≫ 연구논문 ≪

pISSN: 1225-8326 eISSN: 2287-4380

https://doi.org/10.7844/kirr.2019.28.4.30

# 전구체 공정부산물 $LNO(Li_2NiO_2)$ 계 양극활물질로부터 탄산리튬 및 니켈 회수연구

표재중\* · <sup>\$</sup>왕제필\*\*

\*(주)엘엔에프, \*\*부경대학교 금속공학과

# Recoverty of Lithium Carbonate and Nickel from Cathode Active Material LNO(Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub>) of Precursor Process Byproducts

Je-Jung Pyo\* and §Jei-Pil Wang\*\*

\*L&F Co., Ltd. Daegu 42724, Republic of Korea
\*\*Department of Metallurgical Engineering, Pukyong National University, Busan 48547, Republic of Korea

요 익

본 연구는 폐 리튬이온전지의 양극활물질인  $LNO(Li_2NiO_2)$  공정부산물로부터  $CO_2$  열반응 공정을 통하여 Li 분말을 회수하였다. Li 분말을 회수하는 공정은  $CO_2$  주입량이 300 cc/min인 분위기에서  $600\,^{\circ}C$ , 1 min 유지하여  $Li_2NiO_2$  상을  $Li_2CO_3$ 상과 NiO상으로 상분리 시켰다. 이 후 회수한 시료·증류수 = 1:50 무게비로 수 침출 후 감압 여과를 통해 용액에서  $Li_2CO_3$ , 여과지에서 NiO 분말을 회수하였다. Ni 순도를 높이기 위해  $H_2$  분위기에서 3시간 유지하여 NiO에서 NiZ 환원하였다. 위와 같은 공정을 통해 회수한 탄산리튬 용액의 Li의 농도 2290 ppm, Li의 회수율은 92.74%를 달성하였고 Ni은 최종적으로 순도는 90.1%, 회수율 92.6%의 분말을 제조하였다.

**주제어** : 폐 리튬이온전지, LNO,  $CO_2$ 열반응, 탄산리튬, 니켈

## Abstract

In this study, Li powder was recovered from the by-product of LNO ( $\text{Li}_2\text{NiO}_2$ ) process, which is the positive electrode active material of waste lithium ion battery, through the  $\text{CO}_2$  thermal reaction process. In the process of recovering Li powder, the  $\text{CO}_2$  injection amount is 300 cc/min. The  $\text{Li}_2\text{NiO}_2$  award was phase-separated into the  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  phase and the NiO phase by holding at 600 °C for 1 min. After this, the collected sample:distilled water = 1:50 weight ratio, and after leaching, the solution was subjected to vacuum filtration to recover  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  from the solution, and the NiO powder was recovered. In order to increase the purity of Ni, it was maintained in  $\text{H}_2$  atmosphere for 3 hours to reduce NiO to Ni. Through the above-mentioned steps, the purity of Li was 2290 ppm and the recovery was 92.74% from the solution, and Ni was finally produced 90.1% purity, 92.6% recovery.

Key words: A waste lithium ion battery, LNO, CO2 heat response, Lithium carbonate, Nickel

Received: June 3, 2019 · Revised: July 25, 2019 · Accepted: August 8, 2019

<sup>§</sup> Corresponding Author : Jei-Pil Wang (E-mail : jpwang@pknu.ac.kr)

Department of Metallurgical Engineering, Pukyong National University, 365 Sinseon-ro, Nam-gu, Busan 48547, Korea

<sup>©</sup> The Korean Institute of Resources Recycling. All rights reserved. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/), which permits unrestricted non-commercial use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

