



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) DE 697 37 221 T2 2007.10.25

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 0 813 060 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: 697 37 221.9

(96) Europäisches Aktenzeichen: 97 109 581.5

(96) Europäischer Anmeldetag: 12.06.1997

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: 17.12.1997

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: 10.01.2007

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: 25.10.2007

(51) Int Cl.⁸: G01N 29/02 (2006.01)

G01N 29/22 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
19675 P 13.06.1996 US

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE, GB

(73) Patentinhaber:
Leybold Inficon, Inc., East Syracuse, N.Y., US

(72) Erfinder:
Wajid, Abdul, East Syracuse, US; Hurd, Clarence,
Baldwinsville, US; Hetzel, Melvin C., Syracuse, US

(74) Vertreter:
Leineweber, J., Dipl.-Phys., Pat.-Anw., 50859 Köln

(54) Bezeichnung: Akustischer Sensor mit Resonatorzelle zur kontinuierlichen Überwachung von Gasen

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelebt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung**Hintergrund der Erfindung**

[0001] Diese Erfindung betrifft eine schnelle, hochempfindliche Akustikzelle und, insbesondere, eine Akustikzelle, die für die kontinuierliche Durchflussmessung der MOCVD-Vorläufergase geeignet ist.

[0002] Es besteht ein wachsendes Interesse an Verfahren der metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOCVD), insbesondere zum Bewirken des Wachstums komplexer dünnsschichtiger Strukturen für, beispielsweise, InGaAsP-Bauelemente für optoelektronische Anwendungen. Beim Erzeugen dieser Bauelemente findet das Dünnschichtwachstum in einem kaltwandigen Reaktor statt, in den exakte Mengen der Reaktanten gezielt eingeleitet werden. Die Qualität und Reproduzierbarkeit der Bauelemente ist kritisch davon abhängig, dass die Vorläufer-Reaktanten in exakten Mengen in den Reaktor eingeleitet werden.

[0003] Die Vorläufer-Reaktanten werden üblicherweise durch ein Trägergas, beispielsweise Wasserstoff, von einer Feststoffquelle aus, beispielsweise Trimethylindium (TMI), oder von einer Flüssigstoffquelle aus, beispielsweise Trimethylgallium (TMG), in den Reaktor getragen. Die Konzentration des Vorläufer-Reaktants wird üblicherweise aus der Mengen-Flussrate, dem Partialdruck der Quelle und dem Betriebsdruck abgeschätzt. Dabei wird üblicherweise angenommen, dass der Dampfdruck der Quelle konstant ist und der Molenbruch (das partielle Molvolumen) des Vorläufer-Reaktants im Trägergas gleich bleibt. Diese Annahmen sind nicht immer gültig, insbesondere nicht bei niedrigem Dampfdruck der Quelle, wie er bei Feststoffquellen vorherrscht, oder wenn die Quelle schon ausgiebig genutzt worden ist. Obwohl es viele Wege gibt, die Qualität der bereits ausgebildeten Dünnschicht zu prüfen, ist es aus Sicht der Qualitätssicherung und Verfahrensregelung vorzuziehen, die Konsistenz der Vorläufer-Reaktanten zu überwachen und zu regeln bevor das Schichtwachstum beginnt.

[0004] Die Überwachung der Konsistenz eines Vorläufer-Reaktanten erfolgt durch Messung des Anteils des Vorläufer-Reaktants in dem Trägergas. Diese Analyse binärer Gase erfolgt üblicherweise mittels optischer, chemischer oder akustischer Methoden. Beispiele für akustischen Methoden sind die Flugzeit-Methode und die Hohlraumresonanz-Methode. Bei einem Flugzeit-Messgerät werden abgestimmte Ultraschall-Schallköpfe zum Abstrahlen und Einfangen von kurzen (5 μ s) Schallimpulsen eingesetzt. Gemessen wird die Schallgeschwindigkeit, die unmittelbar mit der Zusammensetzung des binären Gases zusammenhängt. Die Betriebsfrequenz liegt üblicherweise bei 100 kHz oder höher. Übliche Probleme bei Flugzeit-Messgeräten sind, beispielsweise, ungenaue Pulsform, Echobildung, parasitäre Schallleitung, Signaldämpfung und Pulsform-Verzerrung. Durch diese Probleme ist der Einsatz von Flugzeit-Messgeräten für wasserstoffähnliche Gase bei niedrigen Drücken nur begrenzt möglich.

[0005] Hohlraumresonanz-Messgeräte bestimmen die Resonanzfrequenz der binären Gasmischung. Die Resonanzfrequenz hängt unmittelbar mit der Zusammensetzung des binären Gases zusammen. Probleme bei Hohlraumresonanz-Messgeräten entstehen aus verschiedenen Gründen. Erstens: es werden Breitband-Schallkopf eingesetzt, um den ganzen Bereich der Betriebsfrequenzen abzudecken. Das Hohlraumresonanz-Messgerät muss daher für ein bestimmtes Gas konstruiert werden, wodurch sein Einsatzbereich begrenzt wird. Zweitens: beim Betrieb mit Frequenzen von zehn bis mehrere hundert Kilohertz entstehen viele miteinander konkurrierende Resonanzmoden, beispielsweise, radiale, axiale und scheitelwinklige Resonanzen innerhalb des Sensors. Ferner koppeln sich diese Resonanzen an Obertonresonanzen einzelner Bauteile, beispielsweise, von Abschlussmembranen. Es ist sehr schwer zu erkennen, welche der Resonanzen allein auf das Prüfgas zurückzuführen sind und dann, diese Resonanz bei allen Veränderungen der Zusammensetzung, der Temperatur und des Drucks zu verfolgen. Drittens: es entstehen Probleme durch die vom Gasmedium selbst verursachte thermo-elastische Dämpfung, in anderen Worten, durch den intrinsischen Energieverlust der Schallwellen. In wasserstoffähnlichen Gasen steigt diese Dämpfung mit dem Quadrat der Betriebsfrequenz, wodurch die Hohlraumresonanz-Messtechnik im Ultraschallbereich uninteressant wird.

[0006] Auf dem oben Erwähnten aufbauend, sind die wesentlichen Auslegungsgesichtspunkte kleines Volumen und niedrige Frequenz. Das Sensorvolumen beeinflusst unmittelbar die erforderliche Abtastzeit bei einer bestimmten Gasflussrate. Wenn eine schnelle Reaktion des Sensors erforderlich ist, muss das Volumen so klein wie möglich sein. Jedoch hat die Verkleinerung des Volumens einen wesentlichen Nachteil beim Einsatz von Wasserstoffgas. Da Wasserstoff ein sehr leichtes Gas ist, ist bei einem Betriebsdruck unter 133 mbar (100 Torr, also 10 % des atmosphärischen Drucks) im jeweils umschlossenen Raum nur eine geringe Menge fließenden Mediums vorhanden, in dem stehende Wellen entstehen können. Ein parasitäres durch das Metallgehäuse wanderndes Signal kann zu dem durch das Gas wandernde Signal vergleichbar sein oder es sogar

übertönen, wodurch die Phasenverschiebung der Frequenz verzerrt würde. Der Qualitätsfaktor (Q) des Resonators verschlechtert sich merklich wodurch das Aufrechterhalten einer stabilen Resonanz erschwert wird. Den Qualitätsfaktor (Q) auf höchstmöglichen Niveau zu halten ist wichtig, um zu vermeiden, dass die Stabilität und damit die Messempfindlichkeit des Binärgas-Analysators abnimmt. Ein niedriges Volumen, kleiner als 20 ml, und ein hohes Q, größer als 20, sind daher anzustreben.

[0007] Die Betriebsfrequenz ist zum Teil abhängig von der Länge der Sensorzelle, und diese Länge wiederum vom Volumen und dem angestrebten Q. Bei einem Abschlussdurchmesser von einem Zoll (passend für die vom Rechtsnachfolger entwickelte 1-Zoll Abschlussmembran aus INCONEL) hat die zylindrische Sensorzelle eine Länge von 35,5 cm und ein Volumen von 18 ml. Beim Einsatz mit Wasserstoffgas (Schallgeschwindigkeit gleich 1260 m/s) liegt die niedrigsten Betriebsfrequenz bei ungefähr 17,735 kHz. Unter Beibehaltung des Volumens könnte man mit einem kleineren Durchmesser aber größerer Länge arbeiten, wodurch eine geringere Resonanzfrequenz erreichbar wäre. Da jedoch die Übertragung eines akustischen Signals durch eine Abschlussmembran mit der vierten Potenz des Durchmessers abfällt, wird jede Verkleinerung der Abschlussmembran vermieden.

[0008] Mit einem 17 kHz Resonator sind eine ganze Reihe von Problemen verbunden. Beispielsweise haben die meisten Mikrofone im Bereich bis 7 kHz eine relativ flache Ansprechcharakteristik. Oberhalb 10 kHz fällt die Mikrofonempfindlichkeit aber stark ab, außer bei den Eigenresonanzfrequenzen des Mikrofons. Die vom Rechtsnachfolger entwickelten INCONEL Abschlussmembranen haben ihren niedrigsten Schwingungsmodus im Bereich zwischen 5,5 und 7 Hz. Vorzugsweise erfolgt der Betrieb unterhalb dieser Frequenzen, damit Komplikationen durch interne Abschlussmembranresonanzen vermieden werden. Des weiteren steigt die interne Reibung im Wasserstoffgas mit dem Quadrat der Betriebsfrequenz.

[0009] Eine Akustikzelle mit den in der Einleitung zum Anspruch 1 genannten Eigenschaften ist in den Patentschriften GB 22 03 247 A oder US 5 524 477 A offenbart. Die Antriebs- und Empfangsmittel dieser dem Stand der Technik entsprechenden Akustikzelle sind mittels eines beispielsweise aus Nylon gefertigten Kragens direkt am jeweiligen Ende des Gehäuses der Zelle angebracht, was zu einer akustischen Dämpfung führt.

Ziele und zusammenfassende Beschreibung der vorliegenden Erfindung

[0010] Es ist somit ein Ziel der vorliegenden Erfindung, einen Akustiksensor vorzustellen, mit dem die Nachteile und Einschränkungen des Standes der Technik überwunden werden.

[0011] Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung ist, einen Akustiksensor vorzustellen, der ein niedriges Volumen, ein hohes Q und eine Betriebsfrequenz unter 5 kHz aufweist.

[0012] Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung ist, einen Akustiksensor vorzustellen, mit dem es möglich ist, ohne vorherige Firmenkalibrierung, die Zusammensetzung eines binären Gases zu bestimmen.

[0013] Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung ist, einen Akustiksensor vorzustellen, bei dem die parasitäre Signalleitung reduziert ist.

[0014] Ein weiteres Ziel der vorliegenden Erfindung ist, einen Akustiksensor vorzustellen, der bei sehr niedrigem Druck einen hohen Signalstörabstand aufweist.

[0015] Kurz zusammengefasst, enthält eine Akustikzelle eine Anzahl akustischer Hohlräume, die fließtechnisch miteinander verbunden sind. Zumindest zwei der akustischen Hohlräume haben unterschiedliche Längen und Querschnitte. Die Endabschnitte der akustischen Zelle sind gleichmäßig zylinder- oder kegelförmig ausgebildet. Ein Schallsendekopf am einen Ende der Akustikzelle und ein Schallempfangskopf am anderen Ende sind schalltechnisch von der Akustikzelle isoliert. Der Schallsendekopf enthält ein Schallerzeugerkapselgehäuse sowie ein in das Schallerzeugerkapselgehäuse eingepasstes Metallgehäuse, das das Schallsendemikrofon enthält. Innen und außen am Kapselgehäuse angebrachte schallisolierende O-Ringe führen zu einer wesentlichen Verringerung der Leitung parasitärer Signale.

[0016] Ein Paar, vorzugsweise metallischer Abschlussmembranen übertragen akustische Signale zu und von den Schallsende- und -empfangsköpfen, ohne die Phasenverschiebung zwischen den Frequenzen der Akustiksignale wesentlich zu verändern. Die Akustikzelle arbeitet als ein akustischer Resonator und wird bei einer Frequenz betrieben, die niedriger liegt als mögliche Eigenresonanzfrequenzen der Abschlussmembranen oder der Schallsende- und -empfangsköpfe. Wird ein binäres Gas durch die Zelle gepumpt, erkennt ein Prozessor

eine Resonanzfrequenz des Gases innerhalb der Zelle, um daraus dessen Zusammensetzung zu bestimmen.

