

코발트와 니켈 금속혼합물로부터 무기산 및 유기산에 의한 침출

문현승 · 송시정 · Thanh Tuan Tran · §이만승

목포대학교 공과대학 신소재공학과

Leaching of Cobalt and Nickel from Metallic Mixtures by Inorganic and Organic Acid Solutions

Hyun Seung Moon, Si Jeong Song, Thanh Tuan Tran and §Man Seung Lee

Department of Advanced Material Science & Engineering, Institute of Rare metal, Mokpo National University, Chonnam 58554, Republic of Korea

요 약

페리튬이온배터리에 함유된 코발트, 니켈 및 구리를 회수하기 위한 공정 개발의 일환으로 단일금속과 금속혼합물의 침출을 조사했다. 이를 위해 산화제를 첨가하지 않은 무기산과 유기산을 침출제로 사용했다. 본 논문의 실험조건에서 산화제가 없는 무기산과 유기산에서 구리는 전혀 침출되지 않았다. 염산과 황산용액에서 산의 농도, 반응온도, 반응시간 및 광액농도를 변화시켜 단일 금속을 모두 용해시킬 수 있는 조건을 구했다. 또한 염산과 황산용액에서 금속혼합물로부터 니켈과 코발트를 99% 이상 침출시킬 수 있는 조건을 조사했다. 메탄술폰산으로 코발트와 니켈 금속혼합물을 침출시 낮은 반응온도에서 코발트가 선택적으로 침출됐다.

주제어 : 금속혼합물, 코발트, 니켈, 침출

Abstract

Leaching experiments from single metal and metallic mixtures were conducted to develop a process for the recovery of cobalt, copper, and nickel in spent lithium ion batteries. Inorganic and organic acid solutions without oxidizing agents were employed. No copper was dissolved in the absence of an oxidizing agent in the leaching solutions. The leaching condition to completely dissolve single metal of cobalt and nickel was determined based on acid concentration, reaction temperature and time, and pulp density. The leaching condition to dissolve all of cobalt and nickel from the metallic mixtures was also obtained. Leaching of the metallic mixture with methanesulfonic acid led to selective dissolution of cobalt at low temperatures.

Key words : Metallic mixture, Cobalt, Nickel, Leaching

1. 서 론

리튬이온배터리는 우수한 성능으로 인해 휴대전화 및

노트북과 같은 휴대용 장치의 발전과 함께 수요가 급증하고 있다¹⁾. 2010년 세계 리튬이온배터리의 생산량은 약 46억개에서 2012년에는 약 50억개로 증가했으며, 전기자동차

· Received : March 10, 2021 · Revised : April 7, 2021 · Accepted : April 8, 2021

§ Corresponding Author : Man Seung Lee (E-mail : mslee@mokpo.ac.kr)

Department of Advanced Materials Science & Engineering, Mokpo National University, 1666 Yeongsan-ro, Cheonggye-myeon, Muan-gun, Chonnam 58554, Korea

©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.

차 시장의 급속한 발전과 함께 2025년에는 136만톤의 페리튬이온배터리가 발생할 것으로 예측된다²⁻⁴⁾. 따라서 장래 발생할 대량의 페리튬이온배터리를 처리하기 위해 경제적이고 효율적인 공정 개발이 필요하다⁵⁾. 특히 리튬이온배터리에는 5~20% 코발트, 5~10% 니켈, 5~7% 리튬 등의 유기금속이 함유되어 있으므로 이를 효과적으로 회수하기 위해 현재 다양한 연구가 진행되고 있다⁶⁾.

페리튬이온배터리에서 유기금속을 회수하는 것은 코발트와 니켈을 함유한 원광이 전무한 국내의 경우 소재 확보 측면에서도 바람직하다⁷⁾. 그러나 페리튬이온배터리는 리튬의 폭발 위험 및 배터리 내 중금속으로 인한 환경오염 문제를 초래할 수 있어 처리에 많은 어려움이 따른다⁸⁾. 최근 이러한 문제의 대안으로 Umicore 공정이 주목받고 있다⁹⁾. Umicore 공정은 건식과 습식단계로 구성되어 있으며, 건식단계에서 리튬을 슬라그로 분리하고, 코발트, 니켈, 구리와 같은 산화물은 금속으로 환원된다. 여기서 금속 혼합물은 후속공정인 습식제련을 통해 분리정제한다¹⁰⁾. 일반적으로 페리튬이온배터리내 금속은 염산, 황산 및 질산과 같은 무기산에 침출시킨 다음 습식법인 용매추출, 침전 및 이온교환으로 분리한다¹¹⁻¹⁵⁾. 그러나 침출에서 금속의 회수율을 높이기 위해서는 과산화수소와 같은 산화제를 첨가하거나 고농도의 산을 필요로 한다¹⁶⁾.