#### 1. 서 론

현재 우리나라의 경우에는 대부분의 금속원료를 수입 에 의존하고 있는 대표적인 자원수입국이며 자원빈민국 이기에 세계시장의 현세 속에서 국내 산업의 생존권을 위해 안정적인 자원공급체계를 구축할 필요 즉 자원생 산이 필요하다. 따라서 현재까지 국내에서도 유가금속 을 회수하는 방법에 관한 많은 연구가 진행되었으나 현 재의 기술수준으로는 양극활물질의 재활용 상업화가 아 직 어려움이 많다<sup>1,6)</sup>. 리튬계 이차전지(Lithium ion battery. LiB)는 금속 중 가장 가벼운 금속인 리튬을 활 용한 전지로서 높은 전압 및 에너지 밀도를 가질 뿐만 아니라 경량으로 구현이 가능하여, 이동통신, 노트북컴 퓨터, 전동 자전거 등 다양한 휴대용 전자기기의 전력 으로 사용되고 있다<sup>7)</sup>. 리튬계 이차전지는 리튬폴리머전 지와는 구별되며 형태별로는 원통형 LIB, 각형 LIB, 폴리머 LIB, 자동차용 LIB 등으로 분류할 수 있다8). 이러한 리튬이온전지의 시장규모는 2015년 기준으로 약 193억 달러(약 25.3조 원)규모에 달하며 2020년에는 총 396억 달러(약 45.6조 원)에 이를 전망이다<sup>9)</sup>. 전세계적 으로 1년에 사용되는 전지는 약 30만톤으로 리튬이온 전지 1개를 평균 50 g으로 계산하면 1년에 약 60억 개 의 전지가 판매되는 것으로 전세계 사람이 1인당 1개 이상의 리튬이온전지를 사용중인 것을 의미한다. 한번 사용하고 재사용이 불가능한 버려지는 일차전지는 전체 중량의 약 80% 이상을 차지하고 있으며, 충전하여 300~400회까지 재사용 가능한 이차전지로 납축전지, 니켈-카드뮴전지, 리튬이온전지 등이 있다. 현재 화석연 료를 대신하여 자동차의 동력원으로 리튬이온전지가 사 용되면서 리튬이온전지의 사용량이 급증하고 있으며 리 튬이온전지 생산이 많은 나라에서는 늘어나는 수요에 맞춰 전지 원료인 Li, Co, Ni, Mn 등의 사용량도 급 증하고 있다.

폐 리튬이온전지는 공기 중의 수분과 만나면 반응하는 리튬이 존재하므로 폭발할 가능성이 있을 뿐만 아니라 매립하여 폐기하게 되면 토양문제를 일으키는 유기전해액 내에 함유된 리튬염이나 전해액이 존재한다. 또한 폐 리튬이온전지 양극활물질에는 Ni, Co 등 중금속이 존재하고 있으며 이러한 유가금속을 재활용하지 않으면 자원을 낭비할 뿐만 아니라 환경오염이 될 수 있으므로, 폐 리튬이온전지의 재활용 및 유가금속 회수는 환경적, 경제적 측면에서 매우 유용하다.

기존 양극 활물질의 재활용에 관한 연구는 염산(HCl)

및 질산(HNO<sub>3</sub>)에 의한 침출<sup>10-13)</sup>, 유기산은 예를 들어 구연산(C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>H<sub>8</sub>E<sub>8</sub>) 및 산소산(C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)<sup>14-17)</sup> 등 대부분 산 용액 침출을 통한 유가금속 분리에 관한 연구로써, 공정 중 발생하는 부산물의 처리비용이나 환경적 문제를 야기할 수 있다는 위험성을 안고 있어 친환경적인 공정개발이 필요하다. 이에 따라 양극활물질과 CO<sub>2</sub> 열 반응, 수침출을 통해 양극활물질로 부터 리튬과 코발트를 따로 분리 회수하는 과정으로 양극활물질 내 유가금속의 회수에 관하여 연구를 진행하였으며, 친환경적이며 간단한 공정을 통한 유가금속 회수 방법으로 산업에 적용 시 원료의 국산화에 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

#### 2. 실험 재료 및 방법

#### 2.1. 실험재료

본 연구에 사용된 실험 재료는 리튬이온전지의 양극활물질 중 리튬과 니켈의 화합물인 LNO(Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub>)계 양극활물질이며 리튬이온전지 개발 회사에서 공정부산물로 나오는 양극활물질을 사용하였다.