[0017] Entsprechend einer Ausführung der Erfindung, besteht eine Akustikzelle aus einem Zellengehäuse, wobei besagtes Zellengehäuse eine Mehrzahl akustischer Hohlräume enthält sowie Strömungsvorrichtungen, die fließtechnisch an dem besagten Zellengehäuse angeschlossen sind, durch die ein Gas zum Durchströmen des Zellengehäuses gebracht wird. Des weiteren enthält das Zellengehäuse ein Schallerzeugungsmittel an seinem einen Ende, von dem aus ein akustisches Signal durch das das Zellengehäuse durchströmende Gas gesandt wird sowie einen Schallempfangsmittel am anderen Ende des besagten Zellengehäuses zum Empfangen des besagten akustischen Signals.

[0018] Entsprechend einer Ausführung der Erfindung, besteht eine Akustikzelle aus einem Zellengehäuse, wobei besagtes Zellengehäuse eine Mehrzahl akustischer Hohlräume enthält sowie Strömungsvorrichtungen, die fließtechnisch an dem besagten Zellengehäuse angeschlossen sind, durch die ein Gas zum Durchströmen des Zellengehäuses gebracht wird. Des weiteren enthält das Zellengehäuse einen Schallsendekopf an seinem einen Ende, der ein empfangenes elektrisches in ein akustisches Signal wandelt und dieses akustische Signal durch das das Zellengehäuse durchströmende Gas sendet sowie einen Schallempfangskopf am anderen Ende des besagten Zellengehäuses, der das besagte akustische Signal empfängt, es in ein elektrisches Signal umwandelt, dieses an einen Prozessor weiterleitet, der dieses elektrische Signal empfängt und aus dem empfangenen elektrischen Signal ein Antriebssignal für den Schallsendekopf erzeugt, wobei die Frequenz des vom Schallsendekopf ausgesandten Akustiksignals verändert werden kann, und dieser Prozessor des weiteren mit Mitteln zur Feststellung einer dem Gas entsprechenden Resonanzfrequenz ausgerüstet ist und des weiteren mit Mitteln, mittels derer die Zusammensetzung des Gases bestimmt werden kann.

[0019] Entsprechend einer Ausführung der Erfindung, umfasst eine Methode zur Bestimmung der Zusammensetzung eines binären Gases diverse Schritte, mit denen, im Einzelnen, eine Mehrzahl akustischer Höhlräume umfassende Akustikzelle bereitgestellt und diese Akustikzelle von einem Gas durchströmt wird; ein elektrisches Antriebssignal von einem digitalen Signalregler empfangen und dieses elektrische Antriebssignal in ein akustisches Antriebssignal verwandelt wird; dieses akustische Antriebssignal durch das die Akustikzelle durchströmende Gas gesendet und, nach dem Schritt des Sendens des akustischen Antriebssignals durch besagtes Gas, das empfangene akustische Signal in ein elektrisches Signal umgewandelt und in dieser Form an den digitalen Signalregler weitergeleitet wird; das besagte elektrische Empfangssignal in dem digitalen Signalregler so verarbeiten wird, dass eine mit dem besagten Gas verbundene Resonanzfrequenz festgestellt, und auf der Grundlage dieser Resonanzfrequenz die Zusammensetzung des Gases bestimmt werden kann.

[0020] Die obigen und weitere Ziele, Eigenschaften und Vorteile der vorliegende Erfindung werden aus der folgenden, im Zusammenhang mit den begleitenden Abbildungen zu lesenden Beschreibung offenbar, wobei in den Zeichnungen gleiche Elemente stets mit der gleichen Ziffer ausgewiesen sind.

Kurzbeschreibung der Abbildungen

[0021] [Abb. 1](#) zeigt die monotone Relation zwischen Molenbruch und Schallgeschwindigkeit in einem Gasmedium.

[0022] [Abb. 2](#) zeigt typische Phasen- und Amplitudenveränderungen in der Nähe einer Resonanz.

[0023] [Abb. 3](#) zeigt den Verlauf von $y(f) = 1/x_0^2$ und von x_0 in der Nähe einer Resonanz.

[0024] [Abb. 4](#) zeigt den Verlauf von $-1/d\varphi$ und φ in der Nähe einer Resonanz.

[0025] [Abb. 5](#) zeigt den Querschnitt durch eine Akustikzelle gemäß einer Ausführung der vorliegenden Erfindung.

[0026] [Abb. 6A](#) zeigt das Metallgehäuse für ein Schallsendemikrofon und ein Kompensationsmikrofon gemäß einer Ausführung der vorliegenden Erfindung.

[0027] [Abb. 6B](#) zeigt eine Schallsendemikrofonkapsel gemäß einer Ausführung der vorliegenden Erfindung.

[0028] [Abb. 7](#) zeigt eine Schallempfangsmikrofonkapsel gemäß einer Ausführung der vorliegenden Erfindung.

[0029] [Abb. 8](#) zeigt einen Akustiksensor gemäß einer Ausführung der vorliegenden Erfindung, der die in [Abb. 5](#) dargestellte Akustikzelle enthält.

[0030] [Abb. 9A](#) zeigt ein elektrostatisches Schallsendemikrofon, das in einer Ausführung der vorliegenden Erfindung verwendet wird.

[0031] [Abb. 9B](#) zeigt ein kapazitives Schallsendemikrofon, das in einer Ausführung der vorliegenden Erfindung verwendet wird.

[0032] [Abb. 10](#) ist eine Darstellung der in Wasserstoff bei 45 °C gemessenen Streuwerte der Resonanzfrequenzen.

[0033] [Abb. 11](#) zeigt die Funktion des in Wasserstoff entstehenden Molenbruchs der Gase Ar, N₂, CO₂ und R134a in Abhängigkeit von der Flussrate der Gase.

[0034] [Abb. 12](#) zeigt die Funktion des in Wasserstoff entstehenden Molenbruchs von N₂ in Abhängigkeit von der N₂-Flussrate.

[0035] [Abb. 13](#) zeigt die Funktion des Molenbruchs von TMI in Abhängigkeit einer gemäß der vorliegenden Erfindung durchgeführten schrittweisen Änderung der Flussrate im Bubbler („Durchsprudler“).

[0036] [Abb. 14](#) zeigt die Funktion des im Wasserstoff entstehenden Molenbruchs des Gases R134a in Abhängigkeit von einer gemäß der vorliegenden Erfindung durchgeführten schrittweisen Änderung der Flussrate des Gases R134a.

Detaillierte Beschreibung der bevorzugten Ausführung der vorliegenden Erfindung

[0037] Eine Analyse der Zusammensetzung eines Gases kann durchgeführt werden, indem die Schallgeschwindigkeit in dem gasförmigen Medium bestimmt wird. Bei einer binären Gasmischung ist die Schallgeschwindigkeit c gegeben durch

$$c^2 = \bar{\gamma} \frac{RT}{\bar{M}} \quad (1)$$

mit $\bar{\gamma}$, dem Verhältnis der mittleren spezifischen Wärmen des Gasgemisches, \bar{M} , dem numerischen mittleren Molekulargewicht des Gasgemisches, R, der universellen Gaskonstanten (in metrischen Einheiten gleich 8311,7) und T, der Temperatur in Grad Kelvin.

[0038] Wenn x der Molenbruch des Vorläufergases im Trägergas ist, folgt

$$\frac{1}{\bar{\gamma}-1} = \frac{x}{\gamma_1-1} + \frac{1-x}{\gamma_2-1} \quad (2)$$

oder, in umgeschriebener Form,

$$\bar{\gamma} = 1 + \frac{(\gamma_1-1)(\gamma_2-1)}{x(\gamma_2-1)+(1-x)(\gamma_1-1)} \quad (3)$$

und

$$\bar{M} = xM_1 + (1-x)M_2 \quad (4)$$

wobei sich der Index 1 und 2 jeweils auf das Vorläufergas, bzw. das Trägergas bezieht. Die Werte des Molenbruchs des jeweiligen binären Gases erhält man aus Gleichungen (1) bis (4), wie im Folgenden dargestellt. Zur Vereinfachung gelten folgende Festlegungen:

$$m = \frac{M_1}{M_2}, \quad (5)$$

$$g = \frac{\gamma_1}{\gamma_2}, \text{ und} \quad (6)$$

$$h = \frac{1}{\gamma_2}. \quad (7)$$

[0039] Durch Einsetzen der Werte (5) bis (7) in die Gleichungen (1) bis (4), erhalten wir

$$\bar{M} = M_2((m-1)x + 1), \text{ und} \quad (8)$$

$$\bar{\gamma} = 1 + \gamma_2 \frac{(g-h)(1-h)}{x(1-g)+(g-h)}. \quad (9)$$

[0040] Die Gleichungen (8) und (9) führen in Verbindung mit Gleichung (1) zu

$$c^2 = c_2^2 \frac{h + \frac{(g-h)(1-h)}{x(1-g)(g-h)}}{1 + (m-1)x} \quad (10)$$

worin c_2 die Schallgeschwindigkeit im reinen Trägergas ist, also

$$c_2 = \sqrt{\frac{\gamma_2 RT}{M_2}}. \quad (11)$$

[0041] Da die gemessenen Resonanzfrequenzen in einem akustischen Resonator direkt proportional zur Schallgeschwindigkeit sind, können wir das folgende Verhältnis definieren

$$\lambda = \left(\frac{c}{c_2} \right)^2 = \left(\frac{f}{f_2} \right)^2 \quad (12)$$

worin f und f_2 die Resonanzfrequenzen der Gasmischung, bzw. des reinen Trägergases sind. Durch Vereinigung der Gleichungen (10) bis (12) erhalten wir

$$\lambda(1 + (m-1)x) = h + \frac{(g-h)(1-h)}{x(1-g)+(g-h)}. \quad (13)$$

[0042] Ein Vereinfachung der Gleichung (13) führt zu folgender quadratischen Gleichung

$$Ax^2 + Bx + C = 0 \quad (14)$$

worin

$$A = \lambda(m-1)(1-g), \quad (15)$$

$$B = \lambda m(g-h) + \lambda(1-2g+h) - h(1-g), \text{ and} \quad (16)$$

$$C = (\lambda-1)(g-h). \quad (17)$$

[0043] Die Lösungen der Gleichung (14) haben die Form

$$x_{1,2} = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A}. \quad (18)$$

[0044] Akzeptable Lösungen müssen innerhalb realistischer Grenzen bleiben, beispielsweise $0 \leq x_{1,2} \leq 1$. Bei

der überwiegenden Zahl binäre Gassysteme gibt es nur eine Lösung für x , was darauf hin weist, dass eine monotonen Relation zwischen dem Molenbruch des Trägergases und der Schallgeschwindigkeit besteht. [Abb. 1](#) zeigt diese Abhängigkeit für TMI in dem Trägergas Wasserstoff.

[0045] Bei dieser Erfindung sind die in Gleichung (13) enthaltenen Variablen m , g und i (h ?!) für das zu analysierende binäre Gas bekannt. Sobald λ bestimmt worden ist, kann $x_{1,2}$ berechnet werden. Da f_2 bekannt ist, können wir aus Gleichung (12) den Wert für x errechnen sobald wir f bestimmt haben. Die folgende Diskussion zur akustischen Resonanz ist hilfreich für das Verständnis der vorliegende Erfindung.

[0046] Ein Gasresonator kann als ein durch eine harmonische Schwingung angeregter gedämpfter Resonator betrachtet werden, also

$$m \frac{d^2x}{dt^2} + 2\lambda \frac{dx}{dt} + kx = A_0 \cos(2\pi ft) \quad (19)$$

mit m , der Masse des Resonators, λ , dem Dämpfungskoeffizienten (logarithmisches Dekrement), k , der Federkonstanten, A_0 , der Amplitude der Anregungskraft, f , der Frequenz der Anregungskraft, und x , die unmittelbare Auslenkung der Masse zum Zeitpunkt t . Die Lösung nach x hat die Form $x = x_0 \cos(2\pi ft + \varphi)$ mit x_0 , der Schwingungsamplitude bei der Anregungsfrequenz, und φ , der Phasenverzögerung zwischen der Kraft und der resultierenden Auslenkung x der Masse. Es ist bekannt, dass x_0 wie folgt dargestellt werden kann

$$x_0 = \frac{(A_0 / 2\pi m)}{\sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 + (ff_0 / Q)^2}} \quad (20)$$

mit f_0 , der wie folgt zu berechnenden Resonanzfrequenz

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}} \quad (21)$$

und Q , dem wie folgt zu berechnenden Qualitätsfaktor des Resonators

$$Q = \pi f_0 m / \lambda. \quad (22)$$

[0047] Die Phasenverzögerung ergibt sich aus

$$\tan \varphi = \frac{-ff_0}{Q(f_0^2 - f^2)}. \quad (23)$$

[0048] Somit ist das betrachtete System durch die Schwingungsamplitude x_0 und die Phasenverzögerung φ vollständig beschrieben. Die Schwingungsamplitude x_0 ist am größten, wenn f gleich f_0 . Eine Analyse der Gleichung (23) zeigt, dass

- $\varphi = 0$ für $f < f_0$,
- $\varphi = -\pi/2$ für $f = f_0$, and
- $\varphi = -\pi$ für $f > f_0$.

