

Паничкин А.В., Мамаева А.А., Дербисалин А.М., Алибеков Ж.Ж., Имбарова А.Т., Кэрбоз Ж.Э. Повышение стойкости к разрушению плоских водородопроницаемых мембран и разработка мембранного модуля для выделения водорода из газовых смесей // Вестник Пермского национального исследовательского политехнического университета. Машиностроение, материаловедение. – 2019. – Т. 21, № 3. – С. 42–50. DOI: 10.15593/2224-9877/2019.3.05

Panichkin A.V., Mamaeva A.A., Derbissalin A.M., Alibekov Zh.Zh., Imbarova A.T., Karboz Zh.A. Improving stability to the destruction of flat hydrogen permeable membranes and development of a membrane module for hydrogen isolation from mixed gas. *Bulletin PNRPU. Mechanical engineering, materials science*, 2019, vol. 21, no. 3, pp. 42–50. DOI: 10.15593/2224-9877/2019.3.05

---

**ВЕСТНИК ПНИПУ. Машиностроение, материаловедение**  
**Т. 21, № 3, 2019**  
**Bulletin PNRPU. Mechanical engineering, materials science**  
<http://vestnik.pstu.ru/mm/about/inf/>

---

DOI: 10.15593/2224-9877/2019.3.05  
УДК 668.2.017:620/17

**А.В. Паничкин, А.А. Мамаева, А.М. Дербисалин, Ж.Ж. Алибеков,**  
**А.Т. Имбарова, Ж.Э. Кэрбоз**

Институт металлургии и обогащения, Алматы, Республика Казахстан

**ПОВЫШЕНИЕ СТОЙКОСТИ К РАЗРУШЕНИЮ ПЛОСКИХ ВОДОРОДОПРОНИЦАЕМЫХ**  
**МЕМБРАН И РАЗРАБОТКА МЕМБРАННОГО МОДУЛЯ ДЛЯ ВЫДЕЛЕНИЯ ВОДОРОДА**  
**ИЗ ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ**

Рассмотрена причина разрушения плоских водородопроницаемых мембран на основе тантала и ниобия вследствие дилатации, вызванной растворением водорода. Показано, что проблема повышения периода их функционирования может быть решена двумя путями: использованием ниобиевых и танталовых сплавов, менее склонных к водородной хрупкости; изменением конструкции мембран для более однородного распределения напряжений, возникающих при дилатации. Приведены результаты экспериментов по изучению влияния шага точечной контактной сварки мембран из танталовой и ниобиевой фольги толщиной 40 мкм, сваренной со стальной подложкой, на период их работы и величину водородопроницаемости. Испытанию подвергались композиционные мембраны, на внешнюю поверхность которых после сварки методом магнетронного распыления наносился слой Pd. Измерения проведены при 580 °С, избыточном давлении 500 кПа газовой смеси 1 часть Ar / 5 частей H<sub>2</sub>. Площадь мембран составляла 7,85·10<sup>-3</sup> м<sup>2</sup>. Показано, что обеспечение условий для равномерного распределения напряжений в мембране путем их точечной сварки с подложкой по площади позволяет существенно (до 400 %) повысить период их работы, снижая вероятность возникновения трещин. Описана конструкция укрупненной лабораторной установки для выделения водорода из газовых смесей. Установка создана для одновременной эксплуатации до 10 плоских мембран общей площадью до 0,6 м<sup>2</sup>. Установка спроектирована с учетом возможности демонтажа мембранного модуля с ретортой, что позволит при промышленной эксплуатации подобного оборудования осуществлять замену вышедших из строя модулей без остановки всего производства. Приведены результаты ее испытаний с мембранным модулем общей площадью мембран 0,18 м<sup>2</sup> с использованием композиционных мембран Ta (40 мкм)/Pd (0,155 мкм) и Nb (40 мкм)/Pd (0,39 мкм).

**Ключевые слова:** водородопроницаемая мембрана, дилатация, водородсодержащая газовая смесь, ниобий, тантал, палладий, точечная контактная сварка, лабораторная установка, разрушение, мембранный модуль.

**A.V. Panichkin, A.A. Mamaeva, A.M. Derbissalin, Zh.Zh. Alibekov, A.T. Imbarova, Zh.A. Karboz**

Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation, Almaty, Republic of Kazakhstan

**IMPROVING STABILITY TO THE DESTRUCTION OF FLAT HYDROGEN PERMEABLE**  
**MEMBRANES AND DEVELOPMENT OF A MEMBRANE MODULE FOR HYDROGEN ISOLATION**  
**FROM MIXED GAS**

The reason for the destruction of flat hydrogen permeable membranes based on tantalum and niobium due to dilation caused by the dissolving hydrogen is considered.

It is shown that the problem of increasing the period of their functioning can be solved in two ways: by using alloys of niobium and tantalum less prone to hydrogen embrittlement; reconstruction of membranes for more uniform distribution of stresses generating from dilatation. The results of experiments to study the effect of the step of spot contact welding of tantalum and niobium foil membranes with a thickness of 40 μm, welded to a steel substrate, for the period of their work and the value of hydrogen permeability are presented. Composite membranes were tested, and a Pd layer was deposited on their outer surface after welding by the method of magnetron sputtering. Measurements were carried out at 580 °C, an overpressure of 500 kPa of a mixed gas of 1 part Ar / 5 parts H<sub>2</sub>. The membrane area was 7.85·10<sup>-3</sup> m<sup>2</sup>. It is shown that the provision of conditions for uniform stress distribution in the membrane by resistance spot welding with the substrate over the area allows significantly (up to

400 %) to increase the period of their work, by reducing the probability of cracking. The construction of integrated laboratory installation for the separation of hydrogen from mixed gas is described. The device is designed for simultaneous operation of up to 10 flat membranes with a total area of up to 0.6 m<sup>2</sup>. The device is designed with the possibility of dismantling the membrane module with a retort, which will allow for the industrial operation of such equipment to replace the failed modules without stopping the entire production. The results of its tests were carried out with a membrane module with a total area of 0.18 m<sup>2</sup> of membranes using composite Ta (40 μm) / Pd (0.155 μm) and Nb (40 μm) / Pd (0.39 μm) membranes.

