

Diss. ETH No. 13527

# ***Sidebranch Development of Xenon Dendrites***

*A dissertation submitted to the*  
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY  
ZURICH

*for the degree of*  
Doctor of Natural Sciences

*presented by*

EVELYNE KAUFMANN  
Dipl. Phys. ETH  
born on the 17th April 1969  
citizen of Lucern (LU)

*accepted on the recommendation of*

*Prof. Dr. H. R. Ott, examiner*  
*Prof. Dr. D. M. Herlach, co-examiner*  
*Prof. Dr. J. H. Bilgram, co-examiner*

2000

# Abstract

In our experiments, we investigate *in situ* three-dimensional dendrites during their growth into a pure melt of supercooled xenon. The supercooling,  $\Delta T$ , is in the range  $20 \text{ mK} \leq \Delta T \leq 220 \text{ mK}$ . In the studies presented here, we focus on the region where the sidebranches grow. We scale all lengths of a dendrite by the experimentally determined tip radius,  $R_{\text{exp}}$ . If scaled by  $R_{\text{exp}}$ , dendrites grown at different  $\Delta T$  look similar in shape, i.e., there does not exist any criterion to deduce  $\Delta T$  from a normalized shape of a dendrite. It is found that far behind the tip, the width  $d$  of the trunk of a dendrite increases linearly with distance  $z$  to the tip. At  $z = 30 R_{\text{exp}}$ , the width of the trunk is  $d_{30} = (18 \pm 2) R_{\text{exp}}$ . Replacing  $R_{\text{exp}}$  by an effective tip radius,  $R_{\text{eff}}$ , yields a scaling relation between the width of the trunk,  $d$ , and  $R_{\text{eff}}$  at any distance  $z$  from the tip,  $d = (18 \pm 2) R_{\text{eff}}$ . It is found that the linear increase of  $R_{\text{eff}}$  with  $z$  corresponds to a temperature increase along the dendrite. Along the dendrite, the temperature rises due to the latent heat released during growth. This thermometric property of  $d$  is verified experimentally over the whole range of the supercooling,  $\Delta T$ .

With increasing distance from the tip, some of the sidebranches disappear by remelting or sintering together, i.e., dynamical coarsening takes place. The sidebranches which survive coarsening determine the envelope of the dendrite. It is found that the shape of the envelope is constant in time. The opening angle of the envelope is determined to  $\Phi = 25^\circ \pm 3^\circ$  and is independent of  $\Delta T$ . The growth velocity of the sidebranches contributing to the envelope is determined to  $v_{\text{SB}} = (0.5 \pm 0.05) v_{\text{tip}}$ , where  $v_{\text{tip}}$  is the growth velocity of the dendrite tip. It is found that  $v_{\text{SB}}$  is constant in time, i.e., a sidebranch does not accelerate when one of its neighbors melts back.

Close to the tip, the sidebranches are approximately periodic with spacing  $\lambda \approx 3.2 R_{\text{exp}}$ . Due to coarsening, the sidebranch spacing increases with increasing distance to the tip. It is found that this increase occurs in discrete

steps and that with increasing distance to the tip, the smaller spacings are taken over by bigger ones. The results of our investigations of the coarsening process are compatible with the scenario of period doubling. Together with the observed sensitivity of the temporal development of the sidebranch spacing to initial conditions, this indicates that dendritic crystallization might be an example for a natural, chaotic system.

# Kurzfassung

In unseren Experimenten untersuchen wir *in situ* dreidimensionale Dendriten während sie in eine reine Schmelze aus Xenon hineinwachsen. Die Unterkühlung  $\Delta T$  der Schmelze liegt im Bereich  $20 \text{ mK} \leq \Delta T \leq 220 \text{ mK}$ . In den hier vorgestellten Untersuchungen konzentrieren wir uns auf den Bereich des Dendriten, wo die Seitenäste wachsen. Wir skalieren alle Längen eines Dendriten mit dem experimentell bestimmten Spitzenradius  $R_{\text{exp}}$ . Dendriten, die bei verschiedenen  $\Delta T$  gewachsen sind, sind einander ähnlich, d.h. es existiert kein Kriterium, um von der Form eines skalierten Dendriten auf  $\Delta T$  zu schliessen. Unsere Messungen zeigen, dass die Breite  $d$  des Stammes weit hinter der Dendritenspitze mit der Entfernung  $z$  zur Spitze linear zunimmt. Für  $z = 30 R_{\text{exp}}$  beträgt die Breite des Stammes  $d_{30} = (18 \pm 2) R_{\text{exp}}$ . Ersetzt man  $R_{\text{exp}}$  durch einen effektiven Spitzenradius  $R_{\text{eff}}$ , so erhält man eine Skalierungsbeziehung zwischen  $d$  und  $R_{\text{eff}}$  für jede Distanz  $z$  zur Dendritenspitze,  $d = (18 \pm 2) R_{\text{eff}}$ . Es hat sich herausgestellt, dass die lineare Zunahme von  $R_{\text{eff}}$  mit  $z$  einer Temperaturzunahme entlang des Dendriten entspricht. Entlang des Dendriten nimmt die Temperatur zu aufgrund der latenten Wärme, die während des Wachstums freigesetzt wird. Diese thermometrische Eigenschaft von  $d$  konnten wir über den ganzen Bereich der Unterkühlung  $\Delta T$  verifizieren.

Mit zunehmender Distanz zur Dendritenspitze verschwinden einige Seitenäste indem sie zurückschmelzen oder zusammenwachsen, d.h. es findet eine dynamische Vergrößerung statt. Die Seitenäste, die die Vergrößerung überstehen, bestimmen die Einhüllende des Dendriten. Unsere Messungen zeigen, dass die Form der Einhüllenden zeitlich konstant ist. Der Öffnungswinkel  $\Phi$  der Einhüllenden wurde bestimmt zu  $\Phi = 25^\circ \pm 3^\circ$  und ist unabhängig von  $\Delta T$ . Die Wachstumsgeschwindigkeit  $v_{\text{SB}}$  der Seitenäste, die zur Einhüllenden beitragen, wurde bestimmt zu  $v_{\text{SB}} = (0.5 \pm 0.05) v_{\text{tip}}$ , wobei  $v_{\text{tip}}$  die Wachstumsgeschwindigkeit der Dendritenspitze ist.  $v_{\text{SB}}$  ist zeitlich

konstant, d.h. ein Seitenast zeigt keine Wachstumsbeschleunigung, wenn einer seiner Nachbarn zurück schmilzt.

In der Nähe der Dendritenspitze treten die Seitenäste in etwa periodisch auf mit einem Abstand von  $\lambda \approx 3.2 R_{\text{exp}}$ . Wegen der Vergrößerung nimmt der Abstand zwischen den Seitenästen mit zunehmender Distanz zur Dendritenspitze zu. Unsere Messungen zeigen, dass diese Zunahme in diskreten Schritten erfolgt und dass die kleineren Seitenastabstände mit dem Entstehen von grösseren verschwinden. Die Resultate aus unseren Untersuchungen des Vergrößerungsprozesses sind kompatibel mit dem Szenario der Periodenverdoppelung. Zusammen mit der beobachteten Empfindlichkeit der zeitlichen Entwicklung der Seitenastabstände gegenüber den Anfangsbedingungen (sensitivity to initial conditions) deutet dies darauf hin, dass die dendritische Kristallbildung möglicherweise ein Beispiel für ein natürliches, chaotisches System ist.