[0049] Da Q^{-1} das Verhältnis der durch Dämpfung verursachten Energieverluste zu der im Resonator insgesamt gespeicherten Energie darstellt, bestimmen f_0 und Q die Mechanik des Resonatorsystems in hinreichender Weise.

[0050] [Abb. 2](#) zeigt typische Änderungen der Phasen und Amplituden in der Nähe einer Resonanz.

[0051] Die Bestimmung der Resonanzfrequenz f_0 aus Amplitudenmessungen erfolgt mittels der folgenden aus Gleichung (20) entwickelten Gleichung

$$y(f) = \frac{1}{x_0^2} = \left(\frac{2\pi m}{A_0} \right)^2 \left((f_0^2 - f^2)^2 + (ff_0 / Q)^2 \right). \quad (24)$$

[0052] Die Division von $y(f)$ durch $y(f_0)$ ergibt

$$\frac{y(f)}{y(f_0)} = \frac{(f_0^2 - f^2)^2 + (ff_0/Q)^2}{(f_0^2/Q)^2}. \quad (25)$$

[0053] In der Nähe der Resonanz gilt $f^2 - f^2 \approx 2f_0(f_0 - f)$. Da f_0 bis hierher noch nicht bestimmt ist, beziehen wir die Frequenzen auf eine in der Nähe der Resonanzfrequenz f_0 liegende Referenzfrequenz f_R , wobei

$$f_0 - f = (f_R - f) + (f_0 - f_R) = \Delta + \Delta_0 \quad (26)$$

[0054] Wenn wir jetzt $y(f)/y(f_0)$ unter Bezug auf die inkrementelle Frequenz Δ umformen, erhalten wir

$$\frac{y(f)}{y(f_0)} = 1 + 4Q^2(f_0 - f)^2/f_0^2 = (2Q/f_0)^2(\Delta + \Delta_0)^2 + 1 \quad (27)$$

und, in die quadratische Form umgeschrieben,

$$Y(\Delta) = b_0 + b_1\Delta + b_2\Delta^2 \quad (28)$$

worin

$$b_0 = (1 + (2Q/f_0)^2\Delta_0^2)Y(f_0), \quad (29)$$

$$b_1 = 2\Delta_0(2Q/f_0)^2Y(f_0), \text{ and} \quad (30)$$

$$b_2 = (2Q/f_0)^2Y(f_0). \quad (31)$$

[0055] Im Hinblick auf die zur Bestimmung der bestangepassten Werte für b_0 , b_1 , and b_2 erforderliche parabolische Regression für $y(\Delta)$, werden um f_R herum mehrere Messungen vorgenommen, was weiter unten näher erklärt wird. Die Gleichungen (29) bis (31) ergeben dann

$$\Delta_0 = \frac{0,5b_1}{b_2}, \quad (32)$$

$$f_0 = f_R + \Delta_0, \quad (33)$$

$$Q = \frac{(f_0/2)}{\sqrt{(b_0/b_2) - \Delta_0^2}}, \quad (34)$$

$$y(f_0) = b_0 - b_2\Delta_0^2, \text{ and} \quad (35)$$

$$x_0(f_0) = \frac{1}{\sqrt{y(f_0)}}. \quad (36)$$

Abb. 3 zeigt den Verlauf von $y(f) = 1/x_0^2$ und von x_0 in der Nähe einer Resonanz.

[0056] Um die Resonanzfrequenz f_0 aus einer Phasenmessung bestimmen zu können, schreiben wir Gleichung (23) folgendermaßen um

$$(f_0^2 - f^2)\tan \varphi = -ff_0/Q \text{ and} \quad (37)$$

$$\frac{\partial \varphi}{\partial f} = \frac{-(f_0/Q)(f_0^2 + f^2)}{(f_0^2 - f^2)^2 + (ff_0/Q)^2}. \quad (38)$$

[0057] Wie oben erwähnt gilt in der Nähe der Resonanz $f^2 - f^2 \approx 2f_0(f_0 - f)$. Deshalb gilt

$$\frac{\partial \varphi}{\partial f} = \frac{-2f_0^2(f_0/Q)}{4f_0^2(f_0-f)^2 + (f_0/Q)^2}. \quad (39)$$

[0058] Wiederum, da f_0 bis hierher noch nicht bestimmt ist, beziehen wir die Frequenzen auf eine in der Nähe der Resonanzfrequenz f_0 liegende Referenzfrequenz f_R , wobei

$$f_0 - f = (f_R - f) + (f_0 - f_R) = \Delta + \Delta_0. \quad (40)$$

[0059] Somit gilt

$$\frac{\partial \varphi}{\partial f} = -\frac{\partial \varphi}{\partial \Delta} \quad (41)$$

and

$$y(\Delta) = \frac{\partial \Delta}{\partial \varphi} = (2Q/f_0)(\Delta + \Delta_0)^2 + (f_0/2Q) = b_0 + b_1\Delta + b_2\Delta^2 \quad (42)$$

where

$$b_0 = (f/2Q) + (2Q/f_0)\Delta_0^2, \quad (43)$$

$$b_1 = (2Q/f_0)2\Delta_0, \text{ and} \quad (44)$$

$$b_2 = (2Q/f_0). \quad (45)$$

[0060] Vor Ausführung der parabolische Regression werden, zur Bestimmung der bestangepassten Werte für die Regressionskoeffizienten, um f_R herum mehrere Messungen vorgenommen. Gleichungen (43) bis (45) ergeben sodann

$$\Delta_0 = \frac{0,5b_1}{b_2}, \quad (46)$$

$$f_0 = f_R + \Delta_0, \text{ and} \quad (47)$$

$$Q = \frac{(f_0/2)}{\sqrt{b_0/b_2 - \Delta_0^2}}. \quad (48)$$

Abb. 4 zeigt den Verlauf von $-1/d\varphi$ and φ in der Nähe einer Resonanz.

[0061] Die oben erwähnte parabolische Regressionsmethode wird wie folgt erklärt. Ausgehend von einem Modell der Form

$$y(x) = b_0 + b_1x + b_2x^2 \quad (49)$$

können die Regressionsgleichungen matrizenförmig wie folgt dargestellt werden

$$\begin{bmatrix} \sum Y \\ \sum xY \\ \sum x^2Y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} n & \sum x & \sum x^2 \\ \sum x & \sum x^2 & \sum x^3 \\ \sum x^2 & \sum x^3 & \sum x^4 \end{bmatrix} * \begin{bmatrix} b_0 \\ b_1 \\ b_2 \end{bmatrix} \quad (50)$$

[0062] Die bestangepassten Parameter erhält man durch Invertierung dieser Regressionsmatrix. Obwohl diese Matrix für jede beliebig Zahl von Messpunkten invertiert werden kann, ergibt sich eine Vereinfachung, wenn man symmetrisch um den Referenz-Nullpunkt verteilte Messpunkte in gleichen Abständen voneinander wählt. Dann werden die Hälfte der Matrizelemente auf Null reduziert. Beispielsweise, 11 um den Referenzpunkt herum verteilte Messpunkte im Abstand von jeweils 1 Hz ergeben $n = 11$, $\sum x = 0$, $\sum x^2 = 110$, $\sum x^3 = 0$, und $\sum x^4 = 1958$. Mit diesen Werten lassen sich die Werte für b aus der folgenden invertierten Matrix-Gleichung berechnen:

nen

$$\begin{bmatrix} b_0 \\ b_1 \\ b_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1958/9438 & 0 & -110/9438 \\ 0 & 1/110 & 0 \\ -110/9438 & 0 & 11/9438 \end{bmatrix} * \begin{bmatrix} \sum Y \\ \sum xY \\ \sum x^2Y \end{bmatrix} \quad (51)$$

[0063] Sobald die b-Parameter bekannt sind, kann die Resonanzfrequenz f_0 wie oben beschrieben aus Amplitudenmessungen oder Phasenmessungen bestimmt werden. Bei gleichen Abständen der Messpunkte, aber nicht notwendigerweise 1 Hz, müssen die b-Parameter wie folgt auf die Inkremente s skaliert werden:

$$\begin{aligned} b_0 &\rightarrow b_0, \\ b_1 &\rightarrow b_1/s, \text{ und} \\ b_2 &\rightarrow b_2/s^2. \end{aligned}$$

[0064] Bezug nehmend auf die [Abb. 5](#) bis [Abb. 7](#), hat eine Akustikzelle **1** ein vorzugsweise aus Metall gefertigtes Gehäuse **10**. Das Gehäuse **10** enthält eine Mehrzahl akustischer Hohlräume, beispielsweise die akustischen Hohlräume **11**, **12** und **13**. Der akustische Hohlräume **12** ist kleiner als die akustischen Hohlräume **11** und **13**. Eine erste und zweite Abschlussmembran **20a**, **20b** bestehen vorzugsweise aus Metall, beispielsweise aus INCONEL, rostfreiem Stahl oder einer anderen nicht oxidierenden metallischen Legierung. Wenn die erste und zweite Abschlussmembran **20a**, **20b** im Gehäuse **10** eingebaut werden, wird vorher ein O-Ring **21** in die O-Ring-Nut **22** im Gehäuse **10** eingesetzt. Sodann bilden die erste und zweite Abschlussmembran **20a**, **20b** jeweils eine Seitenwand der akustischen Hohlräume **11** und **13**.

[0065] Bezug nehmend auf die [Abb. 6A](#) und [Abb. 6B](#), wird ein Schallsendekopf, beispielsweise eine Schallsendemikrofonkapsel **30**, in das Gehäuse **10** direkt an der ersten Abschlussmembran **20a** eingepasst. Die Schallsendemikrofonkapsel **30** enthält innerhalb eines Metallgehäuses **33** ein zum Antrieb der ersten Abschlussmembran **20a** dienendes Schallsendemikrofon **34** und ein Kompensationsmikrofon **32**. Das Schallsendemikrofon **34** und das Kompensationsmikrofon **32** werden vorzugsweise mittels Epoxydharz in das Gehäuse **33** eingeklebt. Das Gehäuse **33** wird vorzugsweise durch zwei (nicht dargestellte) schallisolierende O-Ringe in der inneren Zylinderwand der Schallsendemikrofonkapsel **30** von der Schallsendemikrofonkapsel **30** isoliert. Zwei Nuten **38** für schallisolierende O-Ringe in einer äußeren Zylinderwand der Schallsendemikrofonkapsel **30** nehmen zwei die Schallsendemikrofonkapsel **30** akustisch dämpfende O-Ringe **37** auf, so dass die Signalübermittlung über einen parasitären Pfad durch das Gehäuse **10** stark reduziert wird. Elektrodynamische Mikrofone sind geeignet für Schallsendeköpfe im Bereich 1 bis 7 kHz. Zwei Entlüftungslöcher **65**, jeweils eins auf jeder Seite der O-Ring-Nut **38**, sorgen für einen Ausgleich von Druckunterschieden innerhalb der Schallsendemikrofonkapsel **30**.

[0066] Die Schallsendemikrofonkapsel **30** enthält am Ende eine Unterlegscheibe **22a**, womit das Gehäuse **33** innerhalb der Schallsendemikrofonkapsel **30** fixiert wird. Die Unterlegscheibe **22a** am Ende wird vorzugsweise mittels (nicht dargestellter) Schrauben, die in die in [Abb. 6B](#) dargestellten Löcher passen, an der Schallsendemikrofonkapsel **30** befestigt. Vorzugsweise wird zwischen der Unterlegscheibe **22a** am Ende und dem Gehäuse **33** ein (nicht dargestellter) schallisolierender O-Ring eingebracht. Die Schallsendemikrofonkapsel **30** wird im Gehäuse **10** mittels des Kragens **23** befestigt.

