

폐배터리에서 희소금속을 회수하는 기술에 대한 총론

김 효 정* · 이 철* · 장 원 석** · 이 고 기*** · 이 중 석*,†

*서강대학교 화공생명공학과, **한국지역난방공사 미래사업처, ***포항산업과학연구원 산업소재연구그룹
(2023년 12월 5일 접수, 2023년 12월 28일 수정, 2023년 12월 28일 채택)

Recovering Critical Metal Ions from Battery Wastes: A Brief Review

Hyo Jung Kim*, Cheol Lee*, Won Seok Chang**, Go Gi Lee***, and Jong Suk Lee*,†

*Department of Chemical and Biomolecular Engineering, Sogang University, Seoul 04107, Republic of Korea

**Frontier Research & Training Institute, Korea District Heating Cooperation, Seongnam-si 13585, Republic of Korea

***Industrial Materials Research Group, Research Institute of Industrial Science and Technology, Pohang-si 37673, Republic of Korea

(Received December 5, 2023, Revised December 28, 2023, Accepted December 28, 2023)

요 약: 최근 전기차 시장의 확장으로 배터리 산업이 급격히 성장함에 따라 폐배터리 리사이클링 기술 개발의 필요성이 증가하고 있다. 폐배터리 리사이클링 기술은 배터리 산업에 핵심적인 리튬, 코발트, 니켈 등 희소금속의 공급을 안정화하고 환경 및 인간의 건강에 미치는 영향을 경감할 수 있다. 본 총설에서는 금속 회수 기술의 배경이 되는 이론적 원리와 현재 상용되고 있는 금속 회수 공정을 소개하고자 한다. 또한, 기존 공정의 문제점을 개선하려는 연구 및 기술 개발 동향을 서술하여 리사이클링 기술이 나아가야 할 방향을 소개하고자 한다.

Abstract: The rapid expansion of the electric vehicle market has led to increased demand for battery recycling technologies. The recycling of spent batteries is crucial to stabilize the supply of rare metals, including lithium, cobalt and nickel, which are essential components for the battery industry. In addition, the technology for recycling spent batteries can help to reduce environmental and health impacts. This review presents the theoretical principles behind the metal recovery technology and the processes that are currently commercially available. It also describes trends in research and technological developments that aim to improve existing processes, and provides an overview of where recycling technology is headed.

Keywords: battery wastes, recycling process, recovery of critical metal ions, review

1. 서 론

리튬이온 배터리(lithium-ion battery, LIBs)는 가장 보편적인 에너지 저장장치로, 양극과 음극에서 리튬이온의 화학적 반응을 통해 전기를 만드는 원리로 구동한다[1-3]. 최근 배터리 사용량은 급속히 증가하고 있고, 특히 electric vehicle (EV) 시장 및 대용량 에너지 저장장치(energy storage system, ESS) 사용의 확대에 중, 대형 배터리 시장은 2030년까지 20.3% 정도 증가할 것으로 예상된다[4]. 리튬이온 배터리는 충전(charge and discharge)을 반복할수록 효율이 낮아지므로 일정 기간

동안 사용하면 버려지는 소모품이다[5-7]. 따라서 폐배터리 리사이클링(recycling)에 필요한 기술을 개발하고 공정의 효율을 개선하는 연구의 필요성이 제기된다.

탄소중립을 위한 세계적인 움직임이 커지고, 생산비용의 대부분을 원료가 차지하는 문제로 인해, 배터리 산업에서의 리사이클링을 통해 얻은 재활용 중금속의 수요가 증가하고 있다[5-7]. 대부분의 희소금속 원료는 칠레, 호주, 인도네시아 등에서 생산되므로 배터리 원료의 생산지와 셀을 만드는 업체 간의 운송비용이 컸지만, 리사이클링을 통해 운송비용을 줄이고 자원 접근의 용이성을 확보할 수 있다[6]. 폐배터리로부터 추출된 주

†Corresponding author(e-mail: jongslee@sogang.ac.kr; <http://orcid.org/0000-0002-1121-8529>)

요 금속들은 이미 배터리를 정제된 재료이므로 전통 방식으로 천연자원을 채굴하는 과정에서 발생하는 온실가스 및 정제에 필요한 화학 재료 및 물의 사용량을 줄일 수 있다[5]. 또한 원료 중 희소금속의 경우 매장량이 일부 국가에 편중되어 있으므로 소재의 무기화에 대한 우려가 있다[8]. 우리나라의 경우 배터리 원료의 90% 이상을 수입에 의존하고 있으므로 폐배터리에서 회수한 희소금속은 배터리 소재 수급에 안정적인 대안이 되고 국가적인 자원 안보에 기여할 수 있다[9].

한편, 버려진 배터리의 폐역에는 희소금속인 코발트, 구리, 니켈 등이 있다[6]. 이들은 시간이 지남에 따라 체내에 축적되므로 생태 내 생물 농축(biomagnification)을 유발한다[10]. 환경 및 건강의 관점에서 폐배터리를 재활용하여 처리하는 연구의 필요성이 있다.