본 연구에서는 페리튬이온배터리에 함유된 유기금속을 회수하기 위해 건식용융환원공정에서 얻은 금속혼합물을 침출하기에 앞서 코발트, 니켈 및 구리금속의 최적 침출조건에 대해 조사했다. 침출제로는 무기산과 유기산을 사용해 비교했으며, 산농도, 반응온도, 반응시간 및 광액농도를 조절해 각 금속의 침출거동에 미치는 영향을 조사했다. 구리금속의 경우 산화제를 첨가하지 않으면 침출되지 않으므로 니켈과 코발트의 중량비를 동일하게 섞은 금속혼합물의 침출거동을 조사했다. 염산과 황산용액에서 코발트와 니켈 모두 99% 이상 침출이 가능했다. 반면 메탄술폰산으로 금속혼합물을 침출하면 코발트가 선택적으로 침출됐다.

2. 실험재료 및 실험방법

본 연구를 위해 니켈(Ni, size: 3-7 μm , Alfa Aesar, 99.9%), 코발트(Co, size < 44 μm , Alfa Aesar, 99.5%) 및 구리(Cu, granular, Junsei Chemical Co., 99.5%) 금속분

말을 사용했다. 각 금속분말을 50 g/L의 광액농도조건에서 단독 침출시켜 각 금속의 침출거동을 먼저 조사했다. 이와 같이 각 금속을 단독으로 침출시 산화제가 없는 조건에서 구리가 전혀 침출되지 않는 것을 확인했다. 따라서 산화제가 없는 조건에서도 침출되는 코발트와 니켈을 동일한 중량으로 혼합하여 100 g/L의 광액농도에서 침출시켰다. 침출용액으로는 염산(Daejung chemicals & metals Co. Ltd., Korea., 35%), 황산(H_2SO_4 , Daejung Co., >95%, Korea), 메탄술폰산($\text{CH}_3\text{SO}_3\text{H}$, Daejung Co., >99.0%, Korea), 아세트산(CH_3COOH , Samchun pure chemical. Co., >99.5%, Korea), 푸말산($\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_4$, Daejung Co., >99.0%, Korea), 시트르산($\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$, Daejung Co., >90.0%, Korea) 및 젯산($\text{C}_3\text{H}_6\text{O}_3$, Daejung Co., >99.0%, Korea)을 2차 증류수에 희석해 준비했다.

침출실험은 20 mL 침출용액이 담긴 100 mL 3구 비이커형 반응조를 디지털 가열식 자력 교반기(WiseStir MSH-20D, Daihan Scientific Co., Korea)에 올려놓고, 온도를 조절해 300 rpm으로 교반해 수행했다. 침출용액이 반응온도에 도달하면 일정량의 금속분말을 첨가한 다음 반응시간 동안 교반했다. 반응시간 뒤 침출용액은 여과지를 사용해 용액과 잔사로 분리했다. 용액내 금속의 농도는 ICP-OES(Arcos, Spectro, Germany)로 측정했으며, 금속의 침출률은 물질수지를 이용해 다음 식으로 구했다.

$$\text{Dissolution efficiency}(\%) = \frac{V_M \times C_M}{M_0} \times 100\% \quad (1)$$

여기서 V_M 과 C_M 은 각각 침출용액에서 금속 이온의 부피와 농도이고, M_0 는 침출 전 시료에서 금속의 질량이다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 단일 금속의 침출거동

코발트, 니켈 및 구리의 침출거동을 조사하기 위해 각 금속분말을 무기산과 유기산을 사용해 단독으로 침출했다. 무기산으로는 염산과 황산, 유기산으로는 메탄술폰산, 아세트산, 푸말산, 시트르산 및 젯산을 사용했다. 각 산의 농도는 2 M, 반응온도 60°C, 반응시간 60분, 교반속도 300 rpm, 광액농도 50 g/L로 고정했고, 실험결과를 Table 1에 나타냈다. 본 논문의 실험조건에서 표준환원전위가