[0067] Ein Antriebssignal **35** aktiviert das Schallsendemikrofon **34** und das Kompensationsmikrofon **32** in synchroner Weise, so dass die Schallsendemikrofonkapsel **30** beim Senden des akustischen Signals durch das in der Akustikzelle **1** vorhandene Gasmedium nur ein minimales Moment auf das Gehäuse **10** überträgt. Somit findet fast keine Signalübertragung über den parasitären Pfad statt, während das Signal unvermindert durch das Gasmedium übertragen wird. Wahlweise können das Schallsendemikrofon **34** und das Kompensationsmikrofon **32** einzeln hinsichtlich Phase und Amplitude justiert werden. Wenn die Mikrofone vom selben Hersteller mit kommerziell gängigen Toleranzen gefertigt worden sind, sind sie ausreichend hinsichtlich Phase und Amplitude aneinander angepasst.

[0068] Bezug nehmend auf die [Abb. 7](#), wird ein Schallempfangskopf, beispielsweise, eine Schallempfangsmikrofonkapsel **40**, in das Gehäuse **10** direkt an der zweiten Abschlussmembran **20b** eingepasst. Die Schallempfangsmikrofonkapsel **40** enthält ein Schallempfangsmikrofon **42** zum Empfangen der Schwingungen der zweiten Abschlussmembran **20b** und zum Weiterleiten des empfangenen Signals **41a**. Vorzugsweise ist das Schallempfangsmikrofon **42** vom Typ eines Electret-Mikrofons (Kondensatormikrofon) wegen dessen hoher Empfindlichkeit und relativ flachem Frequenzverlauf beim Empfangen akustischer Signale. Wegen seiner geringen Größe passt das Empfangsmikrofon **42** direkt in die Schallempfangsmikrofonkapsel **40**. Das Schallemp-

fangsmikrofon **42** wird vorzugsweise durch einen schallisolierenden O-Ring **43** von der Schallempfangsmikrofonkapsel **40** isoliert. Die Schallempfangsmikrofonkapsel **40** ist vom Gehäuse **10** durch einen schallisolierenden O-Ring **47** isoliert, der in eine O-Ring-Nut **48** passt. Zwei Entlüftungslöcher **65**, jeweils eins auf jeder Seite der O-Ring-Nut **38**, sorgen für einen Ausgleich von Druckunterschieden innerhalb der Schallempfangsmikrofonkapsel **40**. Das Empfangsignal **41a**, das Stromkabel **41b** und das Endungskabel **41c** sind von der Schallempfangsmikrofonkapsel **40** elektrisch isoliert.

[0069] Das Schallempfangsmikrofon **42**, das Schallsendemikrofon **34** und das Kompensationsmikrofon **32** sind, wie vorher beschrieben, so montiert, dass eine Geräuschübertragung über die Metallteile von einem Ende der Akustikzelle **1** zum anderen Ende minimiert wird. Minimierung der Geräuschübertragung ist wesentlich bei den niedrigen Betriebsdrücken der vorliegenden Erfindung.

[0070] Bezug nehmend auf [Abb. 5](#), sind Metallmembranen **20a**, **20b** zwischen der aus den akustischen Hohlräumen **11**, **12** und **13** bestehenden akustischen Resonanzkammer und den aus nicht-metallischen Bauteilen bestehenden Schallsende- und Schallempfangsmikrofonen **34**, **42**, eingesetzt; damit wird erreicht, dass der Gasfluss kontaminationsfrei bleibt und die Mikrofone von möglichen Druckimpulsen innerhalb der akustischen Resonanzkammer geschützt bleiben. Die Abschlussmembranen **20a**, **20b** sind vorzugsweise vorgespannte Abschlussmembranen von einem Zoll Durchmesser mit einer Grundschwingungsfrequenz von ungefähr 6 kHz bei atmosphärischem Druck.

[0071] Ein Gaszuführungsrohr **70** ist mit dem akustischen Hohlraum **11** über den Gaszuführung **71** verbunden. Ein Gasableitungsrohr **80** ist mit dem akustischen Hohlraum **12** über den Gasableitung **81** verbunden. Ein vorzugsweise aus Platin bestehender RTD-Temperaturfühler **50** (Widerstands-Temperatur-Detektor), ist zur Übermittlung genauer Temperaturwerte in das Gehäuse **10** eingesetzt. Zwei Löcher **60** werde vorzugsweise durch einen dicken Teil des Gehäuses **10** gebohrt, in denen ein (nicht dargestelltes) Heizelement befestigt werden kann, mit dem die Akustikzelle **1** mit einer Genauigkeit von 0,1 K auf einer bestimmten Temperatur gehalten werden kann.

[0072] Bezug nehmend auf [Abb. 8](#), sendet der Digitalsignal-Prozessrechner **100** ein Treibersignal **35** an die Akustikzelle **1**. Der Digitalsignal-Prozessrechner **100** enthält vorzugsweise einen digitalen Wellenform-Synthesizer, beispielsweise einen Sinuswellengenerator, um eine synthetisierte Sinuswelle **98** zu einem Digital-Analog-Umwandler **97** weiterzuleiten, von dem sodann eine analoge Sinuswelle **96** ausgegeben wird. Ein Verstärker **95** verstärkt die Sinuswelle **96** und erzeugt somit das Treibersignal **35** für die Akustikzelle **1**. Die Akustikzelle **1** gibt das empfangene Signal **41a** aus, das ein direktes Indiz für die Zusammensetzung des Gases in der Akustikzelle **1** darstellt. Das empfangene Signal **41a** wird vom Verstärker **90** verstärkt, der sodann das Verstärkerausgangssignal **91** an einen Analog-Digital-Umwandler **92** und dieser das entstehende Digitalsignal **93** an den Digitalsignal-Prozessor **100** weiterleitet. Der Digitalsignal-Prozessor **100** empfängt ferner ein (nicht dargestelltes) Temperatursignal **50** zur Verwendung in dessen Berechnungen. Der Digitalsignal-Prozessor **100** enthält einen digitalen Phasendetektor, der die Phase des empfangenen Signals **41** etwas 200 mal pro Sekunde mit der Phase des Treibersignals **35** vergleicht. Ein eingebauter Mikroprozessorechner bestimmt die durchschnittliche Resonanzfrequenz fünf mal pro Sekunde. Der Digitalsignal-Prozessor **100** gibt sodann ein Prozessor-Ausgangssignal **101** aus, das einen Hinweis auf die Gaszusammensetzung des binären Gases in der Akustikzelle **1** gibt.

[0073] Eine alternative Messmethode, die als Phasen-Sperr-Methode bezeichnet werden kann, wird kurz beschrieben. In einem bestimmten gasförmigen Medium ist die Phasenverzögerung zwischen Schallempfangs- und Schallsendekopf bei der Resonanzfrequenz f_0 konstant, solange die Zusammensetzung des Gases nicht schwankt. Jede auf eine Veränderung der Gaszusammensetzung zurückzuführende Änderung der Phasenverzögerung zwingt den digitalen Sinuswellengenerator, die Frequenz des Treibersignals **35** so zu justieren, dass die Phasenverzögerung wieder zum Wert des stationären Zustands zurückkehrt. Sofern das Schallsendemikrofon **34** und Schallempfangsmikrofon **42** in ihrer Phase aufeinander abgestimmt sind, zeigt im Betrieb der Akustikzelle **1** ein Unterschied der Phasen eine Änderung des Gaszusammensetzung an. Die Frequenz des Treibersignals **35** wird verändert, um die Phase wieder anzugleichen. Die zum Angleichen der Phase erforderliche Höhe der Frequenzveränderung liefert die zum Bestimmen der Gaszusammensetzung erforderliche Information. Folglich erlaubt die Differenz zwischen einjustierter Frequenz und der Resonanzfrequenz f_0 im stationären Zustand, die Veränderung der Gaszusammensetzung zu berechnen. Diese Messmethode ist schneller als die oben beschriebene, sie ist aber nur bei der Überwachung von Verfahren mit stationären Zuständen anwendbar.

[0074] Die Kalibrierung erfolgt bei den zu erwartenden Betriebswerten der Temperatur, des Drucks und der

Flussrate, indem reines Trägergas durch die Akustikzelle **1** geschickt und sodann eine Grundlinie der Frequenz gemessen wird. All Messungen des binären Gases erfolgen dann relativ zu dieser Grundlinie. Der Akustiksensore ist somit unabhängig von anderenfalls erforderlichen Kalibrierungen beim Hersteller. Selbstverständlich erfordert jede starke Veränderung der Betriebsbedingungen (Betriebstemperatur, -druck und -fussrate), dass zur Aufrechterhaltung der Genauigkeit eine neue Grundlinien-Messung durchgeführt wird.

[0075] Bezug nehmend auf [Abb. 9A](#), wird bei den hohen Temperaturen, in denen die vorliegende Erfindung eingesetzt wird, vorzugsweise ein elektrostatisches Schallsendemikrofon anstelle von elektrodynamischen Mikrofonen **32, 34** verwendet. Eine elektrostatische Antriebseinrichtung **120** kann direkt an der ersten Abschlussmembran **20a** angreifen. Die im Spannungsbereich 100 bis 500V von einer Gleichstromquelle **124** vorgespannte erste Abschlussmembran **20a** wird von einem Sinuswellengenerator **122** durch diese Gleichstromquelle hindurch angetrieben. Der Sinuswellengenerator **122** wird über die Erdungsplatte **121** geerdet. Die an der Abschlussmembran **20a** ansetzende Kraft $F(t)$ kann durch die Formel $F(t) = -CV_0u\cos\omega t$ ausgedrückt werden, mit C , der statischen Kapazität zwischen Abschlussmembran **20a** und Erdungsplatte **121**, V_0 , der Gleichstromvorspannung **124** und u , der Amplitude des Sinuswellengenerators **122**.

[0076] Bezug nehmend auf [Abb. 9B](#), wird bei den hohen Temperaturen, in denen die vorliegende Erfindung eingesetzt wird, vorzugsweise ein elektrostatisches Mikrofon anstelle des Electret-Mikrofons **42** verwendet. Eine Rückplatte **131** bildet zusammen mit der Abschlussmembran **20b** einen Kondensator. Eine von der Gleichstromquelle **134** erzeugte Vorspannung, vorzugsweise im Bereich 20 bis 100V, und ein Widerstand R , vorzugsweise kleiner als $10\text{ M}\Omega$, erlaubt, dass ein Signal $e(t)$ festgestellt werden kann.

[0077] Das Signal $e(t)$ kann durch die Formel $e(t) = RV_0\left(\frac{dC}{dt}\right)C$ ausgedrückt werden, mit $\frac{dC}{dt}$, der zeitlichen Ableitung der Kapazität zwischen der Abschlussmembran **20b** und der Rückplatte **131**.

[0078] Im Folgenden wird die Auswertung des Betriebs der vorliegenden Erfindung beschrieben. Die Akustikzelle **1** hatte eine typische Länge von 3,850 Zoll und einen typisch Durchmesser von 1,750 Zoll. Die akustischen Hohlräume **11** und **13** hatten eine typische Länge von 0,600 Zoll und einen typischen Durchmesser von 1,000 Zoll, während der akustischen Hohlräume **12** eine typische Länge von 1,200 Zoll und einen typischen Durchmesser von 0,375 Zoll hatte. Die Abschlussmembranen **20a, 20b** sowie die isolierenden O-Ringe **21** hatte einen typischen Durchmesser von 1,206 Zoll.

[0079] [Abb. 10](#) zeigt die Streuwerte der Resonanzfrequenzen im Wasserstoffgas, gemessen bei einer Flussrate von 500 ml/min und einem Druck von 200 mbar (150 Torr). Die jeweilige Messzeit betrug 200 ms. Aus [Abb. 10](#) ist ersichtlich, dass über ein Zeitraum von fünfzehn Minuten der Streubereich ungefähr 0,2 Hz beträgt, woraus sich eine Kuzzeit-Temperaturstabilität in der Größenordnung von 0,05 K ergibt. Daraus lässt sich die Genauigkeit der Frequenzbestimmung zu 0,0045 % und die des Trimethylindiums (TMI) im Wasserstoffgas zu 0,00011 % errechnen.

