다. 특히 결정에 존재하는 불순물, 구성 이온 결핍 등도 이러한 불일치를 심화시키는 요인으로 작용한다. 본 연구에서는 단결정  $\text{RuO}_2$ 을 자체적으로 성장시켜 불순물이 없는 고품질  $\text{RuO}_2$ 의 자성 바닥 상태를 탐구하고자 하였다. 이에 따라 온도에 따른 자기 감수율과 비저항, 그리고 외부 자기장에 대한 자기저항 측정을 진행하였다. 그 결과 온도에 따른 자기 감수율에서  $T^* = 225$  K에 존재하는 변칙점(anomaly)을 확인하였으며, 저온에서 비자명적 위상과 관련이 있을 수 있는 극한 자기저항(extreme magnetoresistance: XMR)을 측정하는 데 성공하였다.

## II. 실험 방법

### 1. 단결정 시료 합성

분진형태의 폴리 크리스털 RuO<sub>2</sub>를 단단한 펠렛 형태로 만들고, 좁은 알루미늄 도가니에 넣었다. 밀봉하지는 않은 상태로 뚜껑을 덮고 전기로에 넣어 열을 가해주었다. 1,473 K으로 빠르게 온도를 올리고 1,023 K까지 시간당 1.25 K의 속도로 식혔다. 1,023 K가 되면 전기로를 끄고 빠르게 식혀주었다. 알루미늄 도가니 벽면에 푸른빛이 도는 검은 금속 단결정이 길러지며, 단결정들의 평균적인 크기는 1 × 0.5 × 0.5 mm<sup>3</sup>이었다[Fig. 1(c)].

### 2. 시료 물성분석

불순물 없는 루타일 구조의 RuO<sub>2</sub>가 잘 성장되었는지 확인하기 위하여 단결정을 갈아 낸 다음 분진 엑스선 회절법(X-ray diffraction: XRD)을 진행하였다. Bruker사의 D8 Advanced 모델을 사용하여 각도 증가율을 0.015도로 고해상도 분진 XRD 측정을 진행하였고, 엑스선은 Cu-K<sub>α</sub> 선을 사용하였다.

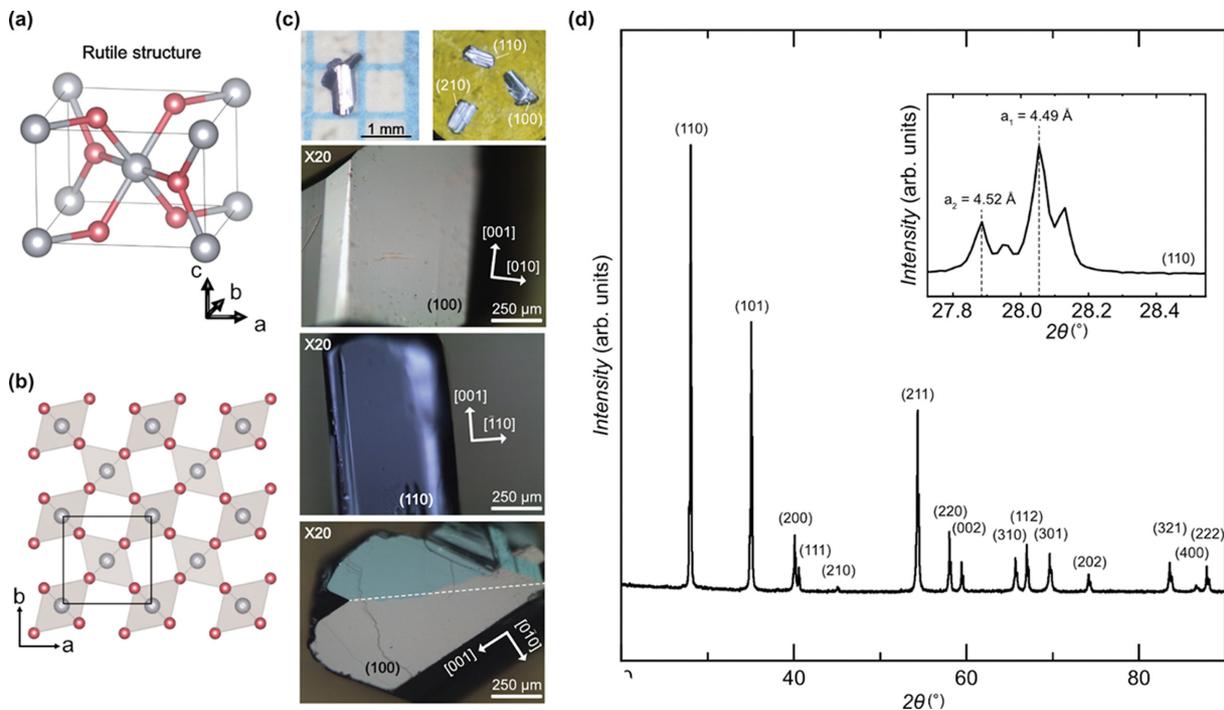
직류 자기 감수율( $\chi_{dc}$ ) 측정은 자기장을 걸어준 상태로 냉각시킨(field cooling: FC) 자기 감수율과 자기장을 걸어주지 않고 냉각시킨(zero field cooling: ZFC) 자기 감수율을 외부 자기장 7 T 크기로 설정하여 Quantum Design사의 MPMS3

