

MAX-BORN-PREIS

Chiralität und Topologie

Diese beiden Konzepte finden weit über die Physik hinaus Anwendung und könnten fundamentale Fragen in unterschiedlichsten Disziplinen lösen.

Claudia Felser

Das in der Mathematik gut etablierte Konzept der Topologie ist heute unerlässlich, um die elektronische Struktur von Festkörpern zu beschreiben. Im Mittelpunkt stehen chirale Elektronenzustände auf den Oberflächen von Kristallen und den Rändern von Quantentopfstrukturen, bei denen Spin und Impuls der Elektronen gekoppelt sind. Die Möglichkeit, Chiralität aus der Quantenperspektive mit anderen chiralen Phänomenen zu verbinden – beispielsweise der Asymmetrie von Materie und Antimaterie oder der Homochiralität des Lebens – eröffnet neue physikalische Forschungsperspektiven.

Die Topologie ist eine neue wichtige und interdisziplinäre Richtung der Physik der kondensierten Materie, der Festkörperchemie und Materialwissenschaft. In der Mathematik beschreibt sie die Oberflächen von Objekten: Diese sind identisch, wenn sie durch eine kontinuierliche Verformung ineinander übergehen. Bisher galt die Annahme, dass die Energie-Impuls-Beziehungen der Elektronen – die „Bandstrukturen“ – die elektronischen Eigenschaften von Festkörpern vollständig beschreiben. Dabei bestimmen im Wesentlichen die Symmetrie und die Valenzelektronen des Kristalls diese Strukturen. Die Topologie der Wellenfunktion von Festkörpern basiert je-

doch neben der Symmetrie im Ortsraum und der daraus resultierenden Bandstruktur im Impulsraum auch auf relativistischen Effekten, etwa der Spin-Bahn-Kopplung, Spin-Impuls-Kopplung und Bandinversion. Wenn Spin und Impuls der Elektronen gekoppelt sind, sind diese chiral, weil Bild und Spiegelbild nicht übereinstimmen (**Abb. 1a**). Mit dem Quanten-Hall-Effekt hielt die Topologie Einzug in der Festkörperphysik [1]. Neue theoretische Konzepte zeigen, dass viele anorganische Materialien verschiedene topologische Aspekte aufweisen, insbesondere beim Betrachten elektronischer Zustände ober- und unterhalb der Fermi-Energie [2].

Noch interdisziplinärer und ebenso hochaktuell ist das Konzept der Chiralität, das Physik, Chemie und Biologie sowie Mathematik durchdringt. Es verbindet die Eigenschaften des Universums und seiner Elementarteilchen mit organischer Chemie, Pharmazie, nichtlinearer Optik, Spintronik, molekularen Motoren, Astrobiologie und der Frage nach dem Ursprung des Lebens [3]. Kohlenstoff kann als wichtigstes Element in der belebten Natur aufgrund der vier Valenzelektronen im einfachsten Fall vier Bindungen eingehen: Mit vier verschiedenen Liganden ist das entsprechende Kohlenstoffatom chiral. Ein chirales Molekül existiert in zwei spiegelbildlichen Formen, den Enantiomeren

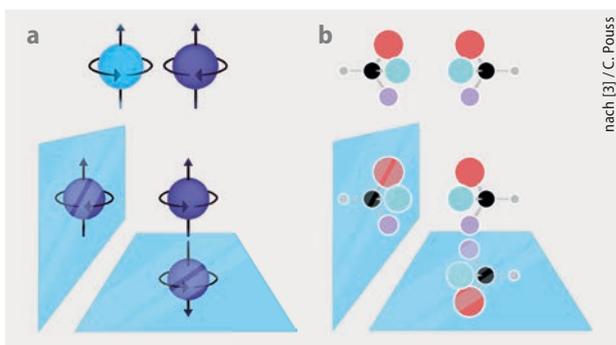


Abb. 1 Bei chiralen Elektronen unterscheiden sich die Drehrichtung des Spins und die Bewegungsrichtung des Impulses zwischen Bild und Spiegelbild (a). Gleiches gilt bei chiralen Molekülen für die Anordnung der Atome (b), hier ein Kohlenstoffatom (schwarz) mit vier unterschiedlichen Liganden (farbig).

mit identischer chemischer Summenformel. Rechts- oder linkshändige Enantiomere besitzen keine Spiegel- und Inversionssymmetrie (**Abb. 1b**).

