

Properties of the solid-liquid interface layer of growing ice crystals

a Raman and Rayleigh scattering study

Doctoral Thesis

Author(s):

Halter, Peter Urs

Publication date:

1987

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-000471773>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

Diss. ETH No. 8408

PROPERTIES OF THE SOLID-LIQUID INTERFACE LAYER
OF GROWING ICE CRYSTALS:
A RAMAN AND RAYLEIGH SCATTERING STUDY

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY, ZÜRICH

for the degree of

Doctor of Natural Sciences

presented by

PETER URS HALTER

Dipl. Phys. ETH Zürich

born August 27, 1958

citizen of Frauenfeld TG

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. W. Käuzig

PD Dr. J.H. Bilgram

W. Käuzig



1987

Abstract

The interface layer in front of an ice crystal growing into the melt has been studied simultaneously by Raman and Rayleigh scattering. The Raman spectra of the light scattered from the interface layer material give evidence for intermolecular dynamics which cannot be detected in either bulk phase. The Rayleigh scattering data are in agreement with the data of Böni et al. (Phys. Rev. A 28, 2953(1983)), who have discovered the interface layer. For the first time it has been possible to measure the thickness of the layer as a function of the growth rate. At high growth rates enhanced Rayleigh scattering originating from the interface layer of a thickness of about 3 μm has been observed. With decreasing growth rate the thickness of the layer increases, reaching up to 200 μm at zero growth rate, and at melting the layer stays back in the water. From the linewidth of the Rayleigh scattered light we deduce a diffusion constant $D_i \approx 2 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$. Raman spectra show that the intermolecular structure in the interface layer is essentially water-like. Compared to water additional intensity has been observed in the polarized Rayleigh wing, indicating a new polarized and unshifted line with a linewidth that corresponds to a relaxation time $\tau_0 \approx 4 \cdot 10^{-13} \text{ s}$. It is tentatively assigned to the decay of a symmetric, intermolecular structure occurring in the interface layer. Slight differences found in the O-H stretching band can be interpreted as a small increase of the average number of H-bonds per water molecule in the interface layer as compared to bulk water.

Kurzfassung

Mit Hilfe von Raman- und Rayleigh-Streuung wurde die Phasengrenze Eis-Wasser untersucht. Bei hohen Wachstumsgeschwindigkeiten tritt in einer Zwischenschicht mit einer Dicke von etwa 3 μm starke Rayleighstreuung auf. Mit abnehmender Wachstumsgeschwindigkeit wird die Schicht dicker und erreicht bei Wachstumsstillstand bis zu 200 μm . Beim Schmelzen bleibt die Schicht zurück im Wasser. Von der gemessenen Linienbreite des Rayleigh-Streulichtes schliessen wir auf eine Diffusionskonstante von $D_j \approx 2 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$. Ramanspektren zeigen, dass die molekulare Struktur der Zwischenschicht zur Hauptsache Wasser-artig ist. Zusätzliche Streuintensität wurde im Vergleich zum Wasser im polarisierten Rayleigh-Wing beobachtet und lässt auf eine neue, polarisierte und unverschobene Linie schliessen. Ihre Linienbreite entspricht einer Relaxationszeit von $\tau \approx 4 \cdot 10^{-13} \text{ s}$. Sie wurde vorläufig dem Zerfall einer symmetrischen intermolekularen Struktur der Wassermoleküle in der Zwischenschicht zugeordnet. Kleine Unterschiede im Vergleich zum Wasser wurden in der O-H Streckschwingung gefunden und können damit erklärt werden, dass die durchschnittliche Anzahl der Wasserstoffbücken pro Molekül in der Zwischenschicht leicht höher ist als im Wasser.