모델로 진행하였다. 외부 자기장의 방향은 [100] 방향과 평행하게 설정했다. 단결정 시료를 한 개 또는 여러 개 석영 시료 홀더에 GE varnish로 고정한 후 측정하였다. 저항 측정은 Quantum Design사의 PPMS 모델로 진행하였다. 전류 방향은 [001] 방향으로 걸어 주었다.

## III. 결과 및 논의

Methods 부분에서 설명한 합성법은 지금까지 주로 사용되었던 산소 분압을 흘려주며 복수 영역 전기로에서 진행하는 합성법과 원리는 같지만 실험 구성이 다른, 더 간편한 방법이다[17-19]. Fig. 1(c) 사진들에 볼 수 있듯이 단결정의 모양은 일반적으로 막대 형태, 혹은 쌍정면을 가진 화살촉 모양(마지막 현미경 사진)으로 형성된다. 이는 기존에 보고되었던 형태들과 일치한다[13,17-19]. 단결정 면의 배향을 확인하기 위해서 엑스선 라우에 뒤쪽 산란법(Laue back-scattering)으로 확인해 본 결과, (101), (100), (110) 면뿐만 아니라 (210) 혹은 (310) 면들도 자연스럽게 형성되는 것을 확인하였다.

형성된 단결정 면들은 보편적으로 두 가지 형태로, 오각형(혹은 육각형)이거나 긴 직사각형이었다. 오각형(혹은 육각형)의 넓은 결정면은 선행 연구들에서 보고된 바와 마찬가지로 (101) 면임을 확인하였다[18]. 긴 직사각형 면의 경우, 일반적



**Fig. 1.** (Color online) (a), (b) Structure of RuO<sub>2</sub>. (c) Typical morphology and crystallography of RuO<sub>2</sub> single crystals and microscope images of the typical growth facets. (d) Powder XRD of the grinded single crystals of RuO<sub>2</sub>. The inset shows a detailed plot near the (110) peak, displaying two well-defined sharp peaks. Note that the double-peaked feature of each peak comes from the Cu-K<sub>α1</sub> and Cu-K<sub>α2</sub>.

으로 폭이 두꺼운 면과 좁은 면이 인접하여 결정이 자라는 것을 확인하였다[Fig. 1(c)의 첫 번째 현미경 사진 참고]. 하지만 기존에 보고된 바[18]와는 다르게, 직사각형 면의 폭에 관계없이 직사각형 면이 (100) 또는 (110) 면으로 성장할 수 있음 확인하였다. 더 나아가, 선행 연구들[17,18]에는 보고되어 있지 않은 (210) 혹은 (310) 면의 발생 빈도가 오히려 (110) 면보다 높음을 확인하였다. 즉, (101) 면을 제외하면, 외관상으로는 (100), (210), (310), (110) 면들을 구분할 수 없음을 밝혀내었고, (210) 혹은 (310) 면의 발생 빈도가 혼함을 확인하였다.