[0080] Bezug nehmend auf [Abb. 11](#), ist die quantitative Prüfung mit mehreren Gasen in dem Primärgas Wasserstoff durchgeführt worden. Jeder Mengen-Durchflussregler des jeweiligen Gases wurde genau kalibriert, indem die erforderliche Zeit zum Füllen eines bestimmten Volumens (ungefähr 500 ml) bei einer festgelegten Druckdifferenz (667 mbar (500 Torr)) gemessen, und damit die nominelle Mengen-Flussrate festgelegt wurde. Bei Stickstoffgas schwankte der Kalibrierfaktor zwischen 0,99 und 1,02. Bei Wasserstoffgas schwankte der Kalibrierfaktor zwischen 1,09 und 1,15. Bei den Gases Argon, Kohlendioxid und R134a waren die jeweiligen Kalibrierfaktoren 1,36, 0,70, beziehungsweise 0,28. Diese für jeden Mengenflussregler spezifischen Gaskalibrierfaktoren wurden angewendet, um den Molenbruch des jeweiligen, in das Primärgas Wasserstoff eingeschleusten Gases zu schätzen. Diese Molenbruch-Schätzwerte für die Gase Argon, Stickstoff, Kohlendioxid und R134a sind in [Abb. 11](#) als Funktion der Gasflussrate mit den durchgezogenen geraden Linien dargestellt. Die Flussrate des Primärgases Wasserstoff wurde dabei konstant auf 400 ml/min und der Druck auf 400 mbar (300 Torr) gehalten.

[0081] Sodann sind die Resonanzfrequenzen der Akustikzelle im jeweiligen Gas bei Flussraten von 5, 10 und 15 ml/min gemessen worden. Die Resultate sind in [Abb. 11](#) als diskrete Datenpunkte der gemessenen Frequenzen eingetragen. Die Molenbruch-Werte sind mit einer Akustikzelle gemäß der vorliegenden Erfindung gemessen worden und es zeigte sich, dass die Ergebnisse sehr gut mit den Schätzwerten der kalibrierten Mengenflussregler übereinstimmen. Die größte Frequenzänderung bei diesem Satz von Messdaten betrug 1017 Hz, was bei Trimethylindium (TMI) in Wasserstoff einer Genauigkeit von 0,63 % entspricht.

[0082] Bezug nehmend auf [Abb. 12](#), sind hierin als durchgezogene gerade Linien die Molenbruch-Schätz-

werte für Stickstoff bei einer durch verschiedene Betriebsdrücke ausgelösten Änderung der Flussrate dargestellt. Die diskreten Messpunkte sind mit einer Akustikzelle gemäß der vorliegenden Erfindung bei verschiedenen Drücken gemessen worden. Die [Abb. 11](#) und [Abb. 12](#) beweisen die hohe quantitative Genauigkeit der vorliegenden Erfindung über einen großen Bereich von Betriebsdrücken und Flussraten hinweg bei einer Vielfalt von Gasen.

[0083] Bezug nehmend auf [Abb. 13](#), ist hierbei die Akustikzelle der vorliegenden Erfindung in die Zuleitung des Trimethylindiums (TMI) eines metallorganischen Gasphasenepitaxie (MOCVD) Reaktors eingebaut worden. Die dargestellten Datenpunkte sind Ergebnisse eines Versuchs, bei dem die Flussrate des Wasserstoffs durch den TMI-Bubbler variiert wurde. Die durchgezogene Linie zeigt die Ergebnisse der Berechnung unter den Annahmen, dass sich ein stationärer Zustand der Flussrate des Wasserstoffs durch den Bubbler sowie ideale Dampfdruckbedingungen des TMI eingestellt haben. Die mit der Akustikzelle gemäß der vorliegenden Erfindung gemessenen Molenbruchwerte sind als diskrete Messpunkte dargestellt. Der Betriebsdruck betrug 200 mbar (150 Torr) und das Wasserstoffgas ist der Lösung mit 200 ml/min zugeführt worden.

[0084] Die Differenz zwischen gemessenem Molenbruch und geschätztem idealen Molenbruch steigt mit wachsender Flussrate im Bubbler. Es wird vermutet, dass bei der Mitreiß-Effizienz mit zunehmender Flussrate des Wasserstoffs durch den TMI-Bubbler abnimmt. Deshalb führen konventionelle, auf der Mengen-Flussrate basierende Berechnungsmethoden wahrscheinlich zu einer Überschätzung des resultierenden Molenbruchs.

[0085] Bezug nehmend auf [Abb. 14](#), wurden ähnliche Versuche mit dem R134a-Gas durchgeführt. Die durchgezogene Linie basiert auf einem kalibrierten Mengen-Durchflussregler, während die diskreten Messwerte das Resultat von Messungen mit der vorliegenden Erfindung darstellen. Hier zeigt sich eine hervorragende quantitative Übereinstimmung zwischen der Akustikzelle und dem kalibrierten Mengen-Flussregler.

Patentansprüche

1. Eine Akustikzelle (**1**), die Folgendes umfasst
 ein Zellengehäuse (**10**) und fließtechnisch mit dem Zellengehäuse (**10**) verbundene Strömungsvorrichtungen (**70, 80**), durch die ein Gas zum Durchströmen des besagten Zellengehäuses (**10**) gebracht wird;
 Schallerzeugungsmittel (**30, 20a**) an einem (ersten) Ende des Zellengehäuses (**10**), dessen Akustiksignal durch das Gas, das das Zellengehäuse (**10**) durchströmt, geschickt wird;
 Schallempfangsmittel (**40, 20b**) am anderen (zweiten) Ende des Zellengehäuses (**10**), der das Akustiksignal empfängt;
 wobei
 besagtes Zellengehäuse (**10**) eine Reihe von akustischen Hohlräumen (**11, 12, 13**) aufweist;
 zumindest einer der Schallerzeugungsmittel (**30, 20a**) und einer der Schallempfangsmittel (**40, 20b**) schalltechnisch vom Gehäuse (**10**) der akustischen Zelle isoliert sind, und besagte Schallerzeugungsmittel einen Sendeschallkopf (**30**) und eine erste Abschlussmembran (**20a**) zwischen dem Sendeschallkopf (**30**) und dem ersten Ende des Zellengehäuses (**10**) aufweisen;
 und besagter Schallerzeuger Folgendes umfasst:
 ein Schallerzeugerkapselgehäuse (**30**);
 ein in das Schallerzeugerkapselgehäuse (**30**) eingepasstes Metallgehäuse (**33**);
 zumindest einen schallisolierenden O-Ring (**37**) außen auf dem Schallerzeugerkapselgehäuse (**30**);
 zumindest einen schallisolierenden O-Ring innen im Schallerzeugerkapselgehäuse (**30**); und
 ein innerhalb des Metallgehäuses (**33**) direkt an der ersten Abschlussmembran (**20a**) anliegendes Sehallsendemikrofon (**34**).

2. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass
 besagter Sendeschallkopf innerhalb des besagten Metallgehäuses (**33**) ein Kompensationsmikrofon (**32**) enthält und zwar Rücken-an-Rücken mit dem Schallsendemikrofon (**34**); und
 besagtes Schallsendemikrofon (**34**) und das besagte Kompensationsmikrofon (**32**) sich einen synchronisierten Eingang (**35**) teilen.

3. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass besagtes Schallempfangsmittel Folgendes enthält:
 einen Schallempfangskopf (**40**); und
 eine zweite Abschlussmembran (**20b**) zwischen besagtem Schallempfangskopf (**40**) und dem zweiten Ende des besagten Zellengehäuses (**10**).

4. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der besagte Schallempfangskopf Folgendes enthält:
ein Gehäuse (**40**) der Schallempfängerkapsel;
zumindest einen schallisolierenden O-Ring (**47**) außen auf dem Schallempfängerkapselgehäuse (**40**);
ein innerhalb des Schallempfängerkapselgehäuses (**40**) direkt an der zweiten Abschlussmembran (**20b**) anliegendes Schallempfangsmikrofon (**42**).

5. Eine Akustikzelle gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Schallerzeugungsmittel (**30, 20a**) ein elektrostatisches Mikrofon und die Schallempfangsmittel (**40, 20b**) ein Kondensatormikrofon enthalten.

6. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 1 und 4, dadurch gekennzeichnet, dass besagtes Schallsendemikrofon (**34**) und das Kompensationsmikrofon (**32**) aus elektrodynamischen Mikrofonen bestehen;
besagtes Empfangsmikrofon (**42**) aus einem Electret-Mikrofon besteht.

7. Eine Akustikzelle gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest zwei der besagten akustischen Hohlräumen (**11, 12, 13**) unterschiedlicher Größe sind.

8. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 1, des weiteren dadurch gekennzeichnet, dass eine Heizeinrichtung am Zellengehäuse angebracht ist, durch die die akustische Zelle erwärmt wird; und Messfühler (**50**) am Zellengehäuse angebracht sind, mit denen die Temperatur der besagten akustischen Zelle bestimmt werden kann.

9. Eine Akustikzelle gemäß Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass eine Betriebsfrequenz der besagten Akustikzelle sowohl unter der Eigenresonanzfrequenz der besagten ersten Abschlussmembran (**20a**) als auch unter der Eigenresonanzfrequenz der besagten zweiten Abschlussmembran (**20b**) liegt.

10. Eine Akustikzelle (**1**) gemäß Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass eine Betriebsfrequenz der besagten Akustikzelle sowohl unter der Eigenresonanzfrequenz des besagten Schallerzeugerkapselgehäuses (**30**) als auch unter der Eigenresonanzfrequenz des besagten Schallempfängerkapselgehäuses (**40**) liegt.

11. Ein Akustiksensoren, der eine Akustikzelle (**1**) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10 umfasst und gekennzeichnet ist durch
einen an dem einen (ersten) Ende des besagten Gehäuses (**10**) eingebauten Schallsendekopf (**30**), der ein elektrisches Antriebssignal (**35**) empfängt, dieses Antriebssignal in ein Akustiksignal umwandelt und das Akustiksignal durch das das Gehäuse (**10**) durchströmende Gas hindurchschickt;
einen an dem anderen (zweiten) Ende des besagten Gehäuses (**10**) eingebauten Schallempfangskopf (**40**), der das ausgesandte Akustiksignal empfängt, dieses akustische Empfangssignal in ein elektrisches Empfangssignal umwandelt und dieses elektrische Empfangssignal ausgibt;
einen Prozessrechner (**100**), der das besagte elektrische Antriebssignal (**35**) dem Schallsendekopf (**30**) zuführt und das vom Schallempfangskopf (**40**) abgegebene elektrische Signal annimmt;
Mittel, durch die die Frequenz des ausgesendeten Akustiksignals verändert werden kann;
Mittel, durch die eine auf das Gas zurückzuführende Resonanzfrequenz ermittelt werden kann; und
besagter Prozessrechner (**100**) Mittel enthält, die ihm ermöglichen, eine Zusammensetzung des besagten Gases zu bestimmen.

12. Ein Akustiksensoren gemäß Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die besagten Mittel, die zur Bestimmung einer auf das Gas zurückzuführenden Resonanzfrequenz eingesetzt werden, auch die Phasenverzögerung des elektrischen Empfangssignals bezogen auf das elektrische Antriebssignal bestimmen.