따라서 이번 총설은 배터리 재료 수급 경쟁을 해소하고, 환경 및 건강에 미치는 위험을 줄이는 폐배터리 리사이클링과 관련한 기술의 연구 동향을 정리하고 현재 사용되는 공정 및 현재 공정의 문제점을 보완하려는 시도에 대해 서술하고자 한다.

2. 배 경

희소금속은 매장량이 극히 부족하거나 추출이 어려운 금속, 매장 및 생산이 일부 국가에 편중되어 있어 공급이 원활하지 않은 금속을 의미한다. 대표적인 예로 리튬(Li), 코발트(Co), 니켈(Ni), 망간(Mn)이 있다. 리튬 이온 배터리를 나누는 단위는 셀(cell), 모듈(module), 팩(pack)가 있으며, 여러 개의 셀의 집합을 모듈, 여러 개의 모듈의 집합을 팩이라 한다. 폐배터리 리사이클링의 이론적 원리는 화학적 침전, 이온교환, 흡착, 분리막법, 응결 및 응집, 전기화학법 등이 있다[14].

폐배터리 리사이클링은 재사용(reuse), 재제조(refabrication), 재활용(recycling) 세 가지 방식으로 구성된다. 폐배터리의 성능에 따라 처리되는 방식이 결정된다. 배터리 성능이 60~80%인 경우 재사용 및 재제조되고 60~20%인 경우 재활용된다. 재사용은 폐배터리를 ESS의 전원으로 다시 사용하는 방식을 말한다. 재제조는 폐배터리를 모듈 단위로 해체하고 성능 및 안전성 평가를 한 뒤, 배터리관리시스템(battery management system, BMR)과 연결하여 새로운 시스템에 다시 사용하는 방법이다. 대표적인 예로 폐배터리를 팩 단위로 재사용한 무정전 전원공급 장치(uninterruptible power supply,

UPS)와, 모듈 단위로 재사용한 태양광 가로등, 골프 카트 등이 있다. 그러나 이 방식은 배터리 제조사마다 제조 공정이 달라 한계가 있다. 재활용은 폐배터리의 양극 활물질(cathode)에서 해체, 파쇄, 침출 등의 공정을 통해 고가의 희소금속을 용출하여 다시 활용하는 방식을 의미한다. 희소금속은 대부분 수입에 의존하고 있으므로 재활용 금속으로 자원의 순환을 만든다면 배터리 산업에 필요한 재료를 안정적으로 확보하는 것에 도움이 될 것으로 기대된다. 재사용 및 재제조를 통해 다시 활용되는 배터리도 궁극적으로 폐배터리로 배출되므로 재활용을 통한 전지를 자원화하는 기술의 개발이 폐배터리 리사이클링의 핵심이다. 따라서 재활용에 관한 연구개발 및 기술 동향을 중점적으로 서술하고자 한다.

3. 금속 회수법

3.1. 흡착제를 이용한 희소금속 회수

흡착(absorption)은 액체 또는 기체 분자가 고체 물질의 표면에 달라붙는 현상을 의미한다. 흡착할 수 있는 넓은 표면을 가진 물질을 흡착제, 흡착하는 물질을 흡착질이라 정의한다[11]. 흡착은 흡착 시 작용하는 힘의 성질에 따라 물리 흡착과 화학 흡착으로 구분된다. 물리 흡착은 반데르발스 인력(van der Waals interaction), 이온 상호작용(ionic interaction)에 의한 흡착으로 흡착제 전자 구조의 변화가 적다. 반면, 화학 흡착은 흡착질과 흡착제 표면에서의 복합체 형성, 리간드 교환, 수소 결합 등의 화학적 인력에 의해 발생하며 물리 흡착보다 흡착력이 크다. 특정 성분에 대한 흡착 성능 및 선택성이 높은 흡착제는 혼합물에서 해당 성분만 선택적으로 분리할 수 있다는 장점이 있다. 흡착량은 보통 온도가 높아지면 감소하며, 일정한 온도에서는 흡착질의 농도와 압력이 높을수록 흡착량이 증가한다.

흡착 공정은 다른 공정들에 비해 경제성이 높고 공정이 간단하다는 장점이 있다. 또한 중금속 회수 수율이 높아 많은 관심을 받고 있다[12-15]. 흡착은 가역적 반응이므로 역반응인 탈착 공정을 통해 흡착제를 재사용이 가능하다는 장점도 있다. 대표적인 흡착제로 활성탄, 나노 크기 흡착제, 바이오 흡착제 등이 있으며 흡착제의 성능을 개선하는 연구가 진행되고 있다[16-18]. 이외에도 농업 폐기물 등 가격이 저렴한 물질을 재활용하여 경제성을 높인 흡착제에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 하지만 대부분의 탈착 과정에서 산 용액을 사