Table 1. Leaching percentage of each metal from several inorganic and organic acid solutions

	HCl	H ₂ SO ₄	CH ₃ SO ₃ H	CH ₃ COOH	C ₃ H ₆ O ₃	C ₄ H ₄ O ₄	C ₆ H ₈ O ₇
Co	85.94	78.1	55.04	5.04	12.3	15.77	13.11
Ni	100	70.77	42.05	4.2	3.67	9.12	4.01
Cu	0	0	0	0	0	0	0

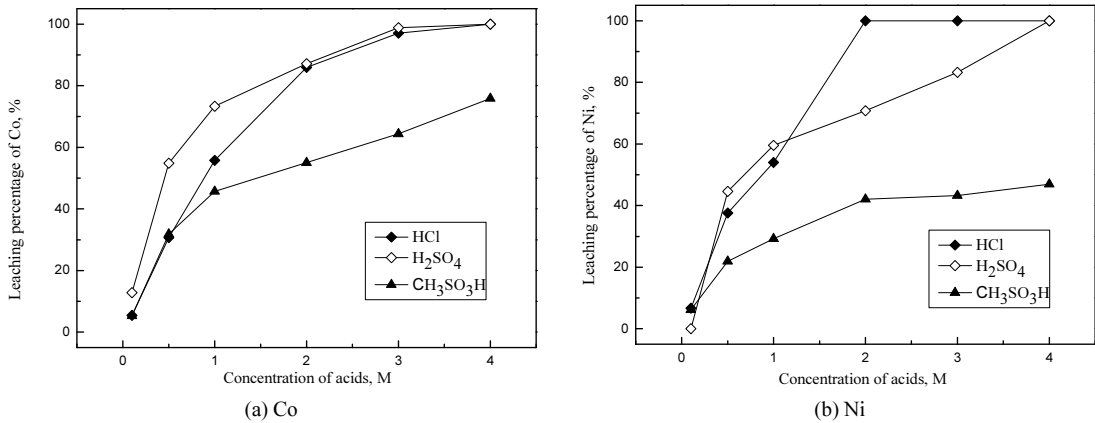


Fig. 1. Effect of acids concentration on the leaching percentage of (a) Co, (b) Ni (Concentration of acids : 0.1~4 M, pulp density: 50 g/L, temperature: 60°C, stirred speed : 300 rpm, time : 1 h).

높은 구리는 전혀 침출되지 않았으며, 구리를 용해시키기 위해서는 산화제가 필요하다¹⁷⁾. 또한 메탄술폰산을 제외한 유기산에서 금속의 침출률이 매우 낮으므로 추가실험을 수행하지 않았다.

3.1.1. 산농도의 영향

산농도가 금속의 침출률에 미치는 영향을 조사하기 위해 침출용액의 산농도를 0.1에서 4 M까지 변화시켰다. 이때 반응온도는 60°C, 반응시간 60분, 광액농도는 50 g/L로 고정했고, 결과를 Fig. 1에 나타냈다. 코발트와 니켈 모두 유기산보다 무기산에서 침출률이 높았고, 산농도가 증가함에 따라 침출률이 증가했다. 니켈은 2 M이상 염산에서 완전히 침출됐으며, 4 M의 무기산에서 니켈과 코발트가 모두 침출됐다. 따라서 무기산에서 두 금속을 침출하기 위해 최소 4 M이상의 농도가 요구된다. 반면 4 M 메탄술폰산에서 코발트와 니켈의 최대 침출률은 각각 75.8, 46.9%로 무기산과 비교해 낮았다. 염산, 황산 및 메탄술폰산의 pK_a의 값은 각각 -6.3, -3.0, -1.9로 메탄술폰산에서 침출률이 염산과 황산보다 낮은 이유는 비교적 산성도가 작기 때문이다¹⁸⁾.

3.1.2. 반응온도 및 반응시간의 영향

3.1.1절의 연구에 의하면 4 M이상 무기산에서 코발트와 니켈이 대부분 침출되므로 무기산 및 유기산에서 반응온도 및 반응시간의 영향을 알아보기 위해 모든 산농도는 2 M, 광액농도는 50 g/L로 고정했다. 이때 반응온도는 20~80°C까지, 반응시간은 10~180분까지 변화시켰고 실험결과를 Figs. 2와 3에 나타냈다.