**Keywords:** hydrogen permeable membrane, dilatation, hydrogen-containing mixed gas, niobium, tantalum, palladium, spotcontact welding, laboratory setup, destruction, a membrane module.

## Введение

Водород является ценным энергоносителем, объемы потребления которого с развитием твердо-топливных элементов будут расти [1]. Водородо-проницаемые мембраны на основе неорганических материалов и мембранные реакторы – это быстро развивающаяся технология выделения сверхчистого водорода из газовых водородсодержащих смесей [2–6]. Перспективным является использование мембранного разделения таких газовых смесей в областях промышленности, где их получают в виде побочных продуктов или как основной продукт при паровой конверсии газообразных углеводородов или газификации углей [7]. Совмещение паровой конверсии с мембранным разделением обеспечивает существенный энергетический выигрыш при получении водорода [8]. В то же время этот метод разделения гелия и трития рассматривается как основной способ очистки гелия при работе термоядерных реакторов [9–13]. Между тем такая технология станет привлекательна только тогда, когда мембранные сепараторы смогут достичь необходимого потока водорода, рабочей температуры, стоимости, долговечности и устойчивости к загрязнению. В настоящее время промышленно эксплуатируют мембраны из палладия и палладиевых сплавов, однако они характеризуются крайне высокой стоимостью.

Мембраны из ванадия, ниобия и тантала обладают более высокой проницаемостью по отношению к водороду, чем палладий и палладий-серебряные сплавы [4]. Они намного дешевле и доступнее, чем палладий, обладают хорошими механическими свойствами и легко обрабатываются. Одной из проблем, снижающих долговечность мембран на основе палладия и особенно на основе металлов 5-й группы, является их разрушение вследствие водородной хрупкости и дилатации, приводящей к формированию складок и трещин [14]. Технически указанная проблема решается двумя способами: разработкой сплавов, не склонных к водородной хрупкости [15–20], и разработкой мембран с формой, которая позволяет компенсировать возникающие напряжения и деформации в процессе эксплуатации мембраны и уменьшить ве-

роятность их разрушения вследствие этого явления. В первом случае при легировании тантала, ниобия или ванадия другими элементами снижается водородопроницаемость мембран, что является нежелательным, кроме того, отмечается незначительное влияние легирования на водородную хрупкость [21]. Во втором случае проблемой является изготовление мембран, особенно цилиндрической формы, поскольку получение тонкостенных (<100 мкм) трубок малого диаметра из этих металлов и последующее нанесение на их внешнюю и внутреннюю поверхности каталитических покрытий является крайне сложной технологической задачей. В этом отношении плоские мембраны существенно более технологичны. Увеличение периода их работы и создание на их основе мембранных реакторов является актуальной задачей.

Как показали проведенные ранее исследования [22, 23], основной причиной разрушения плоской мембраны из фольги ниобия или тантала является формирование складок и изломов в местах локализации напряжений. Механизм этого объясняется тем, что при растворении водорода в материале мембраны происходит увеличение ее линейных размеров. Одновременно на поверхность мембраны, обращенную в сторону испытательной камеры, оказывается давление газовой смеси. Это не позволяет увеличивающейся мембране равномерно приподняться над поверхностью газопроницаемой подложки. В результате в мембране хаотически формируются пересекающиеся складки (рис. 1, а). Снижение пластичности, вызванное растворением водорода, приводит к образованию трещины и, как следствие, потере герметичности мембраны. Для предотвращения формирования складок и обеспечения условий для более равномерного распределения напряжений по поверхности мембраны, предотвращения ее скопления относительно подложки она должна быть механически с ней соединена [24]. В этой связи было изучено влияние интервала точечной сварки плоской композиционной мембраны из ниобия и тантала с подложкой на период до разрушения мембраны. С использованием мембран, сваренных с оптимальным шагом был создан мембранный модуль.

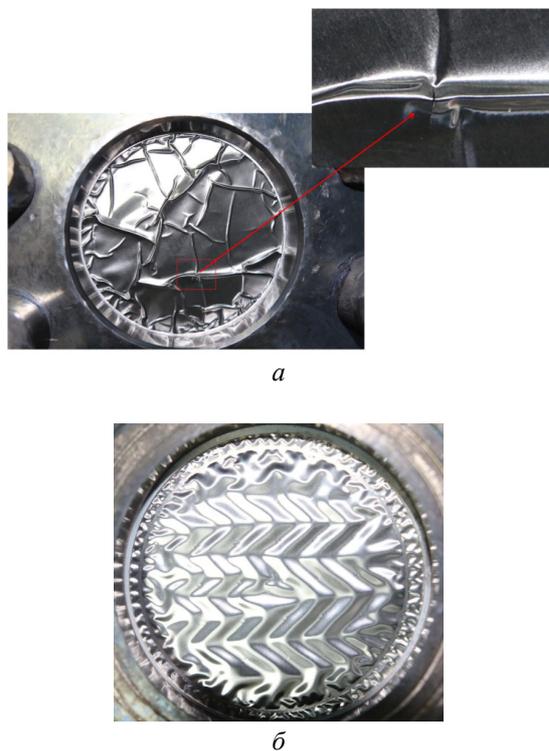


Рис. 1. Формирование складок и трещин при контакте Nb-мембраны с водородом при 580 °С: *а* – мембрана, не сваренная с подложкой; *б* – мембрана, сваренная с подложкой, с шагом 15 мм