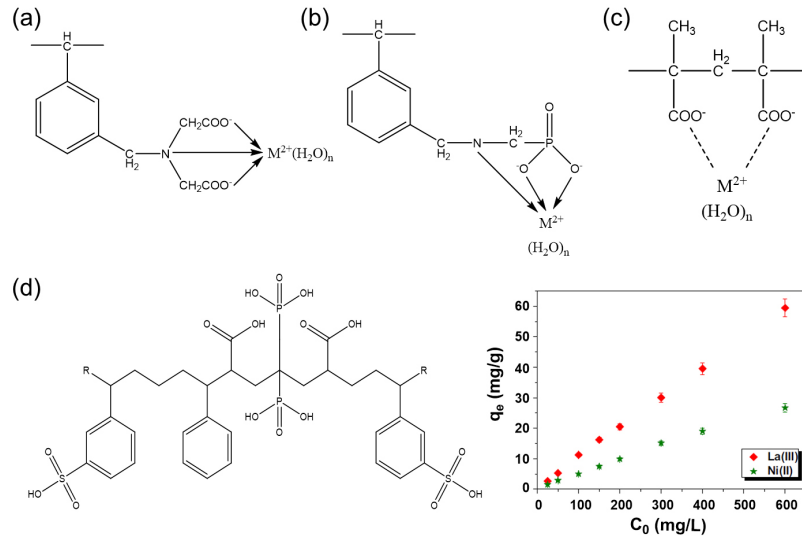


Fig. 1. (a) Types of functional group in chelating resin, (b) Chemical structure of Diphonix resin and Metal adsorption equilibrium onto the Diphonix resin[11,12].

용하므로 공정 잔여물로 인한 환경 문제가 있으며, 나노 크기의 흡착제는 입자 간의 응집으로 성능이 저하되는 한계가 있다[12-15]. 따라서 높은 흡착 성능 가지며 친환경적인 흡착제를 개발하는 것이 중요하다.

킬레이트(chelating) 이온 교환 수지(resin)는 대표적인 흡착제의 예시로, 주계 원자(donor atom)을 가지는 공유 결합으로 연결된 사슬을 가지는 배위 공중합체(coordinating copolymers)이다[11]. 이는 루이스 염기로서 금속 이온과 같은 루이스 산과 배위결합을 형성하므로 금속 이온을 흡착할 수 있다. 킬레이트 수지와 금속 이온 사이의 배위형 상호작용은 금속 이온에 대한 높은 선택성의 이론적 배경이 된다. 흡착 선택성은 수지의 작용기의 종류와 수지 비드의 크기 및 물리화학적, 구조적 특성에 따라 달라진다. 수지는 일반적으로 iminodiacetate, aminophosphonate, carboxylate의 작용기를 가진다(Fig. 1(a)-(c)). 흡착제를 이용한 연구에는 니켈 망간전지(Ni-MH)을 질산으로 침출한 뒤, diphonix resin으로 흡착하여 La, Ni를 회수한 사례가 있다[19]. 흡착제로 사용된 diphonix resin는 음전하를 가지는 황산기(sulfonic), 인산기(phosphonic), 카복실기(carboxylic)를 가진다. 양전하를 가지는 금속 이온과 전기적인 상호작용을 통해 흡착 작용이 발생한다. 금속이 resin에 흡착되는 경향은 resin에 대한 금속 이온의 친화도(affinity)에 따라 달라지므로, 이를 통해 여러 금속이 있는 혼합물에서 원하는 금속을 분리할 수 있다. 그래

프를 통해 금속의 종류에 따른 흡착량의 차이와 흡착제의 농도 증가에 따른 금속 흡착량의 변화를 확인할 수 있다(Fig. 1(d)).

3.2. 분리막을 이용한 희소금속 회수

분리막 공정은 여러 물질이 막을 투과하는 과정에서 각 성분의 투과속도 차이를 통해 물질을 분리하는 방식이다[14,15,20]. 대표적인 분리막 공정에는 정밀여과(microfiltration), 한외여과(ultrafiltration), 나노여과(nanofiltration), 역삼투(reverse osmosis)가 있다. 정밀여과, 한외여과는 다른 분리막에 비해 기공이 크기 때문에 중금속을 회수하기 어렵다. 나노여과, 역삼투는 중금속 회수가 가능하지만, 공정 과정에서 파울링 문제가 발생하고 높은 작동 압력이 요구되므로 경제성이 낮다는 한계가 있다.

이와 같은 한계를 극복하려는 시도로 최근에는 흡착제와 분리막을 혼합한 흡착분리막에 대한 연구가 진행되고 있다[20,21]. 폐수가 표면에 흡착제가 있는 분리막을 통해 흐르는 과정에서 폐수 속의 중금속이 분리막의 표면에 흡착되어 회수된다(Fig. 2) 흡착제에 있는 흡착리간드가 회수 성능을 높여주기 때문에 중금속 회수가 어려웠던 정밀여과막, 한외여과막으로도 흡착 공정이 가능해진다[15]. 이 공정은 기존의 나노여과막, 역삼투막을 이용한 공정에서의 파울링 문제와 높은 작동 압력으로 발생하는 문제를 완화할 수 있고, 흡착을 통한 회

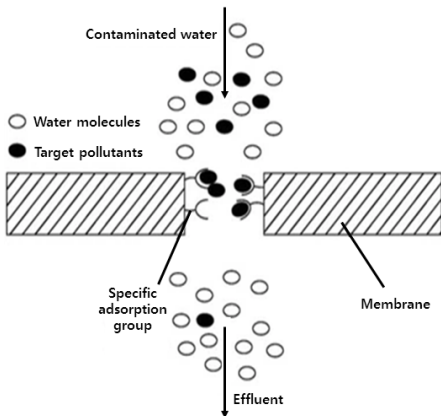
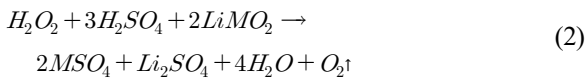


Fig. 2. The principle of adsorptive membrane.