반응온도가 증가함에 따라 모든 산에서 코발트와 니켈의 침출률은 증가했다. 80°C의 메탄술폰산에서 코발트와 니켈의 침출률이 97.8, 84.6%인 것을 제외하면 모든 산에서 코발트와 니켈이 99%이상 침출됐다. 따라서 금속의 침출률을 높이기 위해 반응온도를 80°C로 유지하는 것이 바람직하다. 무기산의 경우 코발트는 염산보다 황산에서 침출률이 높았고, 니켈은 염산에서 침출률이 더 높았다. 이는 진한 염산용액에서 코발트이온은 CoCl₄²⁻를 형성해 쉽게 침출되고, 니켈의 경우는 코발트에 비해 착물을 형성하려는 경향이 작기 때문이다¹⁷⁾. 반면 메탄술폰산에서 두 금속의 침출률은 비슷했다.

반응시간이 침출에 미치는 영향을 조사하기 위해 반응온도를 60°C로 고정했다. 반응시간 1시간까지 코발트와

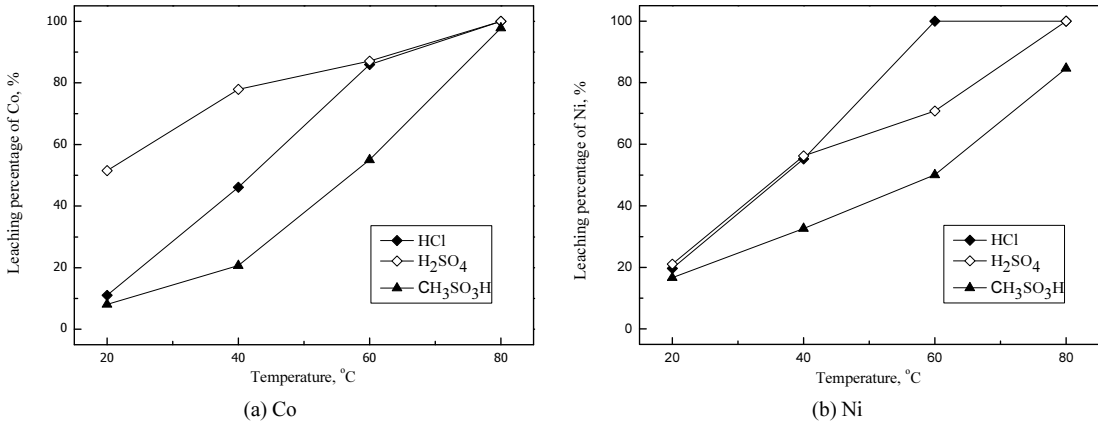


Fig. 2. Effect of reaction temperature on the leaching percentage of (a) Co, (b) Ni (Concentration of acids : 2 M, pulp density: 50 g/L, temperature: 20~80°C, stirred speed : 300 rpm, time : 1 h).

