

วณิชฐา กริตสาริกัน : การกู้คืนนีโอดีเมียมจากของเสียในกระบวนการผลิตแม่เหล็ก  
นีโอดีเมียม-เหล็ก-โบรอน ด้วยกระบวนการโลหวิทยาไฮบริด (RECOVERY OF NEODYMIUM  
FROM MANUFACTURING NEODYMIUM - IRON - BORON MAGNET WASTES VIA  
HYBRID – METALLURGICAL PROCESS)

อาจารย์ที่ปรึกษา : ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร. ฐาปณีย์ พัชรวิชญ์, 147 หน้า

คำสำคัญ : การรีไซเคิล/กระบวนการโลหวิทยาไฮบริด/แม่เหล็กนีโอดีเมียม-เหล็ก-โบรอน/  
นีโอดีเมียมออกไซด์

งานวิจัยนี้ศึกษาการกู้คืนนีโอดีเมียมจากของเสียในกระบวนการผลิตแม่เหล็กนีโอดีเมียม-เหล็ก-โบรอน 2 ชนิด คือ ของเสียชนิดก่อนจากกระบวนการเผาผนึกและของเสียชนิดผงจากกระบวนการผลิตผงแม่เหล็กด้วยกระบวนการโลหวิทยาไฮบริด (โลหวิทยาสารละลายและโลหวิทยาความร้อน) การทดลองแบ่งออกเป็น 2 แนวทาง คือ แนวทางที่ 1 การชะละลายทั้งหมด และแนวทางที่ 2 คือ การย่างแร่แบบออกซิเดทีฟ-การเลือกชะละลาย โดยแนวทางที่ 1 ประกอบไปด้วยการบดลดขนาด การชะละลายด้วยกรดซัลฟิวริกเข้มข้น 2.5 โมลาร์ เวลา 24 ชั่วโมง การย่างแร่ การตกตะกอนด้วยกรดออกซาลิกเข้มข้น 1 โมลาร์ และสุดท้ายการเผาแคลซิเนชันที่อุณหภูมิ 1000 องศาเซลเซียส เวลา 2 ชั่วโมง ส่วนแนวทางที่ 2 เพิ่มขั้นตอนการย่างแร่แบบออกซิเดทีฟ ก่อนการชะละลายด้วยกรดซัลฟิวริกเช่นเดียวกับแนวทางที่ 1 เพื่อศึกษาผลกระทบของการย่างแร่แบบออกซิเดทีฟต่อประสิทธิภาพการรีไซเคิล ในส่วนของการรีไซเคิลของเสียแม่เหล็กชนิดก่อนพบว่าเริ่มต้นมีองค์ประกอบเป็นเหล็กร้อยละ 59.81 นีโอดีเมียมร้อยละ 23.97 เพอร์ซิโอดีเมียมร้อยละ 7.12 และโบรอนร้อยละ 0.26.โดยน้ำหนัก เมื่อผ่านการรีไซเคิลในแนวทางที่ 1 การชะละลายทั้งหมดด้วยกรดซัลฟิวริกจะทำให้ได้สารประกอบซัลเฟตของนีโอดีเมียม โลหะหายากและเหล็ก ส่วนการย่างแร่ที่อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส เวลา 2 ชั่วโมง ในขั้นตอนถัดมาจะเปลี่ยนเหล็กซัลเฟตให้อยู่ในรูปของออกไซด์และสามารถแยกออกจากสารประกอบซัลเฟตของนีโอดีเมียมและโลหะหายากเมื่อผ่านการชะละลายด้วยน้ำ จากนั้นการตกตะกอนด้วยกรดออกซาลิกทำให้ได้สารประกอบนีโอดีเมียมออกซาลेटและเมื่อเผาแคลซิเนชันจะได้ผลิตภัณฑ์สุดท้ายเป็นนีโอดีเมียมออกไซด์ที่ร้อยละการกู้คืน 31.62 มีองค์ประกอบนีโอดีเมียมร้อยละ 63.16 เพอร์ซิโอดีเมียมร้อยละ 21.32 และโคบอลต์ร้อยละ 0.02 โดยน้ำหนัก ส่วนแนวทางที่ 2 พบว่าการย่างแร่แบบออกซิเดทีฟสามารถทำให้เกิดการเลือกชะละลายด้วยกรดซัลฟิวริกที่ดีกว่าเมื่อเปรียบเทียบกับแนวทางที่ 1 การชะละลายทั้งหมด เนื่องจากการย่างแร่แบบออกซิเดทีฟที่อุณหภูมิ 600 องศาเซลเซียส เวลา 1 ชั่วโมง ทำให้เกิดเฟสของเหล็กออกไซด์ ( $Fe_2O_3$  และ  $Fe_3O_4$ ) และลดการเกิดนีโอดีเมียมเหล็กออกไซด์ ( $NdFeO_3$ ) ซึ่งถูกชะละลายได้ยาก จึงส่งผลให้