Fig. 1 및 Table 1은 연구에 사용된 LNO 원시료의 상분석과 성분분석의 결과이며, 상분석은 XRD (X-Ray Diffraction)분석을 실시하였으며, 성분분석은 EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) 및 ICP (Induc-

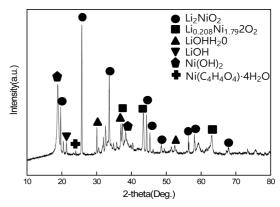
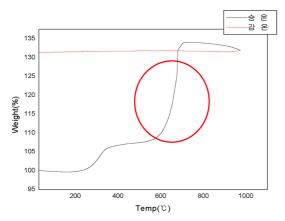


Fig. 1. XRD pattern of Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub>.

Table 1. chemical composition of  $\text{Li}_2\text{NiO}_2$ 

		ICP (wt%)			
	С	О	Al	Ni	Li
LNO	14.76	58.57	0.71	25.71	10.7



**Fig. 2.** TGA diagram of Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub> with various heating emperature of 30 ~ 990 °C under CO<sub>2</sub> atmosphere.

tively Coupled Plasma) 분석을 실시하였다. XRD 분석결과 원시료는  $\text{Li}_2\text{NiO}_2$  화합물로 존재하는 것을 확인하였다. 성분분석 결과 원시료 내 Li은  $10.7\,\text{wt}\%$ , Ni은  $25.71\,\text{wt}\%$  함유 되어있는 것을 확인하였다.

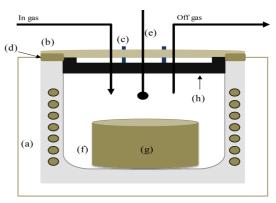
## 2.2. 실험 방법

## 2.2.1. 열중량 분석

LNO의 온도에 따른 상변화 가능성을 확인하기 위해 TGA (Thermogravimetric apparatus) 분석을 실시하였다.  $CO_2$  gas (300 cc/min) 분위기에서 30 °C에서 990 °C 까지 5 °C/min의 승온 속도로 LNO의 열중량 변화 실험을 진행하였으며, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 측정 결과 600 °C  $\sim 800$  °C에서 중량이 증가하는 것을 확인하였으며, 600 °C  $\sim 800$  °C에서 LNO 분말의 상변화가 일어날 것으로 예상된다.

## 2.2.2. 탄산화

LNO ( $\text{Li}_2\text{NIO}_2$ ) 분말로부터 Li상 및 Ni상의 상분리를 위해 탄산화를 실시하였다. 실험 장치는 전기로를 사용하였으며, 사용한 전기로의 계략도를 Fig. 3에 나타내었다. 실험은 SUS 도가니를 사용하여 백색윤활 이형제를 도포하여 시료가 도가니에 흡착되는 것을 방지 하였으며,  $30\,\text{g}$ 의 시료를 사용하여 실험을 진행하였다. LNO 분말과  $\text{CO}_2$  gas가 고온에서 열반응하여 상변화가일어날 것으로 예상되며, 아래의 반응식에 따라 상변화가 일어날 수 있다.



(a) Eletric furnace (b) Reactor (c) Cooling line (d) O-ring (e) Thermocouple (f) Alumina crucible (g) Sample (h) Condenser

Fig. 3. Schematic diagram of experimental apparatus.

$$Lu_2NiO_2(s) + CO_2(g) \rightarrow Li_2CO_3(s) + NiO(s)$$
  

$$\Delta G^* \text{ at } 600 \sim 800 \,^{\circ}\text{C} \leq 0 \qquad (1)$$

TGA 측정결과를 바탕으로 600∼800 °C 온도조건에서 승온속도 5 °C/min, 5 °C/min로 감온하였다. 실험을 진행하였으며, 분위기는 CO<sub>2</sub> gas (300 cc/min), 반응유지 시간은 1분 ∼1시간 조건으로 실험을 진행하였다.