Neue Fermionen

Weyl-Halbmatale ergeben sich aus der Symmetrie der Kristallstruktur: Sie besitzen eine lineare Bandstruktur, dargestellt als Funktion von Energie über Impuls, verbunden mit einem Entartungs- oder Kreuzungspunkt. Hermann Weyl sagte 1929 Weyl-Fermionen als eine Lösung der Dirac-Gleichung für masselose Teilchen vorher. Die Knotenpunkte liegen als Paare entgegengesetzter Chiralität oder Händigkeit vor, die Projektionen auf der Kristalloberfläche ergeben topologisch geschützte Fermi-Bogen-Oberflächenzustände, die durch winkelaufgelöste Photoemissions-Untersuchungen (ARPES) experimentell beobachtbar sind [4]

(**Abb. 2a–c**). Das Integral der Berry-Krümmung über eine Fläche der Kugel, die den Weyl-Knoten umgibt, ist proportional zur Chern-Zahl: Sie beträgt für Weyl-Halbmatale ± 1 . Es gibt Vorhersagen aus der Hochenergie- und Astrophysik, die sich durch Transport-Experimente in Weyl-Halbmatale realisieren lassen [4]: die chirale Anomalie, welche die Asymmetrie zwischen Materie und Antimaterie erklären könnte, die gemischte Axial-Gravitations-Anomalie oder Axionen als Erklärung der Dunklen Materie. Die chirale Anomalie ist aus der relativistischen Quantenfeldtheorie bekannt: Die Anzahl der Teilchen beider Chiralitäten bleibt in einem topologischen Eichfeld nicht getrennt erhalten. In Weyl-Halbmatale tritt daher ein negativer Magnet-Widerstand, auf, wenn das magnetische Feld parallel zum elektrischen Feld anliegt [4].

Relativistische Gleichungen, die ursprünglich aus der Hochenergiephysik stammen, beschreiben die konventionellen Weyl-Halbmatale. Aber es gibt auch Fermionen im Festkörper ohne entsprechende Teilchen in Astro- oder Hochenergiephysik: sogenannte neue Fermionen. Im Unterschied zur Hochenergiephysik können im Festkörper Symmetrien wie die Poincaré-Symmetrie gebrochen sein, die im Vakuum erhalten sein müssen. Das führt zu neuen Eigenschaften bei den neuen Fermionen. In Systemen kondensierter Materie müssen die relativistischen Gleichungen die Kristallsymmetrie einer der 230 Raumgruppen erfüllen. Während Dirac-Fermionen vierfach und Weyl-Fermionen zweifach entartet sind, zeigen die neuen Fermionen sogar sechs- und achtfache Entartung [5].

Als besondere Beispiele besitzen Kristalle mit einem chiralen Kristallgitter eine gebrochene Inversions- und Spiegelsymmetrie. Die Synthese von Kristallen einer Chiralität (homochirale Kristalle) ist herausfordernd, da beide Enantiomere genau die gleiche Energie aufweisen. Unverstanden