### Экспериментальная часть

#### Методика эксперимента

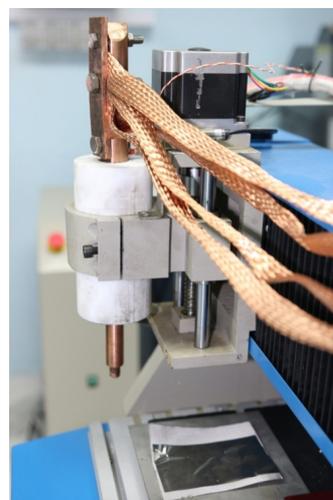
Для сварки мембран с подложкой была собрана установка на базе гравировально-фрезерного ЧПУ станка RJ 6090 и споттера NDC9800 (рис. 2, *а*). Для этого была разработана и создана приставка, которую смонтировали на корпусе шпинделя ЧПУ станка (рис. 2, *б*). Приставка включает корпус и подпружиненный электрод с концевым выключателем, который срабатывает при касании электродом свариваемой поверхности. Электрод и концевой выключатель были подключены к споттеру. Для перемещения электрода была разработана программа с использованием программного пакета ArtCAM 2018. Используемый споттер имел возможность регулирования силы тока и продолжительности импульса контактной сварки, что позволило отработать режим, при котором происходила надежная сварка мембраны с подложкой и при этом не возникало прожогов.

Для получения мембран использовали танталовую (ТВЧ) и ниобиевую (НБШО) холоднокатаную фольгу толщиной 40 мкм в отожженном состоянии, произведенную на АО «Ульбинский металлургический завод». Мембраны сваривали герметично по окружности Ø80 мм с плоской

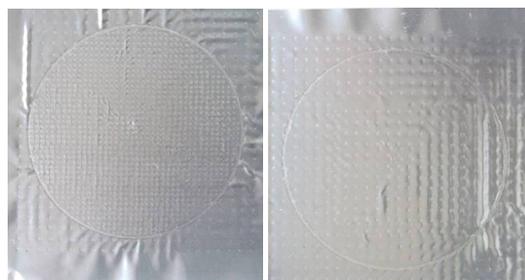
шлифованной подложкой из стали AISI304 толщиной 2 мм. В центре подложки было сделано отверстие Ø2 мм для отвода водорода. Далее мембраны сваривались точно с подложкой в шахматном порядке с шагом между ближайшими точками 2,5; 5, 10, 15, 20 мм (рис. 2, *в*). Диаметр пятна сварки составлял 1–2 мм. Для сравнения использовали мембрану, не сваренную по площади с подложкой.



*а*



*б*



*в*

Рис. 2. Установка для контактной сварки мембран с подложкой: *а* – установка; *б* – приставка; *в* – мембраны из ниобия после сварки

После этих операций внешнюю поверхность мембран подвергали ионной очистке и напылению слоя палладия толщиной 0,39 мкм на Nb и 0,155 мкм на Ta. Для этого использовали установку магнетронного распыления, оснащенную ионным источником APEL-IS-21CELL и магнетроном APEL-MR-IN75. Ионную очистку фольги проводили аргоном при рабочем напряжении 3,00 кВ, токе 25–30 мА, давлении 0,3–0,33 Па, продолжительность составляла 20 мин. Магнетронное распыление мишени из Pd осуществляли в сбалансированном режиме работы магнетрона при рабочем токе 1,0 А, напряжении 560 В, давлении аргона 0,46–0,49 Па, при расстоянии между подложкой и мишенью ~100 мм.

Определение величины водородопроницаемости полученных мембран проводили на установке классической конструкции путем измерения скорости потока водорода, проходящего через герметично закрепленную мембрану [25]. Со стороны мембраны, покрытой металлической пленкой, создавали избыточное давление газовой смеси Ag/H<sub>2</sub> (объемное соотношение 1/5), равное 500±15 кПа, а с другой закачивали аргон до атмосферного давления. В эксперименте использовали дополнительно осушенные ( $T_p \approx -40^\circ\text{C}$ ) аргон 99,95 % и водород марки Б (99,95 %) (ГОСТ 3033–80). Эксперименты проводили при 580±5 °С. Рабочая площадь мембран составляла 78,5 см<sup>2</sup>. Фиксация скорости газового потока осуществлялась при помощи газовых расходомеров РРГ12, рассчитанных на максимальный поток 1 и 3 л/ч. Измерение проводили до прорыва, о чем судили по резкому увеличению потока газа.

### Результаты и обсуждение

Как следует из полученных данных, оптимальный шаг сварки мембраны по площади составляет 5–15 мм (см. ниже). Исследование мембран после испытания показало, что вследствие дилатации на поверхности образуются упорядоченные выпуклости и впадины (см. рис. 1, б). При этом складки не возникают. Формирование трещин в мембране при малом шаге сварки происходит в различных местах соединения с подложкой, а при увеличении шага до 10–20 мм преимущественно в области сварочного шва по периметру. Величина водородопроницаемости мембран с уменьшением

шага точечной сварки снижается, что объясняется уменьшением фактической ее площади. Поскольку в местах контактной сварки мембрана не может пропускать водород.