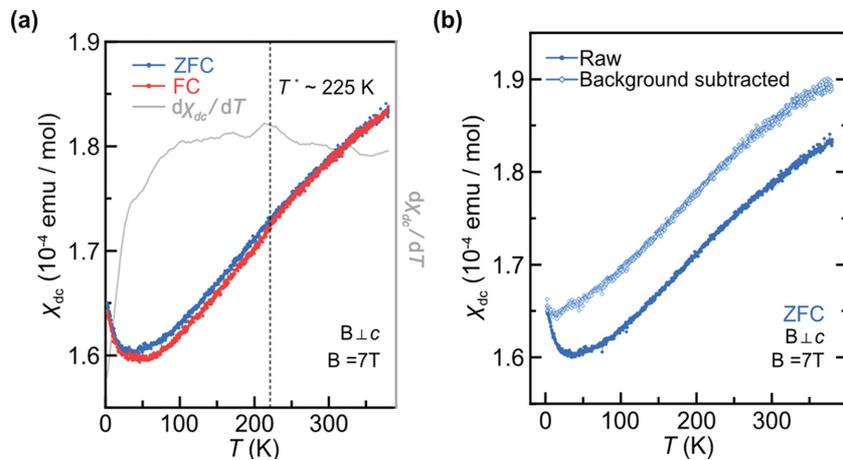
RuO<sub>2</sub>의 구조에 존재하는 큰 이방성은 해당 물질에서 교차성이 발현될 가능성이 있게 하는 핵심적인 원인이 된다. 이런 이유로 RuO<sub>2</sub> 단결정 실험을 진행할 때는 단결정면 배향, 다시 말해 측정 방향이 중요하다. 외관상 단결정면 확인이 까다롭고, 알려진 바와는 다른 다양한 방향의 면들이 성장한다는 우리의 결과를 바탕으로, 실험 전 단결정 면을 라우에산란과 같은 방법으로 매번 정확하게 확인할 필요가 있음을 지적한다.

불순물에 예민하게 반응하는 자성 측정과 수송 특성을 측정하기 전에 시료의 순도를 검증하기 위하여 단결정 몇 개를 임의로 선택하여 갈아낸 후, 분말 XRD로 구조분석을 하였다[Fig. 1(d)]. RuO<sub>2</sub> 이외의 불순물 상은 검출되지 않았으며, RuO<sub>2</sub> 루타일(rutile) 구조(P<sub>4</sub>/mmm, 136)[Fig. 1(a)] 결정 방향에 대응하는 봉우리들을 모두 확인하였고 Fig. 1(d) 그림에 표기하였다.

실험 결과를 자세히 들여다본 결과, 불순물의 부재는 확인하였지만, 모든 면 봉우리에 대해서 인접한 2개의 봉우리가 존재함을 확인하였다[Fig. 1(d) 내부 그림 확인]. 인접한 2

개의 봉우리들은 모두 좁은 너비로 잘 정의가 되었고, 브래그 반사 조건에 의하면 각각의 봉우리들이 나타내는 x축 격자 상수는 각각 a<sub>1</sub> = 4.49 Å와 a<sub>2</sub> = 4.52 Å이다. 이는 화학적 조성비가 다른 두개의 RuO<sub>(2-δ)</sub> 안정적인 상이 존재함을 확인한 것이다. 주된 상을 이루는 a<sub>1</sub> 격자 상수 값은 기존 보고된 값들과 오차 범위 내에서 일치하였다[17,18]. 하지만 그보다 작은 비율로 존재하는 a<sub>2</sub>의 경우, a<sub>1</sub>와 비교하여 ~0.7% 더 크다는 것을 확인하였다. 이러한 결과는 단결정 성장 조건에 따라서, 다시 말하면 산소 분압에 따른 산소 결핍 정도에 따라서, 단결정의 모양, 잔류 저항 비(residual resistivity ratio: RRR) 혹은 화학 조성비가 달라짐을 언급한 참고 문헌들의 결과[17,18]와 결이 일치한다. 하지만 우리 결과와 같이 같은 조건에서 동시에 성장된 RuO<sub>2</sub>에서도 잘 정의된 안정적인 화학 조성비상(적어도) 2가지 관측된다는 것은 저자들의 지식에 의하면 첫 보고이다. 이렇듯 성장 조건에 따라 예민하게 화학 조성비가 바뀔 수 있고 심지어 복수의 안정적인 상들이 존재하는 RuO<sub>2</sub>의 성질은 해당물질의 현재까지 보고된 여러 상충되는 자성 및 수송 특성들의 원인이 될 수 있음을 보여준다.