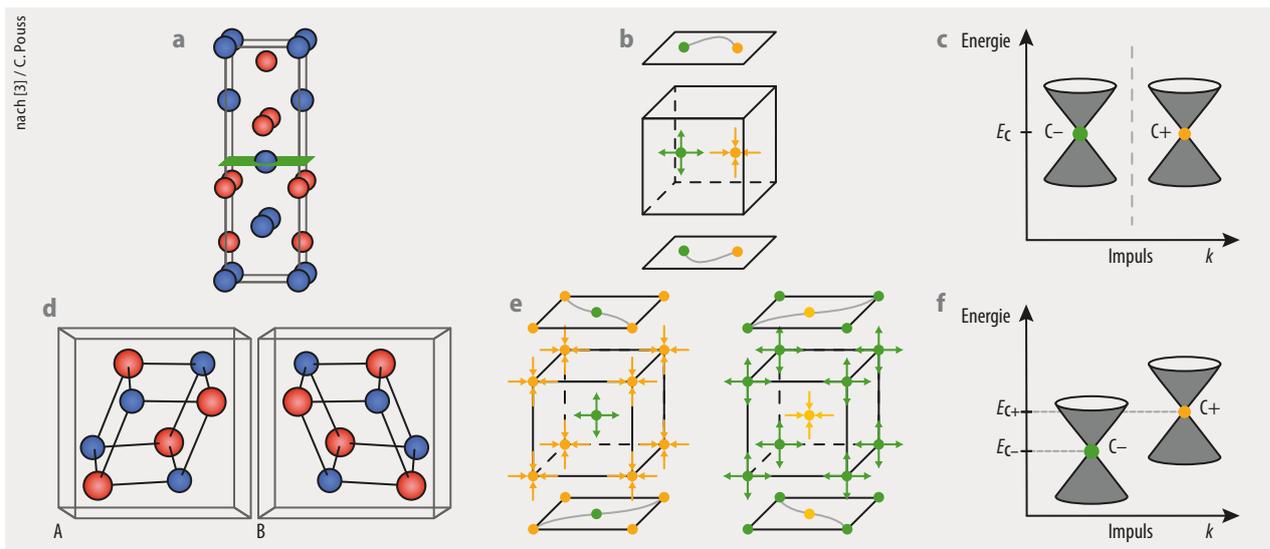


Abb. 2 Für die Weyl-Halbmatale TaAs oder NbP (a, Kristallstruktur, blau: Phosphor, Arsen; rot: Tantal, Niob) verhalten sich die Kreuzungspunkte in der elektronischen Struktur (b) wie Monopol (gelb) und Anti-Monopol (grün) der Berry-Krümmung im Impulsraum. Daraus bilden sich besondere topologische Oberflächenzustände: Die Fermi-Bögen verbinden die Weyl-Kreuzungspunkte, sodass im Energie-Impulsraum Weyl-Kegel mit chiralen Elektronen bei gleicher Energie vorliegen (c). Die chiralen Weyl-Halbmatale mit B20-Kristallstruktur wie PdGa (d, rot: Gallium; blau: Paladium) besitzen zwei Enantiomere A und B, die im Impulsraum chirale Kreuzungspunkte (e) bilden. Auch die Fermi-Bögen an den Kristalloberflächen sind chiral und nehmen die gesamte Oberfläche im Impulsraum ein (hellgrau). Die Weyl-Kegel jedes Enantiomers finden sich bei unterschiedlicher Energie (f).