수가 가능하므로 효과적으로 중금속을 분리할 수 있다. 또한 산처리를 통한 탈착 과정을 거치면 분리막을 재사용할 수 있다는 장점도 있다. 높은 회수율을 얻기 위해서 넓은 표면적을 가진 분리막에 다량의 흡착 반응기가 균일하게 분포된 흡착분리막을 제작하는 것이 중요하다.

3.3. 침출을 이용한 희소금속 회수

침출(precipitation)은 무기산(황산, 질산), 유기산(아세트산, 시트르산), 염기(수산화나트륨)처리방식이 있으며 금속의 산화를 유발하여 이온상태로 용출하는 공정이다[14,22]. 주로 취급이 용이하고 가격이 저렴한 황산이 사용된다. 침출율을 높이기 위해 과산화수소를 환원제로 첨가한다. 침출 후 활물질에 포함된 불순물을 제거하기 위해 수산화나트륨을 이용해 pH를 조정하여 철, 알루미늄 등을 제거한다.



(M = Ni, Co, Mn)

반응은 위에 제시한 반응식을 따라 진행되고, Ni은 25.6%, Co는 23.2% Mn은 18.3%의 회수율로 보고되었다.

4. 회수 공정

4.1. 습식 공정

습식 공정(hydrometallurgical)은 전처리와 후처리로

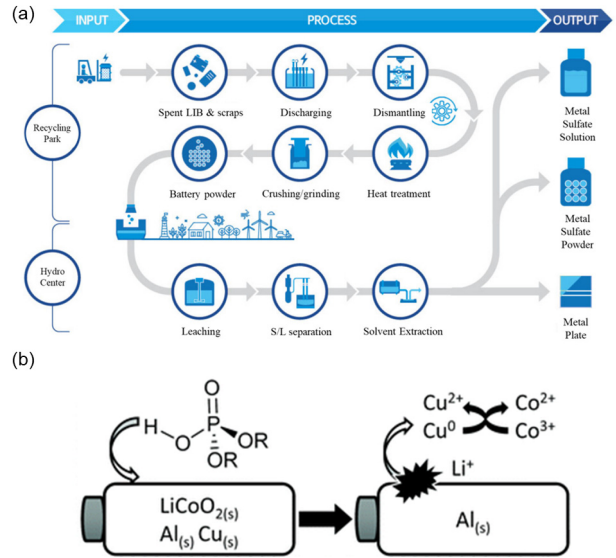


Fig. 3. (a) The LIB recycling process operated by SungEel Hitch Company, (b) Removal process through solvent extraction.

구성되며, 전처리 공정은 폐배터리를 방전 및 비활성화하고 물리적으로 분류하여 철과 알루미늄으로 이루어진 부품들을 회수한다[23,24]. 이후 파쇄 단계를 거쳐 배터리의 양극 활물질로 이루어진 블랙매스(black mass) 또는 블랙파우더(black powder)를 생산하는 과정이다. 또한 이 공정에는 습식 공정에서의 효율적인 처리를 위해 유가 금속의 농축 및 유기물 등의 오염물이 제거되는 과정이 포함된다. 이 때, 사용 후 배터리의 처리에서 화재와 폭발을 유의해야 한다. 후처리 공정은 고농도 산성 용액 및 환원제 등의 화학적 처리를 통해 블랙파우더에서 유가금속을 추출하는 과정이다(Fig. 3).

습식공정은 건식 공정에 비해 낮은 온도에서 진행되므로 초기 비용과 운영 비용이 낮고 이산화탄소 배출량이 적다는 장점이 있다. 또한, 고가 금속인 Li의 회수가 가능하다는 장점이 있다. 하지만 공정이 여러 단계로 이루어져 복잡하고 인력이 많이 필요하다는 한계가 있다. 또한 화학 용액을 사용하므로 오폐수의 배출이 많고 다량의 폐배터리를 제련하는 것에 어려움이 있어 공정 규모의 제한이 있다.