## 2.2.3. 수침출

탄산화 후 상분리 된 LNO 분말에서 Li상과 Ni상의 분리를 위한 수침출을 진행하였다. Li상은 물에 잘 용해되고, Ni 상은 용해되지 않는 성질을 이용하여 Li과 Ni 상을 분리하는 실험을 진행하였으며, 아래의 Table 2에 Li과 Ni상의 물에 대한 용해도 차이를 나타내었다. 아래의 Table 2를 보면 Li상인 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>는 물의 온도가 내려감에 따라 용해도가 증가하는 것을 볼 수 있으며, Ni 상인 NiO 및 Ni<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 물에 대한 용해도가 없는 것을 확인하였다. Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>의 용해도가 온도가 내려감에 따

Table 2. The difference in solubility of water between  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  and NiO

Meaterial	Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	NiO, Ni <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
Solubility in Water	1.54 g/100 mL (0 °C) 1.32 g/100 mL (20 °C) 1.00 g/100 mL (60 °C) 0.72 g/100 mL (100 °C)	Insoluble	
Solubility	Acetone, Ammonia, Alcohol	KCN	

라 증가하는 이유는  $Li_2CO_3$ 가 물에 용해되는 반응은 발열반응이기 때문으로 판단된다. 따라서 수침출은 낮은 온도의 물에서 진행하는 것이 유리할 것으로 판단된다.

수침출은 상온의 증류수 온도에서 분말과 증류수의 비율을 1:10, 1:15, 1:20, 1:50 네 가지 조건으로 실험을 진행하였으며, 수세 시간은 1시간, 3시간, 24시간 세가지 조건으로 실험을 진행하였다.

#### 2.2.4. 가스 환원 반응

수침출 후 감압여과를 통해 탄산리튬 용액을 농축 시켰으며, 여과 후 남은 NiO 분말을 Ni 상으로 환원 회수하기 위한 실험을 진행하였다. NiO의 환원은 CO gas나  $H_2$  gas와 만나 Ni로 환원되는며 반응식은 아래와 같다.

$$NiO(s) + CO(g) \rightarrow Ni(s) + CO_2(g)$$
 (2)

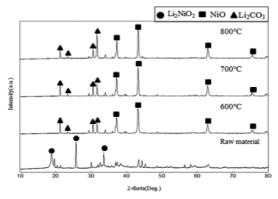
$$NiO(s) + H_2(g) \rightarrow Ni(s) + H_2O(g)$$
 (3)

NiO 환원 실험은 반응온도  $600\,^{\circ}$ C, 환원 분위기 CO gas (300 cc/min),  $H_2$  gas (300 cc/min)에서 실험을 진행하였으며, 환원시간 1시간, 3시간, 5시간, 10시간의 네 가지 조건에서 실험을 진행하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

#### 3.1. 탄산화

LNO 분말의 탄산화 실험 후 상변화를 확인하기 위해 XRD (X-Ray Diffraction)를 통해 분석을 실시하였으며, 온도조건에 따른 실험 결과를 Fig. 4에 나타내었다.



**Fig. 4.** XRD pattern of heat treated Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub> at  $600 \sim 800$  °C.

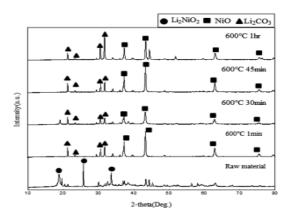
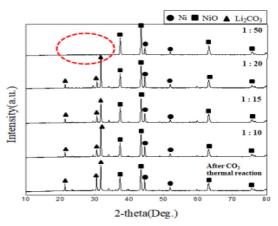


Fig. 5. XRD pattern of heat treated  $Li_2NiO_2$  at 1 min  $\sim 1$  hr.

XRD 분석 결과에서 보면 600~800 ℃에서 모두 LNO상이 나타나지 않고, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>상과 NiO 상으로 완전히 분리된 것을 확인하였으며, 실험결과를 통해 LNO 분말의 탄산화 반응 최적 온도 조건은 600 ℃인 것을 확인하였다.

도출된 최적온도 조건에서 시간조건을 변수로 하여 실험을 진행하였으며, 그 결과를 아래의 Fig. 5에 나타 내었다.

시간 조건에 따른 XRD 분석결과를 보면 1분에서 1 시간까지의 조건에서 모두 상변화가 완전히 일어난 것을 확인 하였으며, 실험결과를 바탕으로 탄산화 실험의 최적조건은 반응온도  $600\,^{\circ}$ C,  $CO_2$  gas ( $300\,$  cc/min), 반응시간 1분의 최적 조건을 확인하였다.