이러한 배경으로, XRD로 불순물의 부재가 확인된 단결정 시료들에 대한 자성 측정을 진행하였다. Fig. 2(a)는 온도에 따른 단결정의 자기 감수율 변화를 보여준다. 파란색 선은 외부 자기장이 없는 상태에서 시료를 식힌 후 온도를 올리며 측정한 ZFC 결과이다. 빨간색 선은 7 T 크기의 외부 자기장을 [001] 방향으로 수직으로 걸어준 상태로 시료를 식히고 온도를 올리며 측정한 FC 결과이다. 두 결과 모두 상변이 네엘 온도(Neel temperature)에서 최대를 가지는 일반적인 반강자성 특성을 따르지 않는다. 또한, 300 K 이상에서 어떠한



**Fig. 2.** (Color online) (a) Temperature dependent magnetic susceptibility ( $\chi_{dc}$ ) curves of RuO<sub>2</sub>. The blue and red circles each represent the Zero Field Cooled (ZFC) and Field Cooled (FC)  $\chi_{dc} - T$  curves in an external magnetic field (B) of 7 T, respectively. B was applied perpendicular to the [001] direction. The gray line displays the first derivative ( $d\chi/dT$ ) of the FC curve and the kink near 225 K is indicated by the dotted black vertical line. (b) The filled blue circles represent the raw data while the open blue circles show the raw data subtracted by the background signal.

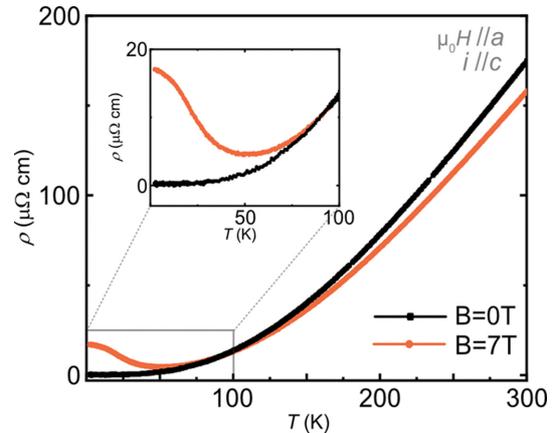
뚜렷한 형태의 상변이는 보이지 않았으며, 몇몇 참고문헌[7,8]들이 제시한 300 K 이상의 네엘 온도는 확인할 수는 없었다. 이는 측정 온도 범위에서 RuO<sub>2</sub>에는 상자성-반강자성 상변이가 없거나, RuO<sub>2</sub>의 자화 신호가 약해 검출되지 않았을 가능성이 있다.

반면, 흥미롭게도 225 K(T\*) 근처에서 ZFC와 FC가 갈라짐을 확인할 수 있었다[Fig. 2(a)의 검은 점선 확인]. 이러한 225 K 근처에서의 이상 변이는 FC에서 더 확실하게 드러난다. 이는 Fig. 2(a)의 열은 회색 선으로 표기된 FC 곡선의 미분값에서 225 K 근처의 급격한 기울기 변화로부터 분명하게 확인할 수 있다. 더욱 특이한 점은 225 K 아래 온도에서 FC의 자기 감수율이 ZFC의 자기 감수율보다 작다는 것이다. 이런 특이 현상은 교차성이나 반강자성 등 기존의 어떤 자성으로도 설명이 어렵다. 참고로 이러한 경향성은 외부 자기장의 방향에 상관없이 나타났다. 다만 외부 자기장이 약할 경우(B < 1 T)에는 RuO<sub>2</sub>의 자화 신호 크기 자체가 기계 측정 분해능만큼 작아 뚜렷한 자기 감수율 측정이 불가능하였다.