습식공정에는 황산 침출 원리, 용매 추출 기술, 순서대로 적용되고 결정화, 전기 채취(electro-winning)를 통해 최종 생산물을 생산한다. 첫 번째로, 황산 침출 원리는 황산으로 금속을 산화하여 이온상태로 용출하는 과정이다. 순도를 높이기 위해서 화학물질의 농도, pH,

온도 등의 조건을 정밀하게 조절하고 불순물을 제거하는 과정이 필요하다[25]. 다음으로, 용매 추출 기술로 원하는 금속을 선택적으로 추출한다. 이 기술은 추출제에 있는 수소 양이온과 원하는 금속의 이온의 교환 특성을 이용한 방법이다. 추출에 쓰인 유기상 용매는 탈거한 후 재사용 할 수 있다. 대표적인 용매로 D2EHPA, PC88A, Cyanex 272, Versatic Acid-10이 있다[24,26]. 추출된 금속 용액은 결정화와 전해 채취를 통해 각각 화합물 소재와 단일 금속의 최종적인 형태로 생산된다[24]. 먼저, 결정화를 통해 용매 추출로 분리 정제된 유가금속으로 고순도 화합물 소재를 생산할 수 있다. 대표적인 고순도 화합물로는 황산코발트, 황산니켈, 황산망간, 탄산리튬 등이 있다. 증발농축기술과 연속냉각 기술을 통해 99% 이상 회수할 수 있다. 전해채취를 통해 고순도 용해 추출 후 정제된 유가금속으로 단일 물질 형태의 금속을 생산할 수 있다.

4.2. 건식 공정

건식공정(pyrometallurgical)의 첫번째 단계는 방전된 폐배터리를 건식 용융로에 넣고 메탈파우더(Ni, Co 등)와 슬래그(Li, Mn 등) 형태로 변형하는 것이다[26]. 이들은 밀도차에 의해 하부 합금층과 상부 슬래그 층으로 나뉜다. 하부 합금층에서는 니켈, 코발트, 구리가 녹는 점에 따라 추출되고, 상부 슬래그 층에는 분자 구조가 안정적이어서 환원되지 않는 리튬, 알루미늄, 망간이 남는다. 이후, 습식 공정을 통해 상부 슬래그 층의 유가금속이 추출된다. 이 공정은 많은 양의 전지를 한 번에 처리할 수 있고, 공정이 간단하다는 점과 오펜수의 발생가능성이 낮다는 장점을 가진다. 하지만 고온의 용융로를 사용하므로 초기 비용과 공정의 운용 비용이 높고, 이산화탄소 배출량이 많다는 한계가 있다. 또한, 유해가스를 처리하는 시설이 필요하고 건식 공정만으로는 슬래그의 Li, Mn의 회수가 불가능하다는 단점이 있다. 특히, 고가 금속인 Li 회수의 어려움이 있어 수익성이 낮다.

Umicore사에서는 건식 공정과 습식 공정을 혼합하여 독자적인 공정을 이용하고 있다. 제련소에 배터리를 넣어서 녹인 후 파우더와 슬래그로 분류한다. 이후 파우더에서 금속을 추출하고 슬래그에서 Li를 추출한다. 습식 공정을 단독으로 진행하는 것에 비해 전처리과정이 없어 공정이 간소화되는 장점이 있다. Umicore에서는 이 방식으로 Co, Ni를 최대 95% 수준까지 재활용한

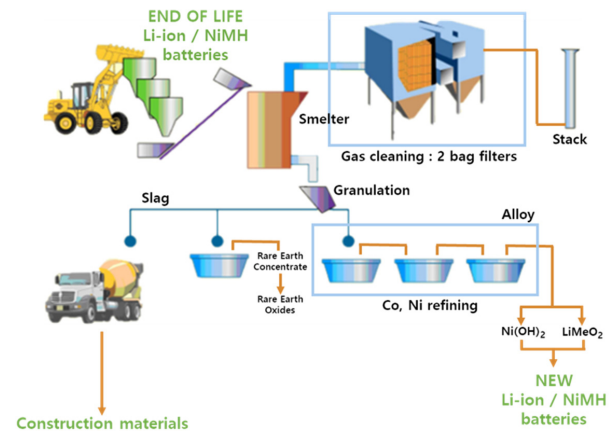


Fig. 4. Pyrometallurgical recycling process.

다(Fig. 4).

4.3. 직접 공정

직접 공정은 금속이 아닌 양극재 전구체(precursor) 형태로 추출하는 공정이다[24]. 전처리 과정은 습식 공정과 유사하지만 후처리 공정에서 화학 용액 및 첨가제를 넣어 제조사의 레시피에 맞추어 양극재 전구체 용액을 바로 만든다는 차이가 있다. 첫 번째로 침출 및 중화 공정을 통해 Ni, Co, Mn을 이온화하고 불순물을 제거한다. 다음으로 용매 추출 공정으로 Ni, Co, Mn을 동시에 회수하여 혼합액 형태로 제조한다. 마지막으로 튜닝 공정을 거쳐 고객사의 규격에 맞춰 제품의 농도를 조절한다. 금속을 추출하는 과정이 없으므로 비용이 저렴하다고 공정이 간소하다는 장점이 있다. 하지만 고객사의 품질 기준에 맞추어 양극재 전구체 용액을 생산하는 것에 어려움이 있다.