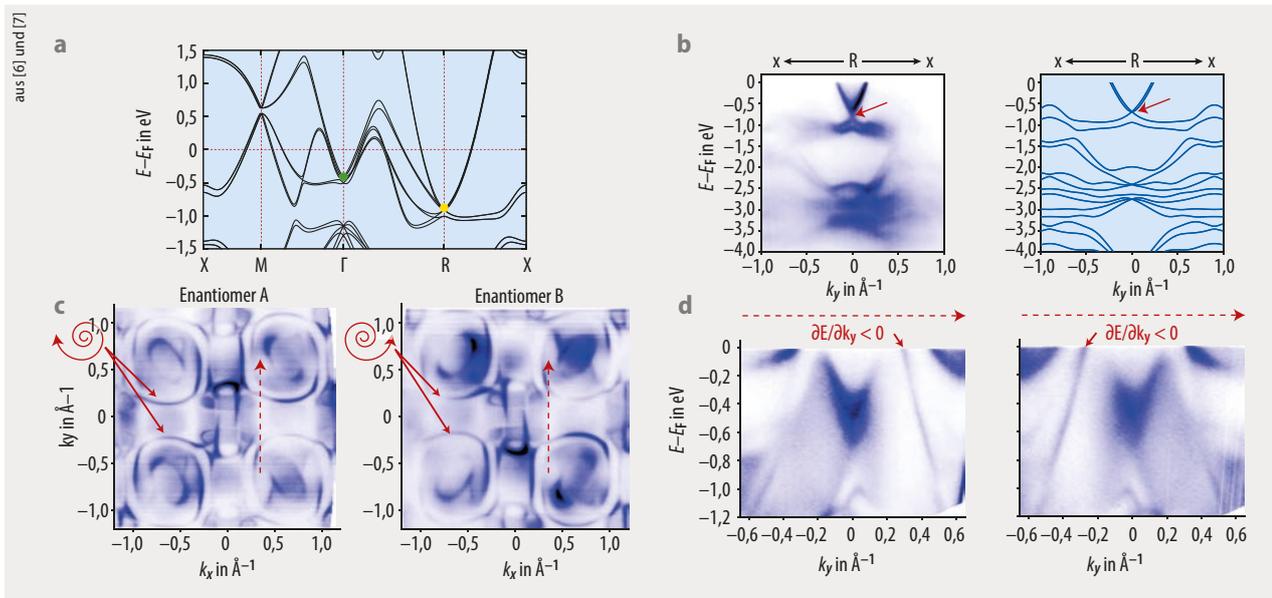


Abb. 3 In der berechneten Bandstruktur von PtAl unterscheiden sich Monopol und Anti-Monopol der Berry-Krümmung für die beiden Enantiomere (a, gelb, grün). Für die elektronische Struktur von AlPt stimmen experimentelle (b, links) und berechnete (rechts) Banddispersion entlang der x-R-x-Achse gut überein, insbesondere der sechsfache Bandübergang (rot). In der elektronischen Oberflächenstruktur der (100)-Oberfläche der beiden Enantiomere A und B von PdGa zeigen sich die Fermi-Flächen und spiegelbildlichen Fermi-Bögen (c). Einige Fermi-Bögen kehren ihre Richtung um (rot). Die Banddispersion beider Enantiomere wechselt entlang der k_y -Richtung das Vorzeichen (d), also entlang einer Komponente der Fermi-Geschwindigkeit.

ist, warum einige Verbindungen wie Natriumchlorat, PdGa und PtGa als homochirale Kristalle vorkommen, während andere Kristalle wie CoSi nur gemischt auftreten. Chirale topologische Fermionen besitzen besondere topologische Eigenschaften [5], etwa einen quantisierten photogalvanischen Effekt, einen chiralen magnetischen Effekt sowie andere neuartige Transport- und optische Effekte, die in achiralen Weyl-Halbmatalen nicht beobachtbar sind.

Die Kreuzungspunkte in der elektronischen Struktur von chiralen topologischen Kristallen, die chirale Fermionen beherbergen, finden sich im Energie-Impulsbild bei unterschiedlichen Energien und weisen wie Weyl-Fermionen entgegengesetzte Chiralität auf (Abb. 2e, f). Im Strukturtyp B20 der Raumgruppe P213 (198) liegen viele Verbindungen mit chiraler Kristallstruktur vor, z. B. CoSi, RhSi, PdGa und PtAl (Abb. 2d). Kandidaten wie PdGa und PtAl wurden für ARPES-Studien ausgewählt, weil ihre Spin-Bahn-Kopplung sehr groß ist und sich beide Enantiomere als homochirale Kristalle von der Verbindung synthetisieren lassen [6, 7]. Mittels Röntgenbeugung und Elektronenrückstreuung gelang es, die Homochiralität zu verifizieren. Berechnungen ergeben identische Bandstrukturen für die beiden Enantiomere von PtAl (Abb. 3a). Nur die Pole der Berry-Krümmung zeigen die unterschiedliche Chiralität in den chiralen Knoten und den zugeordneten chiralen Fermionen. Die Bandstrukturen beider Enantiomere lassen sich mit ARPES nicht unterscheiden, da die Berry-Krümmung nicht sichtbar wird; hier hilft zirkular polarisiertes Licht. Die beiden Bandkreuzungspunkte in den B20-Kristallen liegen wie erwartet bei unterschiedlichen Energien und zeigen sechs- und vierfache Entartung [6] (Abb. 3a). Die mit ARPES gemessene Bandstruktur an einem der beiden Entartungspunkte stimmt gut mit der mittels Dichtefunktionaltheorie

berechneten elektronischen Struktur von PtAl überein [6] (Abb. 3b). Diese neuartigen chiralen Elektronen am Γ -Punkt in der B20-Struktur heißen auch Rarita-Schwinger-Fermionen. Wie die Phase der Wellenfunktion, so unterscheiden sich auch die resultierenden Fermi-Bögen, die sich über den gesamten Energie-Impulsraum ausdehnen (Abb. 2e). Die Fermi-Bögen sind selbst chiral und besitzen in den Enantiomeren unterschiedliche Händigkeit. Untersuchungen der B20-Verbindungen CoSi und RhSi bestätigen die Ergebnisse mit vier- und sechsfach entarteten Knoten und langen chiralen Oberflächenzuständen [8].