다른 측정법을 이용한 실험 결과에서도 해당 온도 T\*에서 특이성이 나타나는 것이 보고된 바 있다. 참고문헌[13]에서는 박막과 단결정 RuO<sub>2</sub>에 대해 공명 엑스선 산란 실험을 수행하여, 자성 신호에 해당하는 (100) 반사 봉우리의 세기가 225 K 근방에서 급격히 감소하는 것을 확인하고 이를 해당 온도에서 나타나는 스핀-스핀 상관관계의 변화로 해석하였다[13]. 이렇듯 다른 복합적인 물리 변수들을 살펴 보았을 때, 225 K 근처 온도 영역대에서 어떠한 변칙성이 일괄적으로 보고되고 있다. 이에 관련된 자성 변화를 이해하기 위한 후속 연구가 필요할 것으로 보인다.

마지막으로 50 K 아래쪽에서 자기 감수율이 급격히 증가하는 현상과 원인에 대해서 알아보았다. Fig. 2(b)의 그래프는 측정 그대로의 ZFC 자기 감수율 결과와 배경 신호를 뺀 ZFC 자기 감수율 결과를 동시에 보여주고 있다. 배경 신호는 시료들을 부착한 석영과 GE varnish, varnish 안에 소량 포함된 산소를 포함하는 것으로 보인다[21]. 50 K 근방에서 자기 감수율의 꺾임 현상은 사용한 석영 홀더와 GE varnish에서 기인함을 확인할 수 있었다.

다음으로 RuO<sub>2</sub> 단결정의 전기적 수송 특성을 측정하였다. Fig. 3은 RuO<sub>2</sub>의 온도에 따른 전기저항을 나타낸다. 외부 자기장이 없을 때(B = 0)의 저항 추이로부터 720의 RRR가 산출되었다. 이렇듯 높은 RRR 값으로부터 불순물이 적은 고품질 단결정이 성장되었음을 다시 한번 확인할 수 있다. 특기할 만한 점으로 B = 7 T의 외부 자기장을 [100] 방향으로 가하여 냉각하면서 측정한 저항과 비교하였을 때, 90 K부터 300 K까지는 음의 자기저항이, 90 K 아래에서는 양의 자기저항이 나타난다. 특히 2 K에서 6,800%에 달하는 등 큰



**Fig. 3.** (Color online) Resistivity versus temperature of RuO<sub>2</sub>. The orange and black lines each represent the  $\rho - T$  curves with and without an external magnetic field of 7 T parallel to the [100] direction, respectively. The inset zooms into the temperature range up to  $T = 100$  K where the large magnetoresistance is present.

XMR이 확인되었다. 이는 기존 RuO<sub>2</sub> 단결정이나 박막에 관한 보고가 통상적인 금속에서 나타나는 수 %에서 수십 %가량의 양의 자기저항을 보인 것과 대조적인 결과이다[7,15,22-25].

일부 물질군에서 XMR이 발생하는 원인은 명확하게 규명되지 않았으나, 주로 (i) 전자-홀 보상(electron-hole compensation)이 일어나는 다중띠(multiband) 준금속이나, (ii) 바일 페르미 입자(Weyl fermion), 위상 마디 등의 위상 비자명 특성이 존재하는 물질에서 나타날 수 있는 것으로 알려져 있다[26-30]. RuO<sub>2</sub>는 제일원리 계산을 통해 페르미 준위에 전자와 홀이 모두 존재할 것으로 예측되고, 전자구조상 위상 마디선이 존재함이 확인된 바 있다[9,31]. 그럼에도 불구하고 기존에 XMR이 관측되지 않은 것은 결정의 조성비와 성장 조건에 따라 전자 구조와 페르미 준위가 민감하게 변해 전자-홀 밀도와 위상학적 특성에 영향을 미친 것으로 보인다. 따라서 RuO<sub>2</sub>의 자기 수송특성을 명확히 이해하기 위해서는 미세한 변수 조정에 따른 전자구조 변화에 관한 체계적인 탐구가 수행되어야 할 것으로 생각된다. 또한 XMR은 외부 자기장의 방향에 따라 큰 이방성을 보이는 것으로 알려져 있고, 특히 바일 페르미 입자 등의 위상학적 특성이 있을 경우 자기장과 전류의 상대적 방향에 따른 큰 이방성이 예측된다. 따라서 각도에 따른 체계적인 자기저항 측정을 수행한다면 RuO<sub>2</sub>에서 나타나는 XMR의 원인과 특성에 관해 더 자세한 정보를 얻을 수 있을 것으로 보인다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 고품질 RuO<sub>2</sub> 단결정의 자성 및 수송 특성 측정을 수행하였다. 자기 감수율 상에서 통상적인 반강자성체