5. 회수 공정의 발전 방향

5.1. 공정 비용 절감

Li-cycle사의 Spoke & Hub 기술은 전처리 과정인 스포크(Spoke) 공정과 후처리 과정인 허브(Hub) 공정으로 구성된다[29]. 기존의 공정에서 열을 가하거나 재료를 태우는 방식으로 진행되었던 전처리 과정과 달리, 스포크 공정은 자체적으로 개발한 솔루션을 통해 저온에서 재료를 파쇄하는 침수 파쇄(submerged shredding) 기술로 블랙파우더를 생산한다. 이후 허브 공정에서 침출을 통해 금속을 회수한다(Fig. 5). 이 방식은 배터리

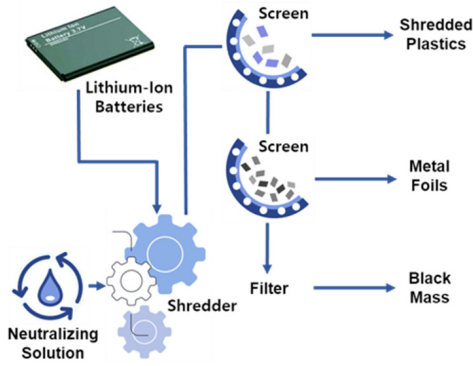


Fig. 5. Spoke and Hub system in battery recycling process by Li cycle holdings co.

를 모듈이나 셀 단위로 분해하지 않고 팩 상태로 처리하여 비용이 적게 들고 방전 과정이 필요하지 않아 안전상의 문제에서도 자유로울 수 있다. 또한 추출 과정 중 고체 폐기물을 최소화하고 사용된 폐수는 100% 재활용하는 폐수 무방류 시스템(zero liquid discharge, ZLD)를 사용하는 친환경적인 공법이 적용된다. 배터리 재료의 회수율은 95% 이상이다.

5.2. 리튬 회수율 향상

기존의 습식 공정에서는 가장 마지막에 회수되는 리튬은 농도가 낮고 탄산리튬 형태로 회수되어 경제성이 낮다[30,31]. SK innovation에서는 battery metal recycle (BMR) 공정을 통해 전처리 공정을 거친 블랙파우더에 수소를 넣어 수소 환원한 뒤, 물로 추출하여 수산화리튬 형태로 회수한다(Fig. 6). 이는 적은 에너지를 사용하여 리튬을 직접 회수할 수 있고 화학 약품 사용량을 줄일 수 있어 경제성이 좋고 회수 효율이 높다. 또한 이 방식은 이산화탄소 절감 효과가 높다. 광산에서 직접 생산하는 방식 대비 74%, 염호에서 생산하는 방식 대비 41% 저감된다.

5.3. 공정의 간소화

여러 단계의 추출 공정을 간소화하는 시도로 하나의 용기에서 밀도 차이를 이용해 물질을 분리하는 방법이 있다[32]. 이는 금속 혼합물이 있는 공급층(feed)과 분리된 금속이 모이는 수용층(acceptor), 두 층이 섞이는 것을 방지하고 금속을 이동시키는 운반층(shuttle)으로 구성된다(Fig. 7(a)). 공급층은 높은 산성을, 수용층은 낮은 산성을 띠고 밀도차에 의해 서로 섞이지 않는다.

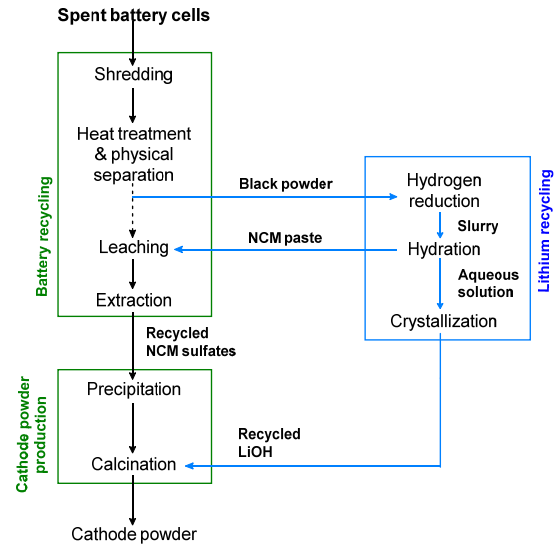


Fig. 6. The system boundary of the battery recycling LCA and recycling process. The green light area represents typical hydrometallurgical process.

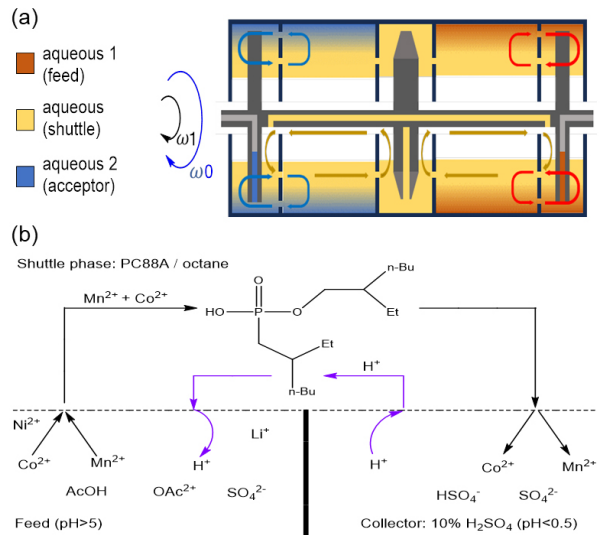


Fig. 7. (a) Cross-section of the segmented concentric-liquid reactor loaded with liquids in the stirring mode, (b) Scheme of the separation of Mn(II) and Co(III) from Li (I) and Ni(II).