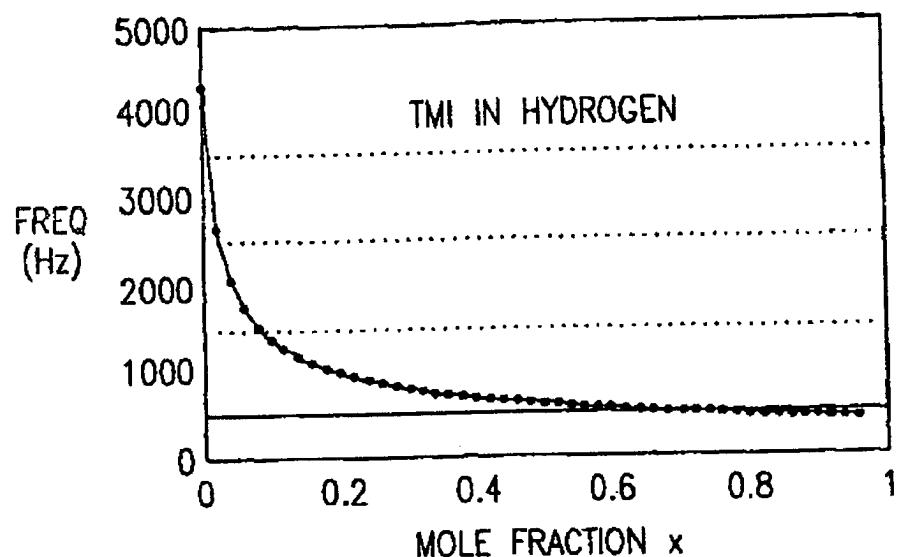
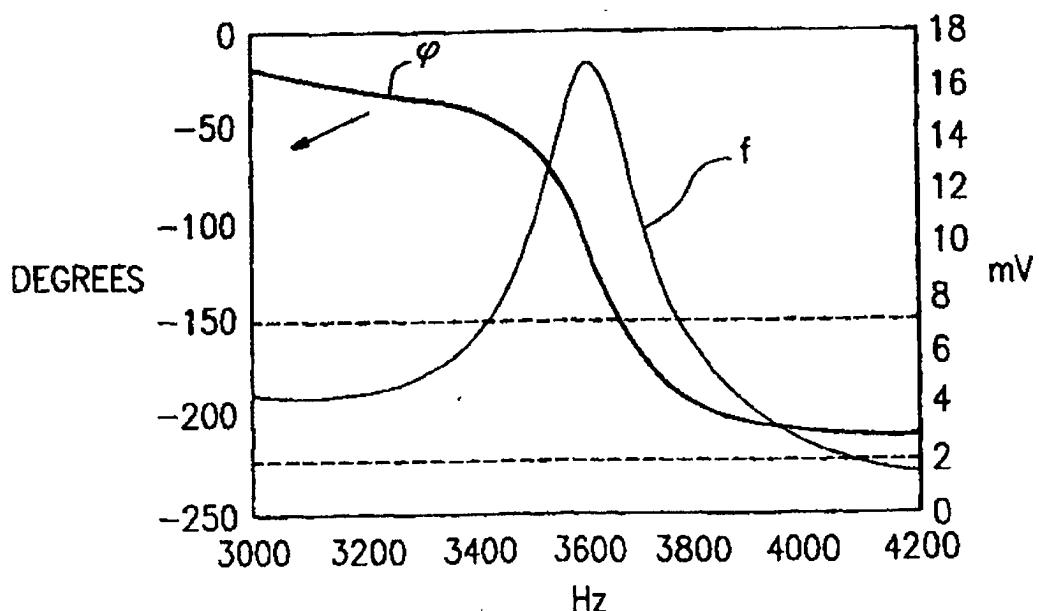
13. Ein Akustiksensoren gemäß Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass die besagten Mittel, die zur Bestimmung einer auf das Gas zurückzuführenden Resonanzfrequenz eingesetzt werden, auch die Amplitude des elektrischen Empfangssignals bezogen auf die Amplitude des elektrischen Antriebssignals bestimmen.

14. Eine Methode zur Bestimmung der Zusammensetzung eines binären Gasgemisches, gekennzeichnet durch die folgenden Schritte:
Bereitstellen einer Akustikzelle (**1**) gemäß einer der Ansprüche 1 bis 10;
Durchströmen der besagten Akustikzelle (**1**) mit einem Gas;

Empfangen eines von einem Digitalsignal-Prozessrechner (**100**) ausgehenden elektrischen Antriebssignals (**35**);
Umwandlung des besagten elektrischen Antriebssignals in ein Akustiksignal;
Aussenden des besagten Akustiksignals in das besagte, die Akustikzelle (**1**) durchströmende Gas;
Empfangen des auf den Schritt des Aussendens eines Akustiksignals in das besagte Gas zurückzuführenden Akustiksignals;
Umwandlung des empfangenen Akustiksignals in ein, diesem Signal entsprechendes elektrisches Empfangssignal;
Ausgabe des besagten elektrischen Empfangssignals an den Digitalsignal-Prozessrechner (**100**);
Verarbeitung des besagten elektrischen Empfangssignals im Digitalsignal-Prozessrechner (**100**) zur Ermittlung einer auf das besagte Gas zurückzuführenden Resonanzfrequenz; und
Bestimmung der Zusammensetzung des besagten Gases auf der Basis der besagten Resonanzfrequenz.

