

Diss. ETH No. 17074

Dendrite engineering on xenon crystals

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences ETH Zürich

presented by
MARCO FELL
Dipl. Phys. ETH
born 10.07.1976
citizen of Valendas (GR)

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. K. Ensslin, examiner
Prof. Dr. J. Bilgram, co-examiner
Prof. Dr. B. Billia, co-examiner
Prof. Dr. H. Müller-Krumbhaar, co-examiner

2007

Abstract

The experimental work presented here focuses on transient growth, on morphological transitions and on controlling. The free growth of xenon dendrites is perturbed by two different mechanisms, shaking and heating. Compared to the thermal fluctuations, the influence of shaking is considered to be large. Still the oscillation amplitude is not large enough to create a macroscopic convective flow in the growth vessel. Heating is performed up to the melting temperature. Melting of the growing crystal represents the largest applicable perturbation of growth.

Spontaneous and meta-stable multi-tip-configurations are stabilized, a denser sidebranch growth is induced and a periodic tip-splitting is found during perturbation by shaking. Heating on the other hand leads to controlled sidebranching and characteristic transitions of the shape of the tip. A deterministic behavior is found besides the random noise-driven growth. Together the two perturbation mechanisms allow a 'dendrite engineering', i.e. a reproducible controlling of the crystal shape during its growth.

The tip-splitting for dendritic free growth is found not to be a real 'splitting' of the tip, rather the respective growth velocities of the main tip and the fins change. The latter then surpass the main tip and grow into new tips. The occurrence of three- and four-tip-configurations is explained with this mechanism.

For a qualitative overview, the heat flow and the convective flow in the growth vessel is calculated using a finite-element solver for the Navier-Stokes and the diffusion equations. As a result the idea of a single axisymmetric toroidal convection roll across the whole growth vessel has to be dropped. The main effect of convection under earth gravity is the compression of the diffusive temperature field around the downward-growing tip.

The results imply the question whether there are more growth modes than only one marginally stable dendritic growth that compete with each other, and whether and under which conditions the system locks-in to one or another of these growth modes. The existence of a limit cycle is supported by the findings.

A model to explain the symmetry of dendritic crystals, e.g. snow crystals, is developed.

Zusammenfassung

Das freie Wachstum von Xenon-Dendriten aus der Schmelze wird durch zwei verschiedene Mechanismen gestört: Schütteln und Heizen. Verglichen mit den thermischen Fluktuationen kann das Schütteln als gross betrachtet werden. Die Schwingungsamplitude des Schüttelns reicht nicht aus, um eine makroskopische Strömung im Zuchtgefäss anzutreiben. Das Heizen bis über die Schmelztemperatur hinaus stellt in diesem Zusammenhang die grösstmögliche Störung des Kristallwachstums dar.

In Vergleich zum freien ungestörten Dendritenwachstum werden zufällig auftretende, metastabile Viel-Spitzen-Konfigurationen durch das Schütteln stabilisiert, ein dichteres Seitenastwachstum wird initiiert, und es treten Phasen mit periodischen Spitzenteilungen auf. Das Heizen führt zu gezielt ausgelöster Seitenastbildung und charakteristischen Veränderungen der Spitzenformen. Neben dem durch thermisches Rauschen beeinflussten Wachstum tritt auch ein deterministisches Wachstumsverhalten auf. Die Kombination dieser beiden Techniken erlaubt ein „Dendriten Engineering“, also eine gezielte Beeinflussung der Kristallform während des Wachstums.

Die Spitzenteilungen im freien dendritischen Wachstum sind nicht eigentliche „Aufspaltungen“ der Spitze. Es ist viel eher so, dass das Verhältnis der Wachstumsgeschwindigkeiten von Spitze und Rippen eines Dendriten sich ändern, wobei die Rippen schliesslich schneller wachsen als die Hauptspitze. Dies führt zum Entstehen von drei oder vier neuen Spitzen.

Eine Finite-Elemente-Berechnung der Navier-Stokes-Gleichungen gewährt einen qualitativen Überblick über den Wärmefluss und die Konvektionsströmung im Zuchtgefäss. Als Konsequenz aus dieser Simulation muss die Vorstellung aufgegeben werden, dass innerhalb des Gefässes eine grosse, achsensymmetrische Konvektionsrolle (angelehnt an die Form eines Torus) auftritt. Der wichtigste Einfluss der Konvektion unter natürlicher Gravitation ist die Kompression der Isothermen des rein diffusiven Temperaturfeldes um den nach unten wachsenden Kristall.

Die experimentellen Resultate führen zur Frage, ob neben dem knapp stabilen Wachstumsmodus für die Dendriten weitere konkurrierende Modi existieren, ob und allenfalls unter welchen Bedingungen das System zwischen diesen Modi wechseln kann, und welche es bevorzugt annimmt. Die Existenz eines Limitcycle wird durch die Ergebnisse gestützt.

Die Symmetrie dendritischer Kristalle wie beispielsweise Schneeflocken wird in einem Modell zu erklären versucht.