운반층에는 유기용매인 추출제가 녹아있어 공급층에서 수용층으로 원하는 금속을 이동시켜 추출할 수 있다 (Fig. 7(b)). 이는 하나의 반응기에서 공급층과 수용층을 교체하는 간단한 방식으로 지속적인 분리를 할 수 있다는 장점이 있다.

6. 결 론

최근 배터리 시장의 급격한 성장으로 폐배터리 배출량 및 원료 생산 과정에서의 온실가스 발생량이 증가하여 환경 문제가 발생하고 있다. 또한 배터리 원재료 가격 급등과 공급망 유지 경쟁이 높아짐에 따라 이를 동시에 해결할 수 있는 배터리 재활용 기술을 개발하는 연구들이 진행되고 있다. 침전법, 흡착법, 용매추출법, 전기화학법 등 여러 기술들이 개발되었으며, 이를 기반으로 산업에서는 건식, 습식, 직접 회수 공정을 설계하여 폐배터리 속 희소금속의 회수 및 재활용에 적용하고 있다.

전 세계적인 원료 재활용의 의무화에 따라 소재 회수율을 높이기 위한 공정 기술 개발과 연구가 필요할 것으로 여겨진다. 그 예로 전처리 과정 중 높은 열이 필요한 열처리 과정을 저온에서 진행되는 침수 파쇄 공정으로 대체하여 공정 비용을 절감한 사례와, 추가적인 화학 과정을 통해 리튬 회수율을 향상한 기술이 개발되고 있다. 또한 폐수 속 용액을 밀도 차이를 통해 단일 용기에서 희소금속을 추출하여 반복되는 추출 공정을 간소화하는 연구도 진행되었다. 이처럼 기술적, 경제적으로 향상된 연구개발이 이루어진다면, 향후 배터리 재활용 시장에서 순환 경제로의 전환되는 흐름의 핵심으로 자리 잡을 것이다.

감 사

이 논문은 2021년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원(20217510100020, 저품위 공정 폐액으로부터 희소금속 회수 공통 핵심(농축, 분리회수)공정 플랫폼 구축 및 소재화 기술 개발)과 2022년도 정부(환경부)의 재원으로 한국환경산업기술원의 지원을 받아 수행된 연구임(2022R1A2C2006812, 혁신도전형 플라즈마 활용 폐유기물 고부가가치 기초 원료화 기술개발사업).

Reference

1. T. Kim, W. Song, D.-Y. Son, L. K. Ono, and Y. Qi, "Lithium-ion batteries: Outlook on present, future, and hybridized technologies", *J. Mater. Chem. A*, **7**, 2942-2964 (2019).
2. J.-M. Tarascon and M. Armand, "Issues and challenges facing rechargeable lithium batteries", *Nature*, **414**, 359-367 (2001).
3. J. B. Goodenough and K.-S. Park, "The Li-Ion rechargeable battery: A perspective", *J. Am. Chem. Soc.*, **135**, 1167-1176 (2013).
4. Grand View Research, "Lithium market size, share & trends analysis report by product (carbonate, hydroxide), by application (automotive, consumer electronics, grid storage), by region (Asia Pacific, EU, North America), and segment forecasts, 2024-2030", *Adv. Mater.*, **116** (2023).
5. D. L. Thompson, J. M. Hartley, S. M. Lambert, M. Shiref, G. D. J. Harper, E. Kendrick, P. Anderson, K. S. Ryder, L. Gaines and A. P. Abbott, "The importance of design in lithium ion battery recycling - A critical review", *Green Chem.*, **22**, 7585-7603 (2020).
6. Investor Presentation_August 2023, <https://www.lme.com>, November 29 (2023).
7. J. B. Dunn, L. Gaines, J. C. Kelly, C. James, and K. G. Gallagher, "The significance of Li-ion batteries in electric vehicle life-cycle energy and emissions and recycling's role in its reduction", *Energy Environ. Sci.*, **8**, 158-168 (2015).
8. E. A. Olivetti, G. Ceder, G. G. Gaustad, and X. Fu, "Lithium-ion battery supply chain considerations: Analysis of potential bottlenecks in critical metals", *Joule*, **1**, 229-243, (2017).
9. Y. Tian, G. Zeng, A. Rutt, T. Shi, H. Kim, J. Wang, J. Koettgen, Y. Sun, B. Ouyang, T. Chen, Z. Lun, Z. Rong, K. Persson, and G. Ceder, "Promises and challenges of next-generation "beyond Li-ion" batteries for electric vehicles and grid decarbonization", *Chem. Rev.*, **121**, 1623-1669 (2021).
10. Y. Zhang, H. Wang, W. Li, and C. Li, "Quantitative identification of emissions from abused prismatic Ni-rich lithium-ion batteries", *eTransportation*, **2**, 100031 (2019).
11. A. Wołowicz and Z. Hubicki, "The use of the che-