**Fig. 6.** XRD pattern of Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> and NiO powder after washing (Raw material, after 1:10, 1:15, 1:20, 1:50 washing).

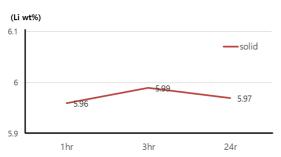


Fig. 7. Li change graph according to the conditions for ICP analysis.

## 3.2. 수침출

탄산화 후 소결된 시료를 분쇄하여  $Li_2CO_3$ 와 NiO 상의 용해도 차이를 이용하여, 수침출을 진행하였다. 수침출 후 감압여과를 농축된  $Li_2CO_3$  농축 용액과 NiO 분말을 분리하였다. 수침출 시 탄산화 후 분말과 증류수의 비율에 대한 영향을 확인하기 위해 1:10, 1:15, 1:20, 1:50의 네 가지 조건으로 실험을 진행하였으며, 그 실험결과를 Fig. 6에 나타내었다.

XRD 분석결과를 보면 분말과 증류수의 비율이 1:50 의 조건에서 분말 내  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  상이 모두 사라진 것을 확인하였으며, 분말과 증류수 비율의 최적조건은 1:50 인 것으로 확인하였다.

수세시간에 따른 수침출의 영향을 알아보기 위해 분 말과 증류수의 비율 1:20의 조건에서 1시간, 3시간, 24 시간 세 가지 조건에서 실험을 진행하였으며, 그 결과

**Table 3.** Oxygen contents of Ni after reduction at 600°C Weight %)

	H <sub>2</sub> gas reduction	Co gas reduction	
Oxygen contents	2.141	3.871	

를 ICP 분석으로 분석하여 그래프로 나타내어 Fig. 7에 나타내었다.

실험결과를 보면 1시간 침출 시 5.96 wt%, 3시간 침출 시 5.99 wt%, 24시간 침출시 5.97 wt%로 침출된 것을 확인하였으며, 분석결과를 바탕으로 수침출 시 시간조건은 영향이 없는 것으로 확인되었다.

수침출 후 감압여과를 통해 농축된 탄산리튬 용액 및 NiO 분말을 분리하였으며, 수침출을 통해 농축된 탄산리튬 내 리튬의 농도는 2290 ppm, 원시료로 부터 리튬의 회수율은 92.74%의 회수율 달성하였다.

## 3.3. CO, H<sub>2</sub> Reduction

수침출 후 분리안 NiO 분말을 환원을 통해 Ni을 화수하기 위해 CO gas 및  $H_2$  gas 분위기에서 실험을 진행하였으며, 반응온도는 600 °C, 반응 시간은 1시간에서 10시간 조건에서 실험을 진행하였으며, 실험결과는 XRD 분석 및 N/O 분석을 통해 환원 유무를 확인 하였다.

분위기에 따른 환원 유무를 확인하기 위해 600 °C에서 CO gas (300 cc/min) 및 H<sub>2</sub> gas (300 cc/min) 조

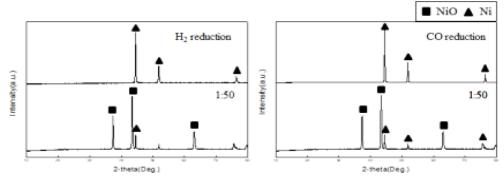


Fig. 8. XRD pattern of H<sub>2</sub>, CO reduction.

Table 4. Oxygen contents of Ni after reduction at 600  $^{\circ}\text{C}$  on  $\text{H}_2$  gas condition for 1  $\sim$  7 hrs

(Weight %)

	Before reduction	1 hr	3 hrs	5 hrs	10 hrs
Oxygen contents	17	9.1847	5.8313	4.3455	2.3439

건에서 실험을 진행하였으며, XRD 및 N/O 분석결과를 Fig. 7 및 Table 3에 나타내었다.