ได้การกักเก็บสูงกว่าที่ร้อยละ 76.03 ได้ผลิตภัณฑ์สุดท้ายเป็นนีโอดีเมียมออกไซด์ที่ทำให้การกักเก็บสูงกว่า โดยผลิตภัณฑ์ที่ได้มีองค์ประกอบของนีโอดีเมียมร้อยละ 65.09 เพอร์ซิโอดีเมียม 19.83 และโคบอลต์ ร้อยละ 0.03 โดยน้ำหนัก นอกจากนี้ เมื่อพิจารณาในส่วนของสารรีไซเคิลของเสียแม่เหล็กชนิดผงโดย เริ่มต้นมีองค์ประกอบของเหล็กร้อยละ 66.33 นีโอดีเมียมร้อยละ 21.66 และเพอร์ซิโอดีเมียมร้อยละ 4.76 โดยน้ำหนัก เมื่อเข้าสู่การรีไซเคิลในแนวทางที่ 1 คือ การชะละลายทั้งหมดด้วยกรดซัลฟิวริก ตามด้วยการย่างแร่ที่ 750 องศาเซลเซียส 2 ชั่วโมง ก่อนตกตะกอนด้วยกรดออกซาลิกแล้วเผาแคลซิ เนชัน ทำให้ได้ผลิตภัณฑ์สุดท้ายเป็นนีโอดีเมียมออกไซด์ที่ร้อยละการกักเก็บ 59.36 มีองค์ประกอบของ นีโอดีเมียมร้อยละ 61.23 เพอร์ซิโอดีเมียมร้อยละ 13.83 และโคบอลต์ร้อยละ 0.04 โดยน้ำหนัก ส่วน แนวทางที่ 2 พบว่าการย่างแร่แบบออกซิเดทีฟสามารถเพิ่มความสามารถในการเลือกชะละลายด้วย กรดซัลฟิวริกได้ดีเหมือนกับกรณีของเสียแม่เหล็กชนิดก้อน ทำให้ได้นีโอดีเมียมออกไซด์เป็นผลิตภัณฑ์ สุดท้ายที่ร้อยละการกักเก็บ 75.46 ซึ่งผลิตภัณฑ์มีองค์ประกอบของนีโอดีเมียมร้อยละ 68.11 เพอร์ซิโอดีเมียมร้อยละ 14.93 และโคบอลต์ร้อยละ 0.02 โดยน้ำหนัก ดังนั้น จากการรีไซเคิลของเสีย แม่เหล็กนีโอดีเมียม-เหล็ก-โบรอนทั้งชนิดก้อนและชนิดผงที่เกิดขึ้นในกระบวนการผลิตด้วย กระบวนการโลหวิทยาไฮบริดสามารถได้ผลิตภัณฑ์สุดท้ายเป็นนีโอดีเมียมออกไซด์ที่ต้องการ ซึ่งการย่าง แร่แบบออกซิเดทีฟทำให้เกิดการเลือกชะละลายได้ดี เมื่อเปรียบเทียบประสิทธิภาพการชะละลายของ พบว่าแนวทางที่ 2 ให้ร้อยละการชะละลายสูงกว่า คือ 92.11 และ 95.73 ของเสียทั้งชนิดก้อนและผง ส่วนแนวทางที่ 1 ให้ร้อยละการชะละลายเท่ากับ 66.00 และ 89.00 ตามลำดับ ส่งผลให้ประสิทธิภาพ การรีไซเคิลสูงขึ้นเมื่อพิจารณาจากร้อยละการกักเก็บ

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชา วิศวกรรมโลหการ  
ปีการศึกษา 2564