Große topologische Ordnung

Die Chern-Zahl kennzeichnet als ganzzahlige topologische Invariante topologische Halbmetalle. Die Zahl und ihr Vorzeichen hängen mit den topologischen Eigenschaften zusammen. Die Landau-Niveaus des Quanten-Hall-Effekts und Weyl-Fermionen haben eine Chern-Zahl von 1, in chiralen Kristallen beträgt die Zahl maximal 4. Um sie zu bestimmen, gilt es, die Fermi-Bögen anhand der ARPES-Ergebnisse zu zählen. In den B20-Strukturen verbinden lange Fermi-Bögen die R- und Γ -Punkte. Die große Spin-Bahn-Kopplung in PdGa ermöglichte es erstmals, die Spinaufspaltung der Oberflächen-Fermi-Bögen aufzulösen und damit experimentell nachzuweisen, dass die Chern-Zahlen, die mit den Multifold-Kreuzungen verbunden sind, 4 betragen. Die topologische Ordnung dieser neuen Fermionen ist also viermal größer als die der konventionellen Weyl-Fermionen [7]. Außerdem lässt sich die Fermi-Geschwindigkeit, also das Vorzeichen der Fermi-Bögen, wie berechnet beobachten. ARPES an homochiralen PdGa-Kristallen mit extrem sauberen Oberflächen zeigt die erwartete Band-Ent-

artung an den hochsymmetrischen Punkten der Brillouin-Zone mit den Kreuzungspunkten bei unterschiedlicher Energie. Die chiralen Fermi-Bögen zeigen über der ganzen Brillouin-Zone die erwartete unterschiedliche Chiralität für die beiden Enantiomere. Ihre Fermi-Flächen winden sich in entgegengesetzter Richtung um die Volumenzustände am R-Punkt (Abb. 3c). Zusätzlich zeigt die Messung, dass die Fermi-Geschwindigkeit der Oberflächenzustände, also die Steigung der Geraden im Energie-Impuls-Diagramm, und die Chern-Zahl für beide Enantiomere unterschiedliche Vorzeichen aufweisen (Abb. 3d).

Weit über die Physik hinaus ist das Interesse gewachsen, das Konzept der Topologie anzuwenden. In jüngster Zeit haben wir den Zusammenhang zwischen Topologie und Katalyse untersucht. Zum einen können topologische Oberflächenzustände heterogene Katalyse-Prozesse wie die Wasserstoffentwicklungsreaktion begünstigen. So ist ihre Effizienz auf PdGa-, PtAl- und PtGa-Oberflächen mit langen topologischen Fermi-Bögen extrem hoch. Die chiralen Kristalle übertreffen die Leistung kommerzieller Platin- und nanostrukturierter Katalysatoren [9]. Erste Experimente zeigen, dass in chiralen topologischen Materialien enantiospezifische Absorption und eventuell die asymmetrische Synthese homochiraler Moleküle möglich ist. Offen ist noch, welche Rolle die Anordnung der Oberflächenatome, die chiralen Oberflächenzustände, die Spin-Impulskopplung, die Defekte oder die Berry-Phase spielen.

Parallel dazu hat der CISS-Effekt (chiralitäts-induzierte Spin-Selektivität [10]) Aufmerksamkeit erregt, der ebenfalls nicht vollständig verstanden ist. Verschiedene Experimente zeigten für chirale Moleküle, dass sich Elektronen darin spinabhängig mit unterschiedlichen Effizienzen bewegen. Eventuell bestimmt nicht nur die geometrische Chiralität der Moleküle die beobachteten Eigenschaften, sondern auch der Spin der Elektronen und eventuell auch die Spin-Bahn-Kopplung.