С целью проведения укрупненных лабораторных испытаний разработанных водородопроницаемых мембран была собрана установка для выделения водорода из газовых смесей. Проектирование конструкции установки осуществляли исходя из принципов эксплуатации мембранных модулей в промышленности. В частности, предлагается концепция, согласно которой мембранный модуль для осуществления ревизии и замены мембран, вышедших из строя, должен легко отключаться от общей системы без ее останковки. При этом вместе с ретортой модуль может быть транспортирован на предприятие или в цех, которые занимаются их обслуживанием. Это обеспечивает возможность проверки узлов и испытания реторты при повышенных значениях давления. Таким образом, потребитель мембранных модулей будет избавлен от этих операций, что позволит сократить расходы на обслуживающий персонал и повысить надежность оборудования. Проект разработанной установки представлен на рис. 3.

Очевидно, что в промышленных условиях для нагрева реторты с мембранным модулем будет использовано тепло от сгорания дешевого газового топлива. Однако в лабораторных условиях это трудно реализовать. В разработанной установке в качестве источника тепла использована специально разработанная шахтная печь электросопротивления. Она создана таким образом, чтобы максимально обеспечить изотермические условия работы мембранного модуля. Для этого нагрев в ней обеспечивают 6 рядов нагревательных элементов, расположенных по периметру реторты. В верхней стенке печи предусмотрено отверстие диаметром 230 мм для установки реторты мембранного модуля. Печь оснащена ПИД-регулятором ОВЕН ТРМ-210 и хромель-алюмелевой термопарой для автоматического поддержания температуры. Электропитание печи рассчитано на использование трехфазной электросети 380 В, мощность – 12 кВт, что позволяет разогревать в ней реторту до значений температуры 500–600 °С за 2 ч.

Влияние шага точечной сварки на период до разрушения и водородопроницаемость мембран из ниобия и тантала

Шаг сварки по площади мембраны, мм	Без сварки	2,5	5	10	15	20
Период работы Nb мембраны до разрушения, ч	0,07	0,40	0,57	0,88	0,51	0,32
Водородопроницаемость, $\times 10^{-7}$ моль/с·м·Па <sup>0,5</sup>	3,87	2,9	3,4	3,7	3,8	3,83
Период работы Ta мембраны до разрушения, ч	0,1	0,17	0,49	0,64	0,61	0,30
Водородопроницаемость, $\times 10^{-7}$ моль/с·м·Па <sup>0,5</sup>	1,45	1,1	1,25	1,39	1,42	1,43

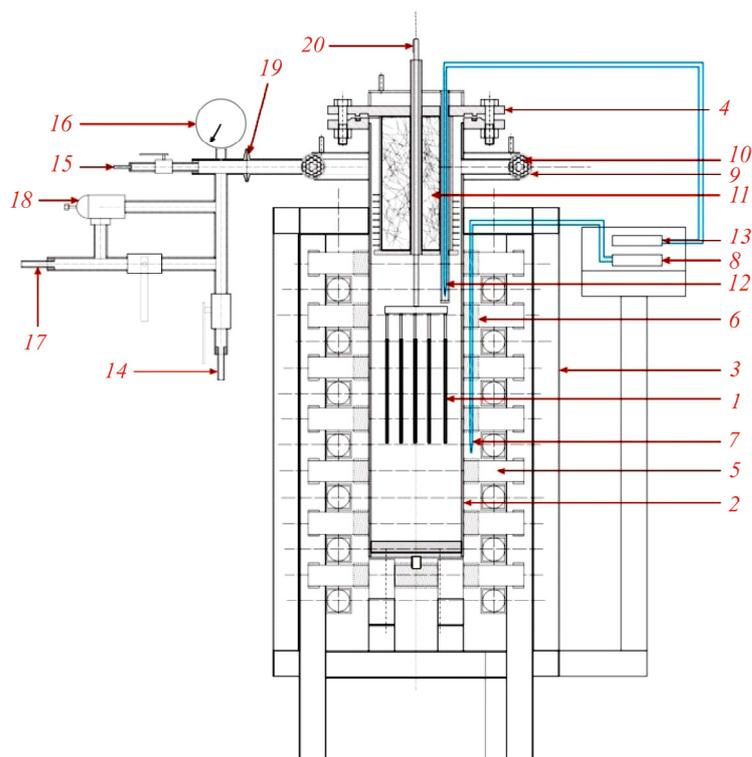


Рис. 3. Проект укрупненной установки для выделения водорода из газовых смесей, полученных при паровой конверсии газообразных углеводородов, с использованием плоских водородопроницаемых мембран: 1 – водородопроницаемые мембраны; 2 – реторта мембранного модуля; 3 – шахтная печь; 4 – водоохлаждаемая крышка реторты; 5 – алундовый изолятор; 6 – нагревательный элемент; 7 – термопара печи; 8 – терморегулятор ОВЕН ТРМ-210; 9 – водоохлаждаемая система охлаждения газов; 10 – трубки из материала с высокой теплоемкостью; 11 – волокнистый теплоизоляционный материал; 12 – контрольная термопара; 13 – электронный измеритель температуры ОВЕН ТРМ-200; 14 – патрубок для вакуумирования реторты; 15 – патрубок для напуска водородсодержащей газовой смеси; 16 – манометр; 17 – патрубок для стравливания избыточного давления газов из реторты; 18 – защитный клапан; 19 – муфта clamp; 20 – патрубок выхода очищенного водорода

Мембранный модуль представляет собой 10 мембран размером 100×180 мм, приваренных к подложкам из стали AISI 304 размером 140×220 мм толщиной 2 мм. Подложки сварены по две. Таким образом, одна секция имеет две мембраны, по одной с каждой стороны. С торцевой поверхности секции выходит патрубок, приваренный к магистральному трубопроводу, выходящему через уплотнитель в крышке реторты.