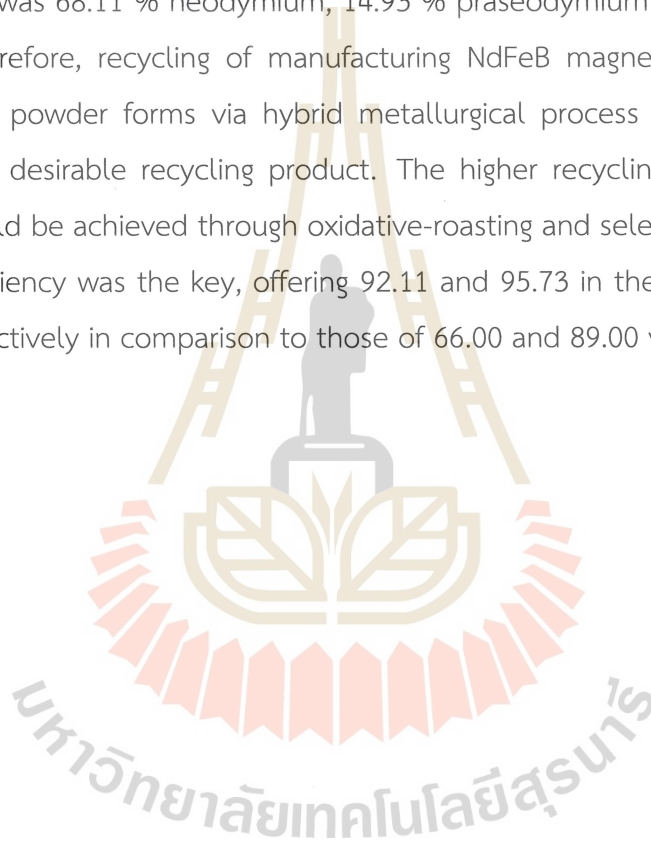
ลายมือชื่อนักศึกษา ..... วาณิชชา  
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา ..... ชัยวัฒน์  
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม ..... สอน คำต่อ

WORANITTHA KRITSARIKAN : RECOVERY OF NEODYMIUM FROM MANUFACTURING NEODYMIUM - IRON - BORON MAGNET WASTES VIA HYBRID – METALLURGICAL PROCESS. THESIS ADVISOR : ASST. PROF. TAPANY PATCHARAWIT, Ph. D., 147 PP.

Keyword : hybrid metallurgical process/NdFeB magnet/neodymium oxide/recycling

This research studied the recovery of manufacturing NdFeB magnet wastes in the sintered solid and powder forms via hybrid (pyro-hydro) metallurgical process. Experimental consisted of two recycling routes, namely 1) route I: whole leaching and 2) route II: oxidative-roasting and selective-leaching. Route I: whole leaching process, started with sulfuric acid leaching at 2.5 M for 24 hours, followed by roasting, precipitation using 1 M oxalic acid and finally calcination at 1000 °C for 2 hours. Route II: oxidative-roasting and selective-leaching included oxidative roasting before proceeding to the next step of sulfuric leaching in a similar manner to that of the whole leaching to study the influence of oxidative roasting on recycling efficiency. For recycling of sintered magnet waste, as-received composition consisted of 59.81 % iron, 23.97 % neodymium, 7.12 % praseodymium and 0.26 % boron by weight. Through route 1, whole leaching using sulfuric acid gave sulfates of neodymium, rare earth and iron. Roasting at 800 °C for 2 hours in the succeeding step resulted in conversions of iron sulfates to iron oxides, which can be separated out during water leaching step, while neodymium and rare earth sulfates remained in the solution. Following the precipitation by oxalic acid to give neodymium oxalates, calcination finally provided neodymium oxide as the final recycling product, having 31.62 % recovery. The product contained 63.16 % neodymium, 21.32 % praseodymium, and 0.02 % cobalt by weight. By means of route II: oxidative-roasting and selective-leaching, it was found that oxidative roasting at 600 °C for 2 hours resulted in the formation of iron oxides ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) with reduced amount of neodymium iron oxide ( $\text{NdFeO}_3$ ), which were not readily leached. Consequently, higher recovery of 76.03 % was achieved in comparison to that obtained via route I. The recycling product contained 65.09 % neodymium, 19.83 % praseodymium and 0.03 % cobalt by weight. Furthermore, by considering the recycling of magnet waste in the powder form, its as-received composition was 66.33

% iron, 21.66 % neodymium and 4.76 % praseodymium. According to route I: whole leaching using sulfuric acid, followed by roasting at 750 °C for 2 hours, oxalic acid precipitation and calcination, neodymium oxide was obtained as the final recycling product with 59.36 % recovery. The product contained 61.23 % neodymium, 13.83 % praseodymium and 0.04 cobalt by weight. Recycling via route II has also demonstrated that oxidative roasting enabled selective leaching by sulfuric acid, resembling to that of sintered waste recycling. Recovery was obtained at 75.46 % and the product composition was 68.11 % neodymium, 14.93 % praseodymium and 0.02 % cobalt by weight. Therefore, recycling of manufacturing NdFeB magnet wastes both in the sintered and powder forms via hybrid metallurgical process provided neodymium oxide as the desirable recycling product. The higher recycling efficiency based on recovery could be achieved through oxidative-roasting and selective-leaching. Greater leaching efficiency was the key, offering 92.11 and 95.73 in the sintered and powder wastes respectively in comparison to those of 66.00 and 89.00 via whole leaching.



School of Metallurgical Engineering  
Academic Year .....2021.....

Student's Signature.....*วชิระ*.....  
Advisor's Signature.....*จันท*.....  
Co - Advisor's Signature.....*Sam*.....