Ausblick

Die Natur bietet eine Vielfalt unterschiedlicher fundamentaler Symmetriebrechungen verbunden mit dem Konzept der Chiralität – vom Standardmodell in der Teilchenphysik bis zur Homochiralität in Biomolekülen. Obwohl es viele Hypothesen und faszinierende Experimente gibt, sind die meisten grundlegenden Fragen zur chiralen Symmetriebrechung weitgehend unbeantwortet, darunter die Homochiralität lebender Organismen und die Asymmetrie zwischen Materie und Antimaterie. Das Konzept der Topologie zieht immer weitere Kreise, mit ersten Arbeiten zu chemischen Reaktionen bis hin zur Biologie. Schon Pasteur vermutete, dass eine universelle chirale Kraft die räumliche Kristallchiralität lebender Systeme hervorruft, zum Beispiel in DNA-Molekülen. Die chirale Anomalie stellt einen solchen „Einfluss“ auf fundamentaler Quantenebene dar; ob es diese Verbindung zwischen chiraler Quantenzahl und Chiralität im weiteren Sinne gibt, ist nicht bekannt. Wichtige Erkenntnisse könnten die Analogie in Festkörpersystemen mit Weyl-Fermionen oder neuen Fermionen ergeben. Unser Team möchte nachweisen, dass topologische Materialien

es ermöglichen, eine solche Verbindung in zukünftigen Experimenten zu testen. Die Kontrolle von Chiralität im Real- und Impulsraum eignet sich als zukünftige Richtung in der topologischen Materialwissenschaft; die Licht-Materie-Wechselwirkung könnte als weitere wichtige und unerforschte Richtung topologische Bandstrukturen und chirales Licht miteinander verbinden. Frank Wilczek, der das Axion benannt hat, sagte kürzlich: „Wenn wir wissen, dass es einige Materialien gibt, die Axionen beherbergen, dann beherbergt vielleicht auch das Material, das wir Raum nennen, Axionen.“ Andererseits können molekulare Katalyse und selektive Adsorption helikaler Moleküle auf Oberflächenzuständen stattfinden, wo hohe Mobilitäten, Spin-Bahn-Kopplung und Chiralität die Kriterien von Effizienz und Selektivität der molekularen Händigkeit sind.

Der Kern all dieser offenen Probleme ist die Frage, wie sich die Information einer chiralen Quantenzahl auf andere chirale Systeme überträgt. Neben chiraler Struktur, chiralen Elektronen und Spin kommen chirale Phononen, Magnonen und andere Quasiteilchen als Informationsträger infrage. Das Zusammenspiel von Spin-Bahn-Kopplung, CISS-Effekt, Spin-Impuls-Kopplung und einer geometrischen Phase, die der Berry-Phase im realen Raum ähnelt, könnte chirale Moleküle in die Nähe der Topologie bringen. Wir haben die ersten Schritte unternommen, um diesen Zusammenhang zu verstehen. Obwohl unsere Ergebnisse teilweise vorläufig und noch nicht zu verallgemeinern sind, ergeben sich Hinweise auf die Verbindung von Chiralität im Impuls- und Realraum über die geometrische Chiralität hinaus.

Literatur

- [1] K. von Klitzing et al., Nat. Rev. Phys. 2, 397 (2020)
- [2] M. G. Vergniory et al., Science 376, 6595 (2022)
- [3] C. Felser und J. Gooth, arXiv:2205.05809 (2022)
- [4] B. Yan und C. Felser, Ann. Rev. Condensed Matter 8, 337 (2017)
- [5] B. Bradlyn et al., Science 353, aaf5037, (2016)
- [6] N. B. M. Schröter et al., Nat. Phys. 15, 759 (2019)
- [7] N. B. M. Schröter et al., Science 369, 179 (2020)
- [8] D. S. Sanchez et al., Nature 567, 500 (2019)
- [9] Qun Yang et al., Adv. Mat. 32, 1908518 (2020)
- [10] R. Naaman und D. H. Waldeck, J. Phys. Chem. Lett. 3, 2178 (2012)

Die Autorin



Claudia Felser studierte Chemie und Physik an der Universität zu Köln, wo sie 1994 ihre Promotion in chemischer Physik abschloss. Es folgten Stationen am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart und beim CNRS in Nantes. An der Universität Mainz habilitierte sie sich und war von 2003 bis 2014 dort Professorin. Seit 2012 ist sie Honorar-Professorin an der TU Dresden. Seit 2011 ist sie Direktorin am Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden.

Prof. Dr. Claudia Felser, Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe, Nöthnitzer Str. 40, 01187 Dresden