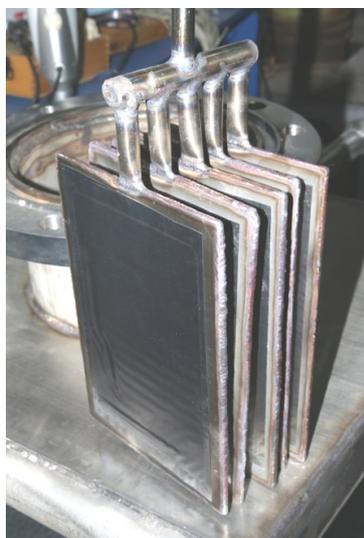
Реторта для размещения мембранного модуля выполнена из бесшовной толстостенной трубы Ø220 мм и длиной 950 мм, изготовленной из стали AISI 321. Герметичное соединение с водоохлаждаемой крышкой реализовано посредством фланцевого соединения с уплотнением из силиконовой резины. Горловина реторты имеет водяное охлаждение, объединенное с системой охлаждения выходящих газов. Система охлаждения необходима для того, чтобы при стравливании избыточного давления водородсодержащей газовой смеси из разогретой реторты на выходе из нее газ был охлажден до температуры, близкой к комнатной. Это не-

обходимо при демонтаже мембранного модуля с ретортой и при срабатывании защитного клапана в случае превышения давления заданной величины. Для быстрого охлаждения газов система имеет развитую сеть труб Ø32 и 60 мм из стали AISI 321, внутренняя полость которых содержит большое количество медных труб Ø10 мм. Сеть труб размещена внутри плоской водоохлаждаемой камеры. Ввиду высокой теплоемкости медных труб разогретый газ, проходя через них, охлаждается, а тепло посредством теплопередачи через стенку стальных труб отводится водой. С внутренней стороны для уменьшения теплообмена между разогретой водородсодержащей газовой смесью и водоохлаждаемыми крышкой и горловиной реторты создан теплоизоляционный экран. Реторта и крышка рассчитаны на эксплуатацию при давлении до 1 МПа, при значениях температуры до 650 °С. В ней может быть размещен мембранный модуль с длиной мембран до 600 мм.

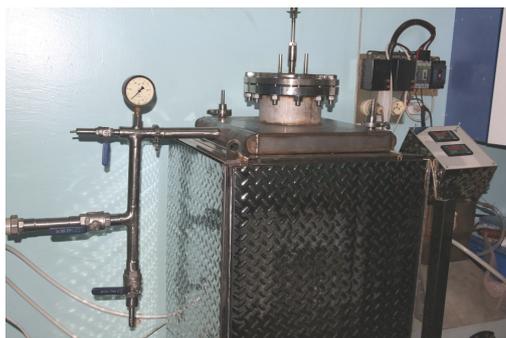
Контроль температуры внутри реторты осуществляется при помощи хромель-алюмелевой

термопары, размещенной над мембранным модулем и присоединенной к измерителю температуры ОВЕН ТРМ-200. Для вакуумирования реторты, напуска водородсодержащей газовой смеси и для отвода стравливаемого избыточного давления предусмотрены соответствующие патрубки с вентилями в газовой системе, подключаемой к патрубку, выходящему из системы охлаждения газов. Для быстрого отсоединения газовой системы предусмотрена муфта clamp.

Общий вид мембранного модуля представлен на рис. 4, а. Разработанная укрупненная установка для выделения водорода из газовых водородосодержащих смесей с использованием плоских водородопроницаемых мембран показана на рис. 4, б.



а



б

Рис. 4. Укрупненная лабораторная установка для выделения водорода из газовых смесей: а – мембранный модуль; б – укрупненная лабораторная установка

На разработанной установке проведены укрупненные лабораторные испытания мембранных модулей на основе плоских композиционных мембран Ta (40 мкм)/Pd (0,155 мкм) и Nb (40 мкм)/Pd (0,39 мкм). Испытания проводились в условиях, аналогичных описанным для одиночных мембран.

Мембраны были сварены с подложкой с шагом 15 мм. Установлено, что период работы мембранного модуля из водородопроницаемых мембран на основе тантала составляет 0,57 ч, а на основе ниобия 0,44 ч. При этом скорость выделения водорода составила в первом случае 74,1 л/ч, а во втором 183,6 л/ч.

Таким образом, обеспечение условий для равномерного распределения напряжений в мембране путем их точечной сварки с подложкой по площади позволяет существенно повысить период их работы, снижая вероятность возникновения трещин. Между тем период работы мембран в форме трубы существенно больше и составляет десятки часов. Это делает необходимым дальнейшее совершенствование конструкции плоских водородопроницаемых мембран, ввиду большей экономической привлекательности их производства.

Предложена концепция построения мембранных реакторов, характеризующихся простотой, безопасностью и возможностью несложного демонтажа. На предприятии, использующем десятки или сотни таких модулей, такая конструкция позволит осуществлять обслуживание и заменять вышедшие из строя модули, не останавливая производство водорода.