- lating resin of a new generation Lewatit MonoPlus TP-220 with the bis-picolylamine functional groups in the removal of selected metal ions from acidic solutions”, *Chem. Eng. J.*, **197**, 493-508 (2012).
12. A Dąbrowski, “Adsorption—from theory to practice”, *Adv. Colloid Interface Sci.*, **93**, 135-224 (2001).
 13. Y. An, W. Zhang, X. Zhang, Y. Zhong, L. Ding, Y. Hao, M. White, Z. Chen, Z. An, and X. Wang, “Adsorption recycling and high-value reutilization of heavy-metal ions from wastewater: As a high-performance anode lithium battery”, *Langmuir*, **39**, 12324-12335 (2023).
 14. F. Fu and Q. Wang, “Removal of heavy metal ions from wastewaters: A review”, *J. Environ.*, **92**, 407-418 (2011).
 15. L. Qalyoubi, A. Al-Othman, and S. Al-Asheh, “Recent progress and challenges on adsorptive membranes for the removal of pollutants from wastewater. Part I: Fundamentals and classification of membranes”, *Case Stud. Chem. Environ. Eng.*, **3**, 100086 (2021).
 16. S. Babel and T. A. Kurniawan, “Low-cost adsorbents for heavy metals uptake from contaminated water: A review”, *J. Hazard. Mater.*, **97**, 219-243 (2003).
 17. H. Qiu, L. Lv, B. Pan, Q. Zhang, W. Zhang, and Q. Zhang, “Critical review in adsorption kinetic models”, *Sci. A*, **10**, 716-724 (2009).
 18. W. S. Chai, J. Y. Cheun, P. S. Kumar, M. Mubashir, Z. Majeed, F. Banat, S. H. Ho, and P. Show, “A review on conventional and novel materials towards heavy metal adsorption in wastewater treatment application”, *J. Clean. Prod.*, **296**, 12658 (2021).
 19. D. Fila, Z. Hubicki, and D. Kołodyńska, “Recovery of metals from waste nickel-metal hydride batteries using multifunctional Diphonix resin”, *Adsorption (Boston)*, **25**, 367-382 (2019).
 20. K. C. Khulbe and T. Matsuura, “Removal of heavy metals and pollutants by membrane sorption techniques”, *Appl. Surf. Sci.*, **8**, 19 (2018).
 21. T. S. Vo, M. Mohsin Hossain, H. M. Jeong, and K. Kim, “Heavy metal removal applications using adsorptive membranes”, *Nano Convergence*, **7**, 36 (2020).
 22. X. Fan, C. Song, X. Lu, Y. Shi, S. Yang, F. Zheng, Y. Huang, K. Liu, H. Wang, and Q. Li, “Separation and recovery of valuable metals from spent lithium-ion batteries via concentrated sulfuric acid leaching and regeneration of $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ ”, *J. Alloys Compd.*, **863**, 158775 (2021).
 23. K. Yoo, “Lithium Ion Battery Recycling Industry in South Korea”, *Resour. Recycl.*, **32**, 13-20 (2023).
 24. Resources Recycling Research Center, <https://www.kigam.re.kr/main>, October 12 (2023).
 25. V. Gunarathne, A. U. Rajapaksha, M. Vithanage, D. S. Alessi, R. Selvasembian, M. Naushad, S. You, P. Oleszczuk, and Y. S. Ok, “Hydrometallurgical processes for heavy metals recovery from industrial sludges”, *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.*, **52**, 1022-1062 (2020).
 26. Y. Song, L. He, Z. Zhao, and X. Liu, “Separation and recovery of lithium from Li_3PO_4 leaching liquor using solvent extraction with saponified D2EHPA”, *Sep. Purif.*, **229**, 11582 (2019).
 27. N. Peeters, K. Binnemans, and S. Riaño, “Recovery of cobalt from lithium-ion battery cathode material by combining solvleaching and solvent extraction”, *Green Chem.*, **24**, 2839-2852 (2022).
 28. J. Tytgat, “The Recycling Efficiency of Li-ion EV batteries according to the European Commission Regulation, and the relation with the End-of-Life Vehicles Directive recycling rate”, *World Electr. Veh.*, **6**, 1039-1047 (2013).
 29. D. L. Thompson, J. M. Hartley, S. M. Lambert, M. Shiref, G. D. J. Harper, E. Kendrick, P. Anderson, K. S. Ryder, L. Gaines, and A. P. Abbott, “The importance of design in lithium ion battery recycling - A critical review”, *Green Chem.*, **22**, 7585-7603 (2020).
 30. E. Yoo, U. Lee, J. C. Kelly, and M. Wang,

- “Life-cycle analysis of battery metal recycling with lithium recovery from a spent lithium-ion battery”, *Resour Conserv Recycl.*, **196**, 107040 (2023).
31. J. Y. NA, M. S. Koo, Y. H. La, and S. R. Son, “Method for recovering active metal of lithium secondary battery”, US Patent 20210028515A1, January 28 (2021).
32. C. Quintana, O. Cybulski, B. Mikulak-Klucznik, T. Klucznik, and B. A. Grzybowski, “One-pot, three-phase recycling of metals from Li-Ion batteries in rotating, concentric-liquid reactors”, *Adv. Mater.*, **35**, 2211946 (2023).