Es folgen 10 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

FIG.1FIG.2

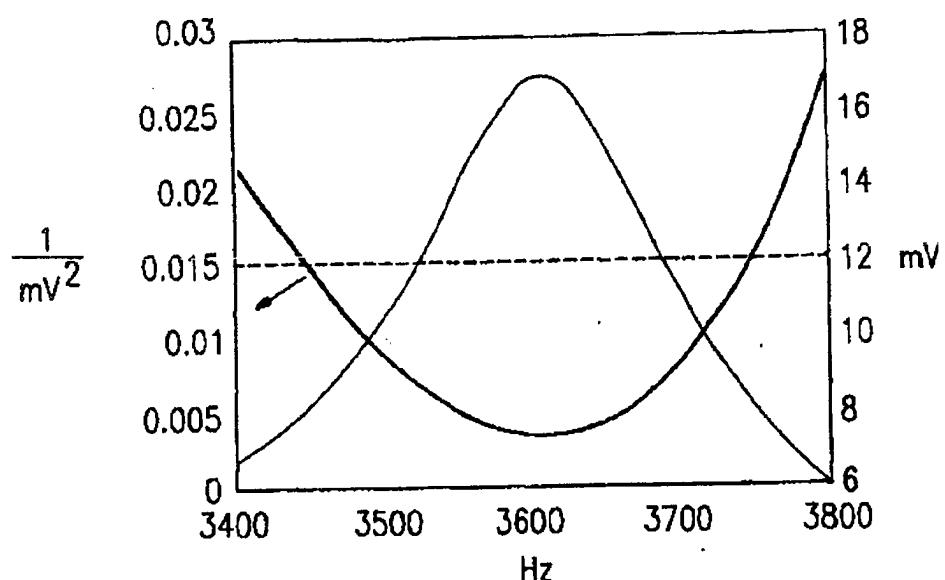


FIG.3

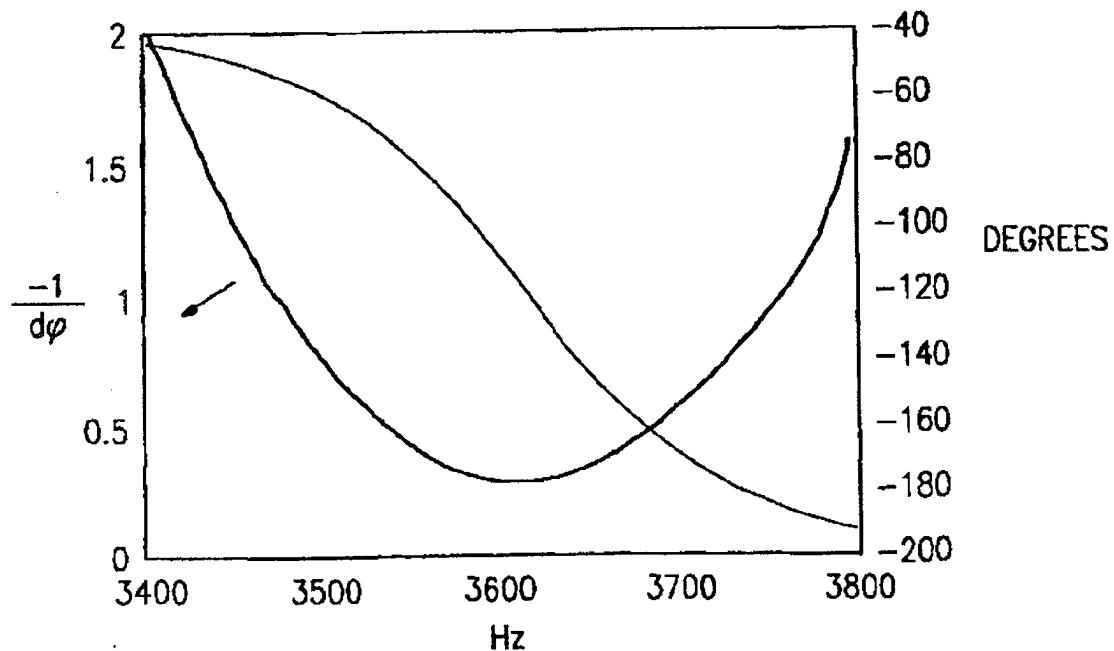


FIG.4

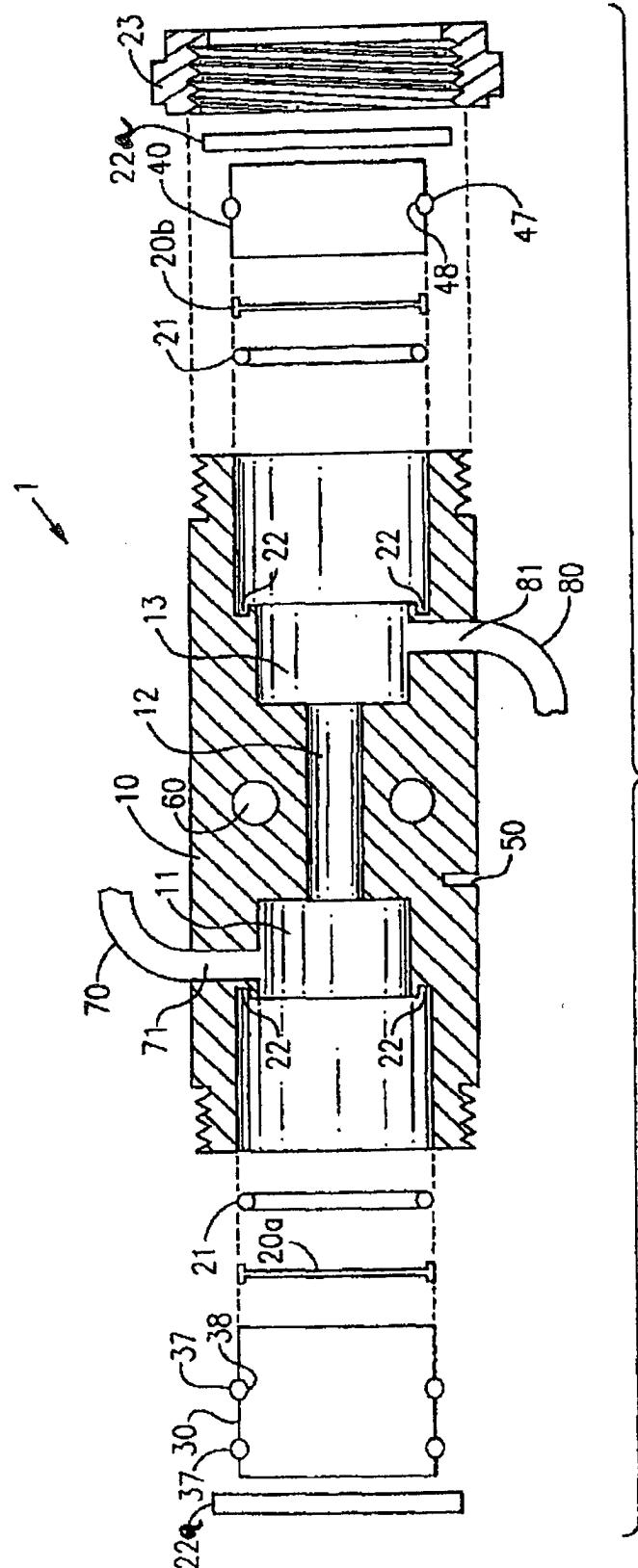


FIG.6A

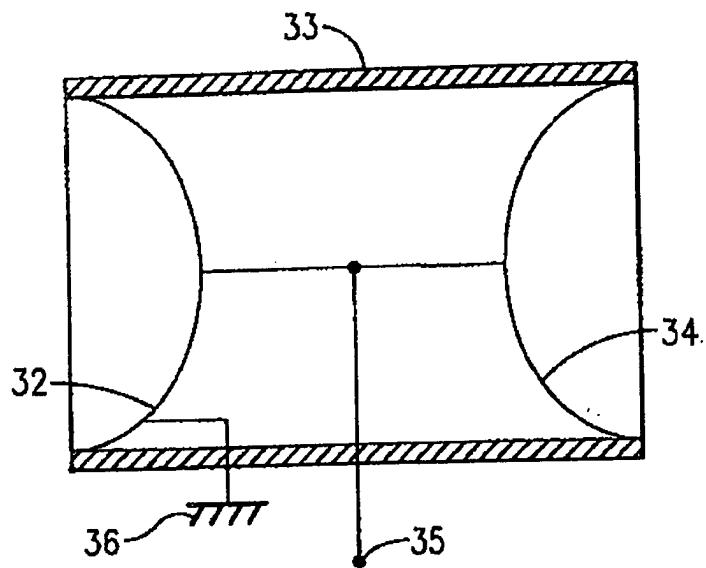
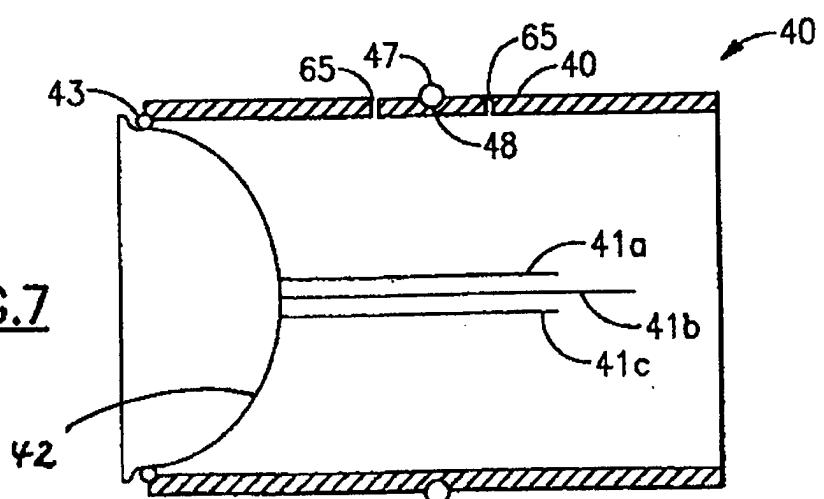


FIG.7



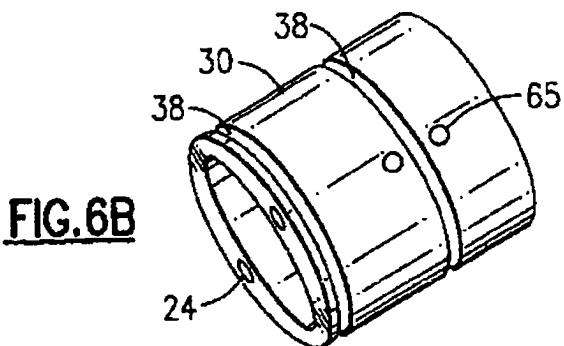


FIG. 6B

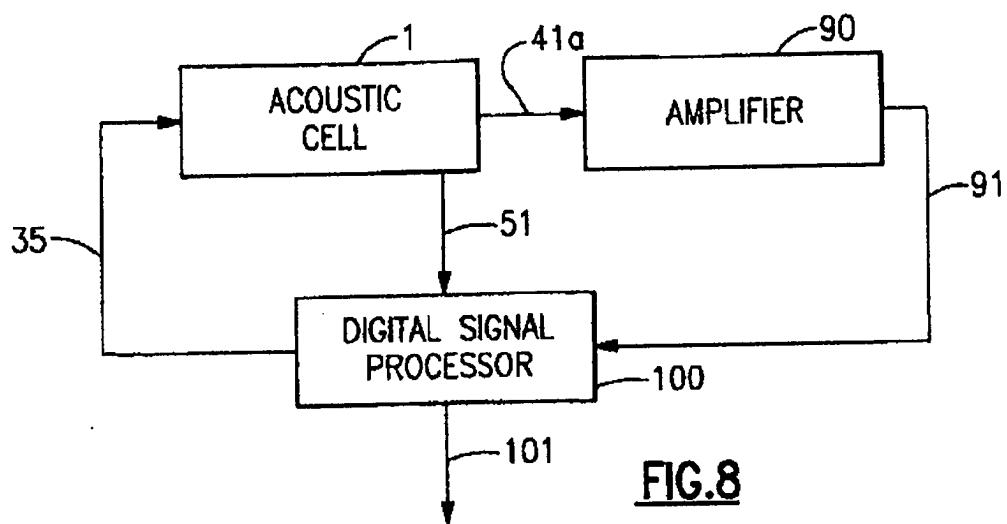


FIG. 8

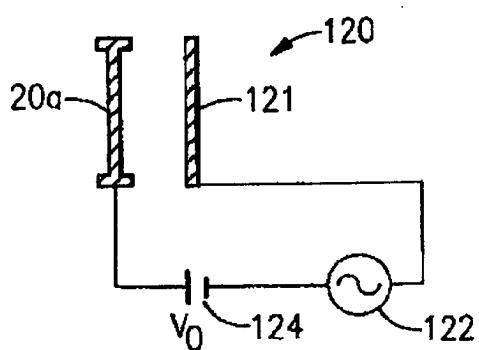


FIG. 9A

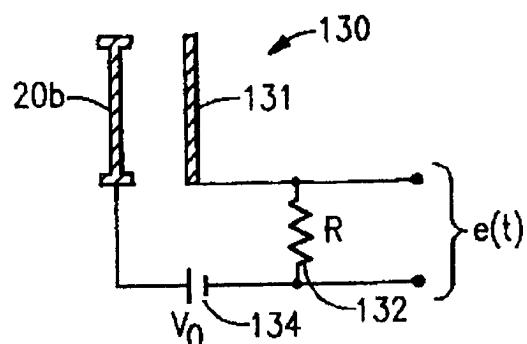
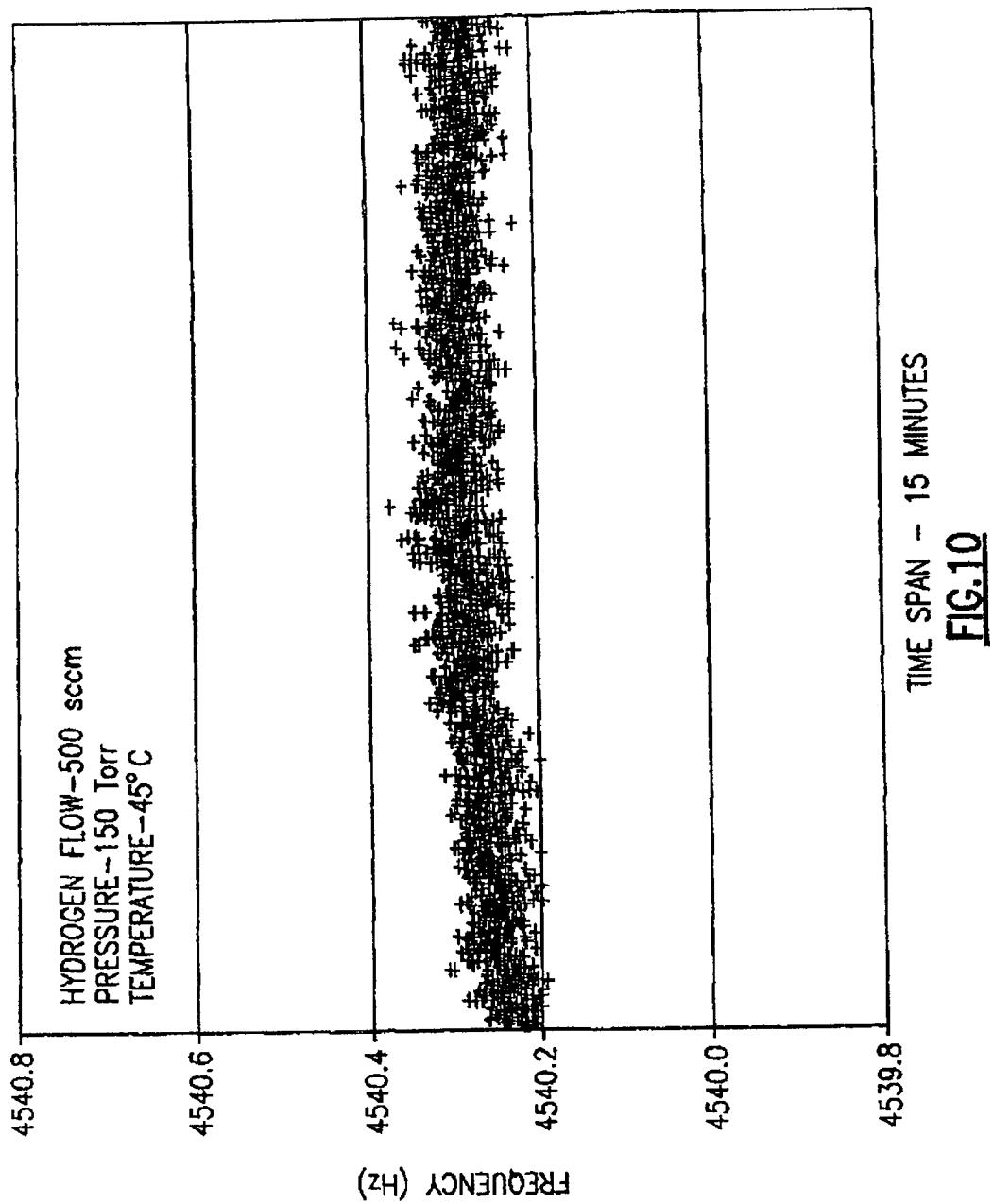
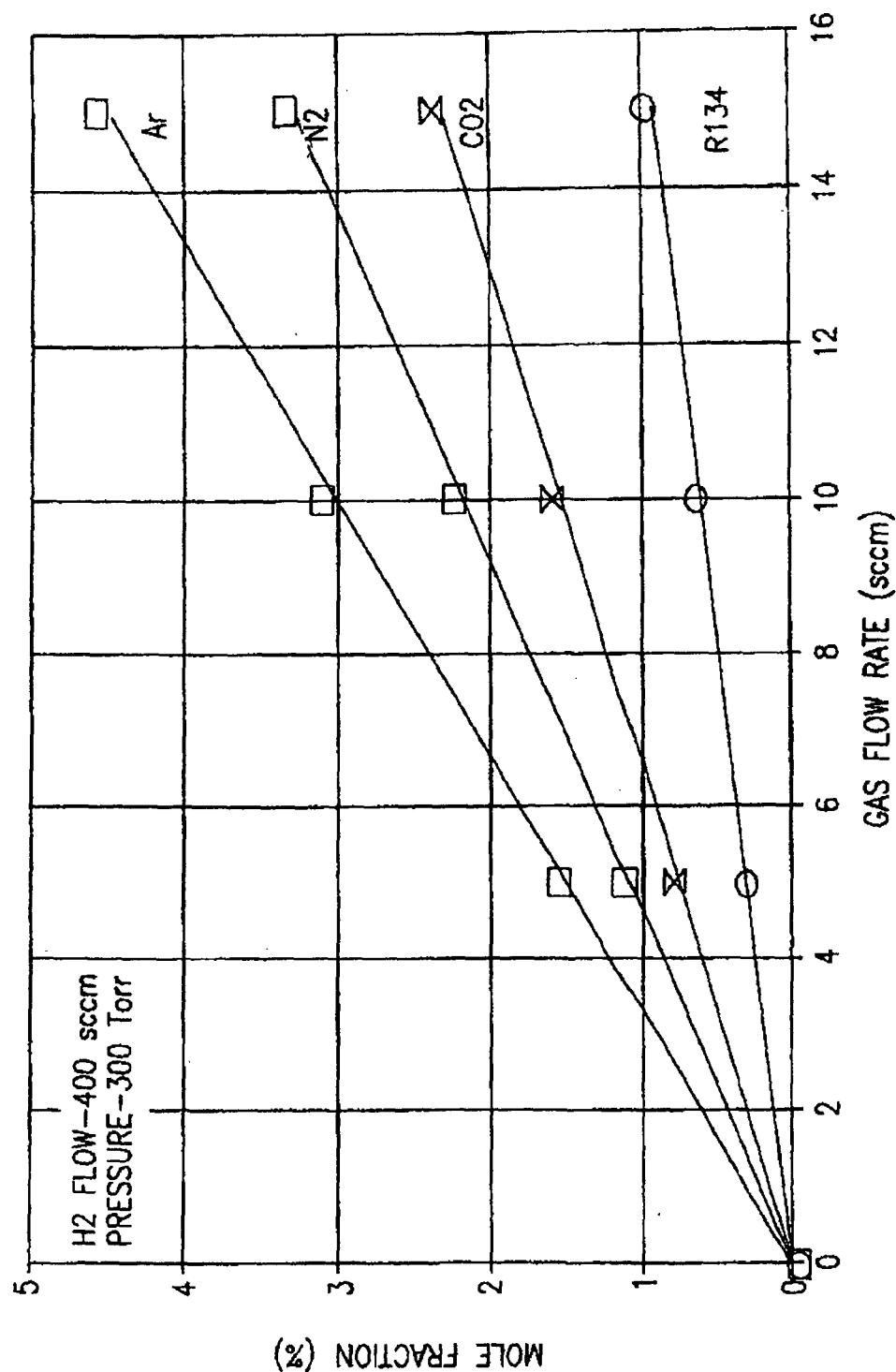
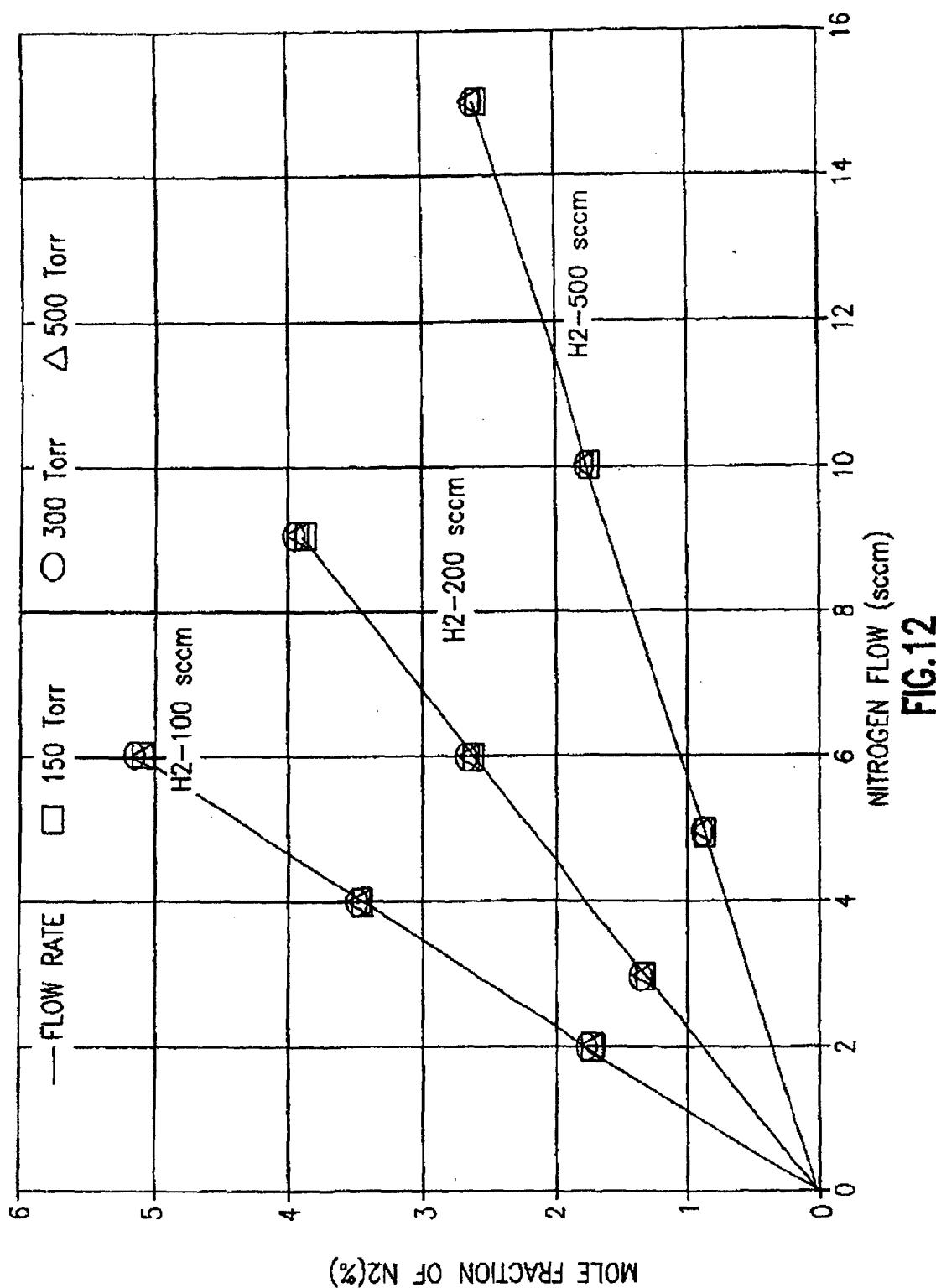