*Работа выполнена в рамках гранта МОН РК № AP05130992 «Повышение ресурса работы композиционных водородопроницаемых мембран на основе ниобия и тантала». При выполнении работы использовалось оборудование Национальной научной лаборатории коллективного пользования по приоритетному направлению «Технологии для углеводородного и горно-металлургического секторов и связанных с ними сервисных отраслей».*

#### Список литературы

1. The role of Hydrogen and Fuel Cells in the Future Energy Systems / A. Abad, I. Staffell, P. Dodds, D. Scamman, N. Mac Dowell, K. Ward, P. Agnolucci, L. Papageorgiou, N. Shah, P. Ekins. – 2017. – 190 p. DOI: 10.13140/RG.2.2.28890.13762
2. Hydrogen-permeable metal membranes for high-temperature gas separations / D.J. Edlund, D. Friesen, B. Johnson, W. Pledger // Gas Separation & Purification. – 1994. – Vol. 8. – P. 131–136.
3. Mundschau M.V. Hydrogen separation using dense composite membranes. Part 1. Fundamentals / eds. A.C. Bose // Inorganic Membranes for Energy and Environmental Applications. – New York: Springer, 2009. – P. 125–153. DOI: 10/1007/978-0-387-34526-0\_8
4. Dolan M.D. Non-Pd BCC alloy membranes for industrial hydrogen separation // J. of Membrane Sci. – 2010. – Vol. 362. – P. 12–28. DOI: 10.1016/j.memsci.2010.06.068
5. Developments in the Ni–Nb–Zr amorphous alloy membranes / S. Sarker, D. Chandra, M. Hirsche [et al.] //

- Appl Phys. A. Materials Sci. Proc. – 2016. – P. 122–168. DOI: 10.1007/s00339-016-9650-5
6. Characterization of a Pd/Ta composite membrane and its application to a large scale high-purity hydrogen separation from mixed gas / S.J. Young, H.L. Chan, Y.K. Seong, Y.L. Kwan, W.Y. Chang, W.N. Suk, H. Jonghee // *Separation and Purification Techn.* – 2018. – Vol. 200. – P. 221–229. DOI: 10.1016/j.seppur.2017.12.019
7. Hydrogen separation using dense composite membranes / D.H. Anderson, C.R. Evenson, T.H. Harkins, D.S. Jack, R. Mackay, M.V. Mundschau // *Inorganic Membranes for Energy and Environmental Applications* / ed. by A.C. Bose. – New York: Springer, 2009. – P. 155–171. DOI: 10.1007/978-0-387-34526-0\_9
8. Iulianelli A., Basile A. Advances on inorganic membrane reactors for production of hydrogen // *Encyclopedia of Sustainability Sci. and Techn.* / ed. by R. Meyers. – New York: Springer, 2018. – P. 1–11. DOI: 10.1007/978-1-4939-2493-6
9. Membrane pumping technology for helium and hydrogen isotope separation in the fusion reactor / V.I. Pistunovich, A. Pigarov, A. Busnyuk, A. Livshits, M. Notkin, A. Samartsev, K.L. Borisenko, V.V. Darmogray, B.D. Ershov, L.V. Filippova, B.G. Mudugin, V.N. Odintsov, G.L. Saksagansky, D.V. Serebrennikov // *Fusion Eng. and Design.* – 1995. – Vol. 28. – P. 336–340. DOI: 10.1016/0920-3796(95)90057-8
10. Wu C.H. Hydrogen recycling at plasma facing materials softcover. – 1st ed. – Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 2000. – 363 p.
11. Novel catalyst for the WGS reaction in a Pd-membrane reactor / C.A. Cornaglia, S. Tosti, M. Sansovini, J. Munera, E.A. Lombardo // *Appl. Catalysis A: General.* – 2013. – Vol. 462–463. – P. 278–286. DOI: 10.1016/j.apcata.2013.04.019
12. Catalytic membrane reactor for tritium extraction system from He purge / A. Santucci, M. Incelli, M. Sansovini, S. Tosti // *Fusion Engineering and Design.* – 2016. – Vol. 109–111. – P. 642–646. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2016.02.028
13. Tosti S., Pozio A. Membrane processes for the nuclear fusion fuel cycle // *Membranes.* – 2018. – Vol. 8. – P. 96. DOI: 10.3390/membranes8040096
14. Buxbaum R.E., Marker T.L. Hydrogen transport through non-porous membranes of palladium coated niobium, tantalum and vanadium // *J. of Membrane Sci.* – 1993. – Vol. 85. – P. 29–38.
15. Nishimura C., Komaki M., Amano M. Hydrogen permeation characteristics of vanadium nickel alloys // *Materials Transactions / The Japan Institute of Metals.* – 1991. – Vol. 32, no. 5. – P. 501–507.
16. Amano M., Komaki M., Nishimura C. Hydrogen permeation characteristics of palladium-plated V–Ni alloy membranes // *J. of the Less-Common Metals.* – 1991. – Vol. 172–174. – P. 727–731.
17. V–Ni alloy membranes for hydrogen purification / C. Nishimura, M. Komaki, S. Hwang, M. Amano // *J. of the Less Common Metals.* – 2002. – Vol. 330–332. – P. 902–906.
18. Preparation of palladium-coated V and V–15Ni membranes for hydrogen purification by electroless plating technique / T. Ozaki, Yi Zhang, M. Komaki, C. Nishimura // *Int. J. of Hydrogen Energy.* – 2003. – Vol. 28. – P. 297–302. DOI: 10.1016/S0360-3199(02)00065-4
19. Терещенко Ф., Орехова Н.В., Ермилова М.М. Металлсодержащие мембранные реакторы // *Мембраны. Сер. Критические технологии.* – 2007. – № 1(33). – С. 4–20.
20. Hydrogen permeable Nb-based amorphous alloys with high thermal stability / H.Y. Ding, W. Zhang, S.I. Yamaura, K.F. Yao // *Materials Transactions.* – 2013. – Vol. 54, no. 8. – P. 1330–1334. DOI: 10.2320/matertrans.MF201310
21. Multilayer metal membranes for hydrogen separation / T.S. Moss, N.M. Peachey, R.C. Show, R.C. Dye // *Int. J. of Hydrogen Energy.* – 1998. – Vol. 23, no. 2. – P. 99–106. DOI: 10.1016/S0360-3199(97)00030-X
22. Влияние состава наносимых на поверхность пленок твердых растворов на характеристики водородопроницаемых мембран из ниобия и тантала / А.В. Паничкин, А.А. Мамаева, А.М. Дербисалин, А.К. Кенжегулов, А.Т. Имбарова // *Комплексное использование минеральных ресурсов.* – 2018. – № 4. – С. 130–139.
23. Hydrogen permeable membranes based on niobium foils coated with layer of tungsten and molybdenum in niobium solid solution characteristics research / A.V. Panichkin, B.K. Kenzhaliyev, A.M. Derbisalin, A.A. Mamayeva, D.M. Dzhumabekov // *2nd Int. Symp. on Mechan. Eng. and Material Sci., Suzhou, China, November 17–19, 2017.* – 2017. – Vol. 134. – P. 38–41. DOI: 10.2991/ismems-17.2018.9
24. Способ получения водородопроницаемой плоской мембраны: пат. РК (19)KZ (13) В(11) 33507 / Паничкин А.В., Дербисалин А.М., Джумабеков Д.М. – № 2017/1080.1; заявл. 22.11.2017; опубл. 04.03.2019.
25. Improvement of methodology and equipment for determination of hydrogen performance of thin flat metallic membranes / A.V. Panichkin, A.M. Derbisalin, A.T. Imbarova, D.M. Dzhumabekov, Zh.Zh. Alibekov // *Complex use of Mineral Resources.* – 2017. – No. 2. – P. 46–53. DOI: 10.31643/2018/166445