환원 분위기에 따른 실험의 XRD 분석결과를 보면  $H_2$  gas 및 CO gas 두 가지 분위기에서 모두 NiO 상이 Ni 상으로 환원되었으며, N/O 분석결과  $H_2$ 분위기에서의 환원 후 산소함량은 2.141 wt%, CO gas 분위기에서의 환원 후 산소함량은 3.871 wt%로  $H_2$  gas 분위기에서의 환원 조건이 환원력이 높은 것을 확인하였다.

실험을 통해 도출된 최적 환원 분위기인  $H_2$  환원 분위기에서 최적 환원 시간 도출을 위한 실험을 진행하였으며, 1시간, 3시간, 5시간, 10시간 네 가지 조건으로실험을 진행하였다. 환원 시간별 산소함량은 N/O 분석을 통해 진행하였으며, 그 결과를 Table 4에 나타내었다.

시간에 따른 환원 실험 분석결과를 보면 1시간 및 3 시간 조건에서 가장 많은 산소 감소가 나타났으며, 5시 간, 10시간 환원 조건에서는 감소량이 낮은 것을 알 수 있다

분위기 및 시간에 따른 실험을 통해 도출된 NiO 환원 최적조건은  $H_2$  gas 분위기에서 3시간 환원 조건에서 최적 환원 조건이 가장 최적인 환원 조건으로 판단된다.

최종적으로 H<sub>2</sub> 환원을 통해 얻어진 Ni의 순도는 90.1%, 회수율은 92.6%를 달성하였다.

#### 4. 결 론

리튬이온전지는 발전과 더불어 사용량이 증가하고 있으며 사용 후 폐 리튬이온전지가 대량 발생하고 있으며 앞으로 폐전지의 량은 증가할 것으로 보이므로 재활용연구 필요성이 증가하고 있다. 본 연구는 폐 리튬이온전지의 양극활물질인 LNO 공정부산물로부터 탄산리튬 및 니켈 회수에 관한 연구로써 국내 리튬과 니켈을 재활용하는 것을 최종 목적으로 하였다. 공정부산물을 원료로하여 분말로부터 리튬과 니켈 화합물 상태인 LNO에서 리튬과 니켈의 독립적인 상분리와 선택적 회수에 관한 연구이다. 또한 회수에 관한 최적 조건을 도출하여 유가금속을 효과적으로 회수하기 위해 연구를 수행하였다.

최종 실험 결론은 다음과 같다.

1. 탄산화를 통한 LNO (Li<sub>2</sub>NiO<sub>2</sub>) 양극활물질의 상분 리 실험을 통해 반응 온도 600 °C 및 반응시간 1 min 의 최적조건을 도출하였으며, LNO 분말의 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와 NiO 두 가지 상으로 상분리가 완전히 이루어졌다.

- 2. 탄산화 후 수침출을 통한  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 의 농축 및 NiO 분말의 회수 실험을 통해 최적 수침출 비율 1:50 및 침출시간 1시간을 도출하였다.
- 3. 탄산화 및 수침출을 통해 최종 회수 된 리튬의 경 우 회수율은 92.74%, 리튬의 농도는 2290 ppm인 탄산 리튬 용액을 회수하였다.
- 4. 회수된 NiO의 분위기 및 시간에 따른 환원 실험을 진행하였으며, 실험을 통해 최적 환원분위기  $H_2$  gas (300 cc/min) 및 최적 환원 시간 3시간을 도출 하였다.
- 5. 최종 회수 된 Ni 분말의 회수율은 92.6%, 90.1% 의 순도의 Ni 분말을 회수하였다.

## Acknowledgment

This research was also supported by the Brain Busan 21 plus (BB21+) Project in 2019 and by the National Research Foundation of Korea (NRF) grant funded by the Korea government (MSIT) (No. NRF-2019R1F1A104940).