에서 기대되는 상자성체-반강자성체 상전이는 발견되지 않았고,  $T^* = 225$  K를 기준으로 FC의 자기 감수율이 ZFC보다 작아지는 변칙점을 발견하였다. 또한 자기 수송 특성 측정으로부터 기존에 보고된 바 없는  $T = 2$  K, 외부 자기장 7 T에서 6,800%에 달하는 매우 큰 자기저항을 확인하였다. 이렇듯 새로운 자성 및 수송 특성들이 나타난 것은 RuO<sub>2</sub>에서 자성, 전자 상호작용, 위상, 격자 등 다양한 물리 변수가 공존하고 있어 구조나 조성상의 경미한 차이가 물성의 큰 변화를 유도할 수 있기 때문으로 생각된다. 추후 RuO<sub>2</sub>의 전자 구조와 자성에 관한 체계적인 추가 연구가 이루어진다면 새로운 자성, 위상, 강상관계 물리 등을 복합적으로 연구하고 나아가 고성능 스핀트로닉스 소자로 활용할 수 있는 자유도 높은 물질 플랫폼으로 부상할 수 있을 것으로 기대된다.

### 감사의 글

The work by J. H. Lee, S. Kang, and C. Kim was supported by the Global Research Development Center (GRDC) Cooperative Hub Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by the Ministry of Science and ICT (MSIT) (Grant No. RS-2023-00258359) and the NRF grant funded by the Korean government (MSIT) (Grant No. NRF-2022R1A3B1077234). The work by S. Lee was supported by Ascending SNU Future Leader Fellowship through Seoul National University.