## References

1. Abad A., Staffell I., Dodds P., Scamman D., Mac Dowell N., Ward K., Agnolucci P., Papageorgiou L., Shah N., Ekins P. The role of Hydrogen and Fuel Cells in the Future Energy Systems, 2017, pp. 190, DOI: 10.13140/RG.2.2.28890.13762
2. Edlund D.J., Friesen D., Johnson B., Pledger W. Hydrogen-permeable metal membranes for high-temperature gas separations. *Gas Separation & Purification.* 1994, vol. 8, pp. 131–136.
3. Mundschau M.V. Hydrogen Separation Using Dense Composite Membranes. *Part 1 Fundamentals. In: Bose A.C. (eds) [Inorganic Membranes for Energy and Environmental Applications].* Springer, New York, 2009.
4. Dolan M.D. Non-Pd BCC alloy membranes for industrial hydrogen separation. *Journal of Membrane Science.* 2010, vol. 362, pp. 12–28, DOI: 10.1016/j.memsci.2010.06.068
5. Sarker S., Chandra D., Hirsche M. and over. Developments in the Ni–Nb–Zr amorphous alloy membranes. *Applied physics A. Materials Science Processing.* 2016, pp. 122–168. DOI: 10.1007/s00339-016-9650-5

6. Young S.J., Chan H.L., Seong Y.K., Kwan Y.L., Chang W.Y., SukW.N., Jonghee H. Characterization of a Pd/Ta composite membrane and its application to a large scale high-purity hydrogen separation from mixed gas. *Separation and Purification Technology*, 2018. vol. 200, pp. 221–229, DOI: 10.1016/j.seppur.2017.12.019
7. Anderson D.H., Evenson C.R., Harkins T.H., Jack D.S., Mackay R., Mundschau M.V. Hydrogen Separation Using Dense Composite Membranes. In: *Bose A.C. (eds) Inorganic Membranes for Energy and Environmental Applications*. Springer, New York, 2009, pp. 155–171, DOI: 10.1007/978-0-387-34526-0\_9
8. Iulianelli A., Basile A. Advances on Inorganic Membrane Reactors for Production of Hydrogen. In: *Meyers R. (eds) Encyclopedia of Sustainability Science and Technology*, Springer, New York, 2018, DOI: 10.1007/978-1-4939-2493-6
9. Pistunovich V.I., Pigarov A., Busnyuk A., Livshits A., Notkin M., Samartsev A., Borisenko K.L., Darmogray V.V., Ershov B.D., Filippova L.V., Mudugin B.G., Odintsov V.N., Saksagansky G.L., Serebrennikov D.V. Membrane pumping technology for helium and hydrogen isotope separation in the fusion reactor. *Fusion Engineering and Design*. 1995, vol. 28, pp. 336–340, DOI: 10.1016/0920-3796(95)90057-8
10. Hydrogen Recycling at Plasma Facing Materials Softcover reprint of the original 1st ed. 2000, p. 363.
11. Cornaglia C.A., Tosti S., Sansovini M., Munera J., Lombardo E.A. Novel catalyst for the WGS reaction in a Pd-membrane reactor, 2013, vol. 462–463, pp. 278–286, DOI: 10.1016/j.apcata.2013.04.019
12. Santucci A.; Incelli M.; Sansovini M.; Tosti S. Catalytic membrane reactor for tritium extraction system from He purge. *Fusion Engineering and Design*, 2016, vol. 109–111, pp. 642–646. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2016.02.028
13. Tosti S., Pozio A. Membrane Processes for the Nuclear Fusion Fuel Cycle. *Membranes*, 2018, vol. 8, p. 96, DOI: 10.3390/membranes8040096
14. Buxbaum R.E., Marker T.L. Hydrogen transport through non-porous membranes of palladium coated niobium, tantalum and vanadium. *Journal of Membrane Science*, 1993, vol. 85, pp. 29–38.
15. Nishimura C., Komaki M., Amano M. Hydrogen Permeation Characteristics of Vanadium Nickel Alloys. *Materials Transactions. The Japan Institute of Metals*, 1991, vol. 32, no. 5, pp. 501–507.
16. Amano M., Komaki M., Nishimura C. Hydrogen permeation characteristics of palladium-plated V-Ni alloy membranes. *Journal of the Less-Common Metals*, 1991, vol. 172–174, pp. 727–731.
17. Nishimura C., Komaki M., Hwang S., Amano M. V-Ni alloy membranes for hydrogen purification. *Journal of the Less Common Metals*, 2002, vol. 330–332, pp. 902–906.
18. Ozaki T., Zhang Yi, Komaki M., Nishimura C. Preparation of palladium-coated V and V–15Ni membranes for hydrogen purification by electroless plating technique. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2003, vol. 28, pp. 297–302, DOI: 10.1016/S0360-3199(02)00065-4
19. Tereshchenko F., Orekhova N.V., Ermilova M.M. Metallsoderzhashchiye membrannyye reaktory [Metal-containing membrane reactors]. *Membrany. Seriya. Kriticheskoye tekhnologii*. 2007. no. 1(33). pp. 4–20.