#### References

- N. Ding, X. W. Ge, and C. H. Chen, 2005 : A new gel route to synthesize LiCoO<sub>2</sub> for lithium – ion batteries, Mater. Res. Bull, 40, pp.1451.
- M. K. Jeong, C. S. Hwang, and C. S. Choi, 2006: Characterization of LiCoO<sub>2</sub> Synthesized via Structural and Compositional Variations of Precursors Prepared by Precipitation, Clean Technology, 12, pp.101.
- J. Khanderi and J. J. Schneider, 2010: A single source Co/ Li/O organometallic precursor for nano-crystalline LiCoO<sub>2</sub>.
   Synthesis, formation pathway and its electrochemical performance, Eur. J. Inorg. Chem., 29, pp.4591.
- J. H. Moon, J. E. Ahn, H. J. Kim, S. H. Sohn, H. W. Lee, and H. S. Kim, 2012: Recovery of Cobalt from Waste Cathode Active Material Using Organic Acid, Applied Chemistry, 16, pp.73.
- C. K. Lee, D. H. Yang, and C. Y. Suh, 2002: Preparation of LiCoO<sub>2</sub> from Spent Lithium Ion Batteries as a Cathodic Active Material, J. KSMER, 39, pp.157.
- S. H. Park, H. S. Ku, K. J. Lee, J. H. Song, S. K. Kim, J. S. Sohn, and K. J. Kown, 2015: The Efferct of NH<sub>3</sub> Concentration during Co-precipitation of Precursors from Leachate of Lithium-ion Battery Positive Electrode Active Materials, J. of Korean Inst. of Resources Recycling, 24,

- pp.9-16.
- M. Contestabile, S. Panero, and B. Scrosati, 2001: Alaboratory-scale lithium-ion battery recycling process, J. Power Sources, 92, pp.65-69.
- S. H. Son, J. H. Kim, H. J. Kim, S. J. Kim, and M. S. Lee, 2014: Leaching of Valuable Metals from NCM Cathode Active Materials in Spent Lithium-Ion Battery by Malic acid, J. of Korean Inst. of Resources Recycling. 23, pp.21-29
- INONOPOLIS Foundation "Lithium-Battery Market" Global Market Trends of Special Zone Technology report, 2018
- P. Zhang, T. Yokoyama, O. Itabashi, T. M. Suzuki, and K. Inoue, 1998: Hydrometallurgical process for recovery of metal values from spent lithium-ion secondary batteries, Hydrometallurgy, 47, pp.259-271.
- M. Joulié, R. Lacournet, and E. Billy, 2014: Hydrometallurgical process for the recovery of high value metals from spent lithium nickel cobalt aluminum oxide based lithium-ion batteries, J. Power Sources, 247, pp.551-555.
- 12. J. Kang, G. Senanayake, J. Sohn, and S. M. Shin, 2010:

- Recovery of cobalt sulfate from spent lithium ion batteries by reductive leaching and solvent extraction with Cyanex 272. Hydrometallurgy, 100, pp.168-171.
- C. K. Lee and K. I. Rhee, 2002: Preparation of LiCoO<sub>2</sub> from spent lithium-ion batteries, J. Power Sources, 109, pp.17-21.
- L. Li, J. Ge, F. Wu, R. Chen, S. Chen, and B. Wu, 2010: Recovery of cobalt and lithium from spent lithium ion batteries using organic citric acid as leachant, J. Hazard Mater., 176, pp.288-293.
- X. Chen and T. Zhou, 2014: Hydrometallurgical process for the recovery of metal values from spent lithium-ion batteries in citric acid media, Waste Manag. Res, 32, pp.1083-1093.
- L. Sun and K. Qiu, 2012: Organic oxalate as leachant and precipitant for the recovery of valuable metals from spent lithium-ion batteries, Waste Manag, 32, pp.1575-1582.
- 17. X. Zeng, J. Li, and B. Shen, 2015: Novel approach to recover cobalt and lithium from spent lithium-ion battery using oxalic acid, J. Hazard Mater, 295, pp.112-118.

#### 표 재 중

- 부경대학교 금속공학과 학사
- 부경대학교 금속공학과 석사
- 현재 (주)엘엔에프 R&D Center 주임

#### 왕 제 필

- 동아대학교 금속공학과 학사
- 유타대학교 금속공학과 석사
- 유타대학교 금속공학과 박사
- 현재 국립부경대학교 금속공학과 교수
- •당 학회지 제25권 6호 참조