### References

- [1] L. Néel, *Magnetism and Local Molecular Field*, Science. **174**, 985 (1971).
- [2] L. Šmejkal, R. González-Hernández, T. Jungwirth, and J. Sinova, *Sci. Adv.* **6** (2020).
- [3] L. D. Yuan, Z. Wang, J. W. Luo, E. I. Rashba, and A. Zunger, *Phys. Rev. B*. **102**, 014422 (2020).
- [4] S. A. Egorov and R. A. Evarestov, *J. Phys. Chem. Lett.* **12**, 2363 (2021).
- [5] R. D. G. Betancourt, J. Zubáč, R. Gonzalez-Hernandez, K. Geishendorf, Z. Šobáň, G. Springholz, K. Olejník, L. Šmejkal, J. Sinova, T. Jungwirth, S. T. B. Goennenwein, A. Thomas, H. Reichlová, J. Železný, and D. Kriegner, *Phys. Rev. Lett.* **130**, 036702 (2023).
- [6] K. H. Ahn, A. Hariki, K. W. Lee, and J. Kuneš, *Phys. Rev. B*. **99**, 184432 (2019).
- [7] Z. Feng, X. Zhou, L. Šmejkal, L. Wu, Z. Zhu, H. Guo, R. González-Hernández, X. Wang, H. Yan, P. Qin, X. Zhang, H. Wu, H. Chen, Z. Meng, L. Liu, Z. Xia, J. Sinova, T. Jungwirth, and Z. Liu, *Nat. Electron.* **5**, 735 (2022).
- [8] L. Šmejkal, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. X*. **12**, 040501 (2022).
- [9] V. Jovic, R. J. Koch, S. K. Panda, H. Berger, P. Bugnon, A. Magrez, K. E. Smith, S. Biermann, C. Jozwiak, A. Bostwick, E. Rotenberg, and S. Moser, *Phys. Rev. B*. **98**, 241101(R) (2018).
- [10] S. Karube, T. Tanaka, D. Sugawara, N. Kadoguchi, M. Kohda, and J. Nitta, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 137201 (2022).
- [11] A. Bose, N. J. Schreiber, R. Jain, D. F. Shao, H. P. Nair, J. Sun, X. S. Zhang, D. A. Muller, E. Y. Tsymal, D. G. Schlom, and D. C. Ralph, *Nat. Electron.* **5**, 267 (2022).
- [12] T. Berlijn, P. C. Snijders, O. Delaire, H.-D. Zhou, T. A. Maier, H.-B. Cao, S.-X. Chi, M. Matsuda, Y. Wang, M. R. Koehler, P. R. C. Kent, and H. H. Weitering, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 077201 (2017).
- [13] Z. H. Zhu, J. Stempfer, R.R. Rao, C. A. Occhialini, J. Pelli-ciari, Y. Choi, T. Kawaguchi, H. You, J. F. Mitchell, Y. Shao-Horn, and R. Comin, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 017202 (2019).
- [14] M. Hiraiishi, H. Okabe, A. Koda, R. Kadono, T. Muroi, D. Hirai, and Z. Hiroi, *Phys. Rev. Lett.* **132**, 166702 (2024).
- [15] F. Pawula, A. Fakih, R. Daou, S. Hébert, N. Mordvinova, O. Lebedev, D. Pelloquin, and A. Maignan, *Phys. Rev. B*. **110**, 064432 (2024).
- [16] A. Smolyanyuk, I. I. Mazin, L. Garcia-Gassull, and R. Valentí, *Phys. Rev. B*. **109**, 134424 (2024).
- [17] S. R. Butler and J. L. Gilson, *Mat. Res. Bull.* **6**, 81 (1971).
- [18] Y. S. Huang, H. L. Park and F. H. Pollak, *Mat. Res. Bull.* **17**, 10, 1305 (1982).
- [19] H. L. Park, *J. Korean Phys. Soc.* **15**, 1 (1982).
- [20] S. Gregory, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 723 (1978).
- [21] J. J. Lin, S. M. Huang, Y. H. Lin, T. C. Lee, H. Liu, X. X. Zhang, R. S. Chen, and Y. S. Huang, *J. Phys. Condens. Matter.* **16**, 8035 (2004).
- [22] S. Gabáni, V. Pavlík, K. Flachbart, J. Varga, and A. Pietriková, *Czech. J. Phys.* **54**, 663 (2004).
- [23] T. Tschirner, P. Keßler, R. D. G. Betancourt, T. Kotte, D. Kriegner, B. Büchner, J. Dufouleur, M. Kamp, V. Jovic, L. Šmejkal, J. Sinova, R. Claessen, T. Jungwirth, S. Moser, H. Reichlova, and L. Veyrat, *APL Mater.* **11**, 101103 (2023).
- [24] A. K. Rajapitamahuni, S. Nair, Z. Yang, A. K. Manjeshwar, S. G. Jeong, W. Nunn, and B. Jalan, *Phys. Rev. Mat.* **8**, 075002 (2024).
- [25] N. Wakeham, E. D. Bauer, M. Neupane, and F. Ronning, *Phys. Rev. B*. **93**, 205152 (2016).
- [26] F. Tang, X. Shen, J. Zhou, S. Cong, L. Zhang, W. Zhou, Z.-D. Han, B. Qian, X.-F. Jiang, R.-K. Zheng, W. Zhao, X.-C. Kan, J. Tang, Y.-Y. Han, X.-Q. Yin, Y. Fang, and, S. Ju, *Mater. Today Phys.* **24**, 100657 (2022).
- [27] J. Diaz, K. Wang, J. Straquadine, C. Putzke, Q. Yang, B. Yan, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, and P. J. W. Moll, *Nat. Commun.* **15**, 4585, (2024).
- [28] M. N. Ali, J. Xiong, S. Flynn, J. Tao, Q. D. Gibson, L. M. Schoop, T. Liang, N. Haldolaarachchige, M. Hirschberger,

- N. P. Ong, and R. J. Cava, *Nature*. **514**, 205 (2014).
- [29] C. Shekhar, A. K. Nayak, Y. Sun, M. Schmidt, M. Nicklas, I. Leermakers, U. Zeitler, Y. Skourski, J. Wosnitza, Z. Liu, Y. Chen, W. Schnelle, H. Bormann, Y. Grin, C. Felser, and B. Yan, *Nat. Phys.* **11**, 645 (2015).
- [30] B. Y. Yavorsky, O. Krasovska, E. Krasovskii, A. Yaresko, and V. Antonov, *Phys. B: Condens. Matter*. **225**, 243 (1996).