20. Ding H. Y., Zhang W., Yamaura S.I., Yao K.F. Hydrogen permeable Nb-based Amorphous Alloys with High Thermal Stability. *Materials Transactions*, 2013. vol. 54, no. 8, pp. 1330–1334. DOI: 10.2320/matertrans.MF201310
21. Moss T.S., Peachey N.M., Show R.C., Dye R.C. Multilayer metal membranes for hydrogen separation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 1998, vol. 23, no. 2, pp. 99–106. DOI: 10.1016/S0360-3199(97)00030-X
22. Panichkin A.V., Mamayeva A.A., Derbissalin A.M., KENZHEGULOV A.K., IMBAROVA A.T. Vliyaniye sostava nanosimykha na poverkhnost plenok tverdykh rastvorov na kharakteristiki vodorodopronitsayemykh membran iz niobiya i tantala [Effect of the composition of solid solutions applied to the surface of the films on the characteristics of hydrogen-permeable niobium and tantalum membranes]. *Kompleksnoye ispolzovaniye mineralnykh resursov*, 2018. no. 4. pp. 130–139.
23. Panichkin A.V., KENZHALIYEV B.K., DERBISALIN A.M., MAMAYEVA A.A., DZHUMABEKOV D.M. Hydrogen permeable membranes based on niobium foils coated with layer of tungsten and molybdenum in niobium solid solution characteristics research. *2nd International Symposium on Mechanical Engineering and Material Science*, 2017, vol. 134, pp. 38–41. DOI: 10.2991/ismems-17.2018.9
24. Panichkin A.V., Derbissalin A.M., DZHUMABEKOV D.M. Sposob polucheniya vodorodopronitsayemoy ploskoy membran [Method of obtaining a hydrogen-permeable flat membrane]. Patent RK (19) KZ (13) B (11) 33507.
25. Panichkin A.V., Derbissalin A.M., Imbarova A.T., DZHUMABEKOV D.M., ALIBEKOV ZH.ZH. Improvement of methodology and equipment for determination of hydrogen performance of thin flat metallic membranes. *Complex use of mineral resources*, 2017, no. 2, pp. 46–53, DOI: 10.31643/2018/166445

Получено 13.04.19

Опубликовано 26.09.19

#### Сведения об авторах

**Паничкин Александр Владимирович** (Алматы, Республика Казахстан) – кандидат технических наук, старший научный сотрудник, заведующий Национальной научной лабораторией Института металлургии и обогащения; e-mail: abpanichkin@mail.ru.

**Мамаева Аксауле Алиповна** (Алматы, Республика Казахстан) – кандидат физико-математических наук, завлабораторией материаловедения Института металлургии и обогащения; e-mail: ak78@mail.ru.

**Дербисалин Адильбек Муратович** (Алматы, Республика Казахстан) – докторант, младший научный сотрудник Института металлургии и обогащения; e-mail: aderbissalin@gmail.com.

**Алибеков Жасулан Жанузакович** (Алматы, Республика Казахстан) – техник Института металлургии и обогащения; e-mail: zhas\_86@mail.ru.

**Имбарова Акерке Талгатовна** (Алматы, Республика Казахстан) – научный сотрудник Института металлургии и обогащения; e-mail: akerke\_345@mail.ru.

**Кәрбоз Жанар Адильбекқызы** (Алматы, Республика Казахстан) – докторант, инженер Института металлургии и обогащения; e-mail: k.zhanar.a@mail.ru.

#### About the authors

**Aleksandr V. Panichkin** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Ph.D. in Technical Sciences, Leading Researcher, Head of the National Laboratory of Collective Use, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: abpanichkin@mail.ru.

**Aksaule A. Mamaeva** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Ph.D. in Physical and Mathematical Sciences, Head of Material Science, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: ak78@mail.ru.

**Adilbek M. Derbissalin** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Ph.D. Students, Junior Researcher, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: aderbissalin@gmail.com.

**Zhasulan Zh. Alibekov** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Technician, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: zhas\_86@mail.ru.

**Akerke T. Imbarova** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Researcher, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: akerke\_345@mail.ru.

**Zhanar A. Karboz** (Almaty, Republic of Kazakhstan) – Ph.D. Students, Engineer, Institute of Metallurgy and Ore Beneficiation; e-mail: k.zhanar.a@mail.ru.