FIG. 9B







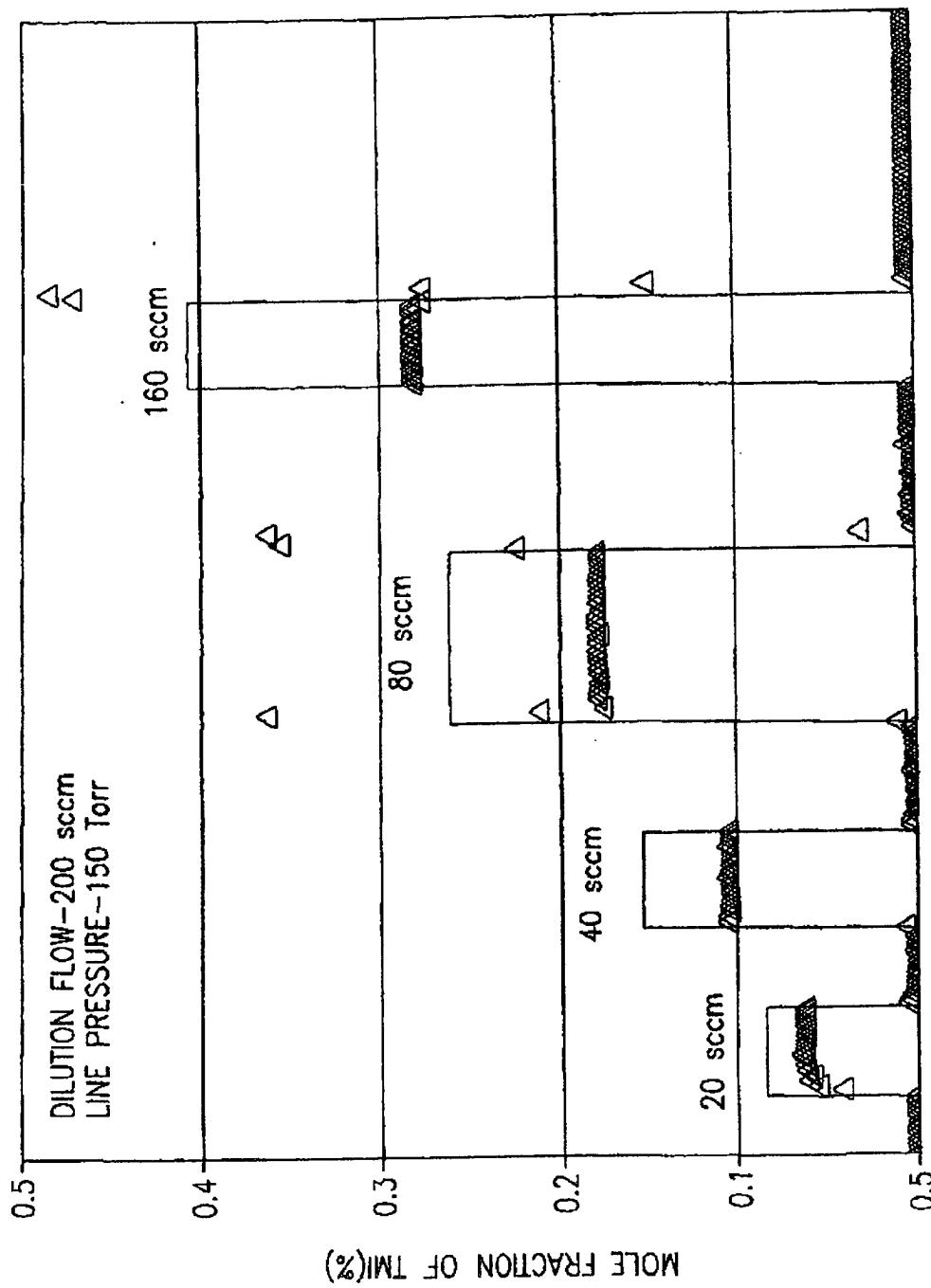


FIG.13

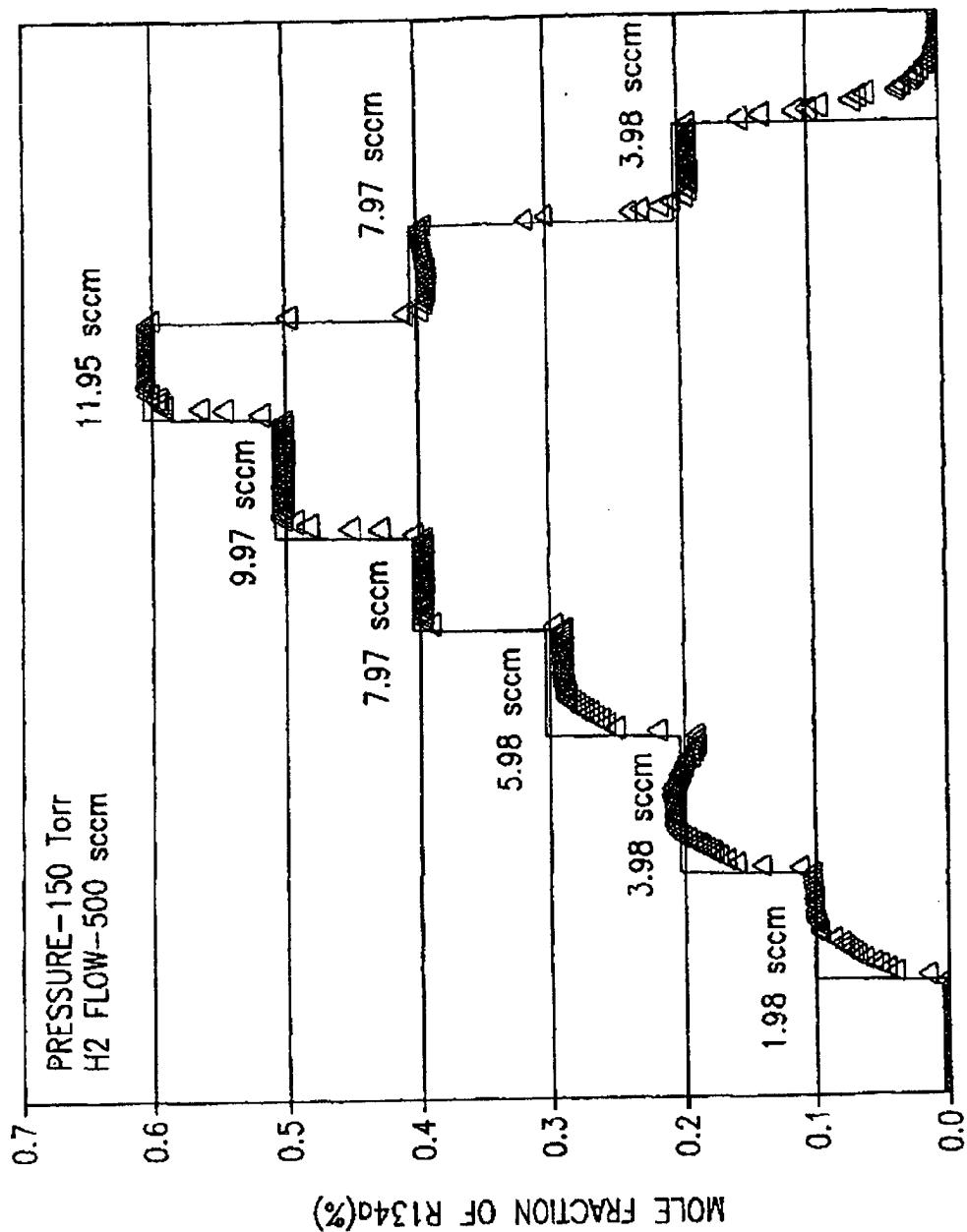


FIG.14