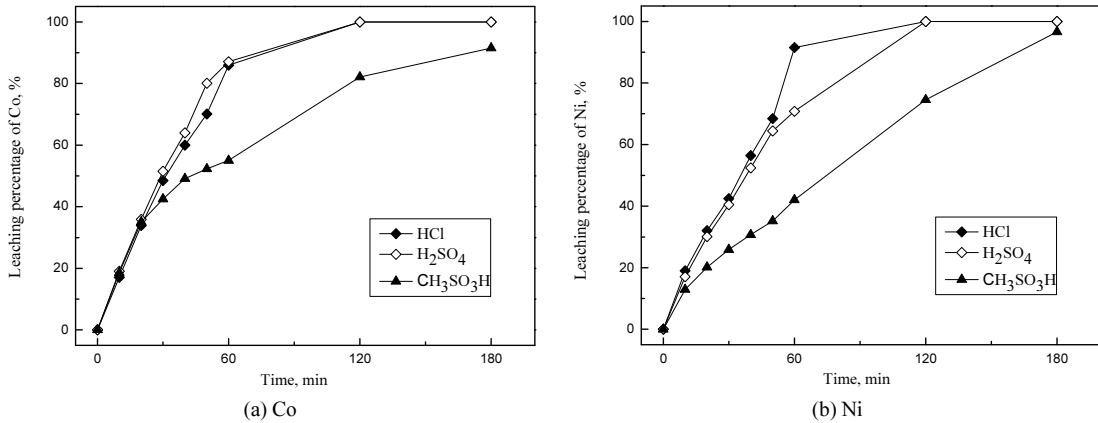


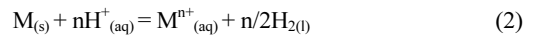
Fig. 3. Effect of reaction time on the leaching percentage of (a) Co, (b) Ni (Concentration of acids : 2 M, pulp density: 50 g/L, temperature: 60°C, stirred speed : 300 rpm, time : 10~180 min).

니켈의 침출률은 급격히 증가했고, 2시간 이후 무기산에서 두 금속은 완전히 침출됐다. 따라서 무기산에서 두 금속을 침출하기 위해 최소 2시간 이상의 반응시간이 필요하므로 후속실험에서 광액농도의 영향을 조사하기 위해 반응시간을 1시간으로 고정했다. 반면 메탄술폰산의 경우 반응시간 3시간 이후에도 완전히 침출되지 않았으며, 이 때 코발트와 니켈의 최대 침출률은 각각 91.5%와 96.5%였다.

3.1.3. 광액농도의 영향

코발트와 니켈의 침출거동에 미치는 광액농도의 영향을 알아보기 위해 광액농도를 30에서 60 g/L까지 변화시켰다. 이 때 산농도는 2 M, 반응온도 60°C, 반응시간 1시

간으로 고정했고, 실험결과를 Fig. 4에 나타냈다. 또한 염산, 황산, 및 메탄술폰산의 각 금속의 침출 반응은 식 (2)와 (3)에 나타냈다.



여기서 M은 각 금속, Mⁿ⁺은 금속이온을 의미하고, A⁻는 Cl⁻, HSO₄⁻, CH₃SO₃⁻과 같은 산의 음이온을 나타낸다.

광액농도가 증가함에 따라 코발트와 니켈의 침출률이 약간 감소했는데, 이는 식 (2)와 (3)에 나타낸 반응식의 화

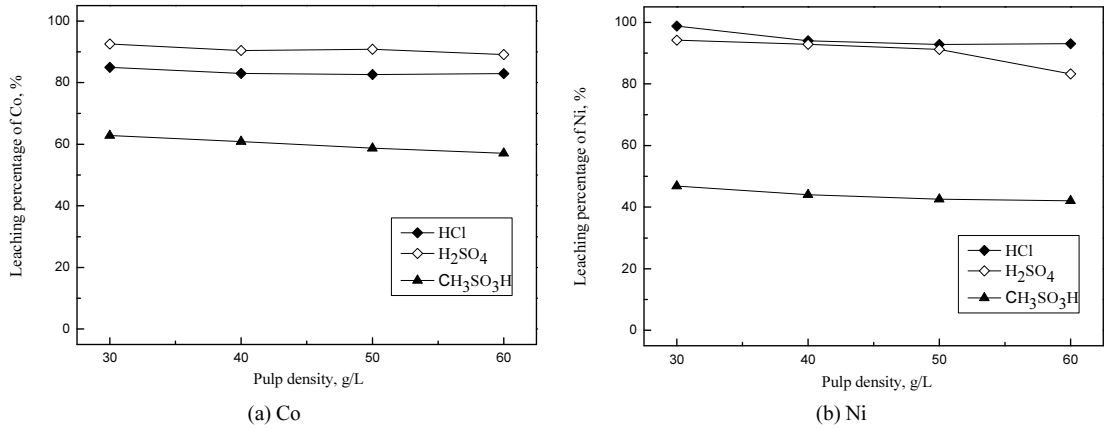


Fig. 4. Effect of pulp density on the leaching percentage of (a) Co, (b) Ni (Concentration of acids : 2 M, pulp density: 30~60 g/L, temperature: 60°C, stirred speed : 300 rpm, time : 1 h).

학량론에 따라 광액농도가 증가할수록 반응에 필요한 산의 양이 충분하지 않기 때문인 것으로 판단된다. 특히, 광액농도가 50 g/L를 초과하면 니켈의 침출률이 급격히 감소하므로 후속실험에서는 광액농도를 50 g/L로 고정했다.

3.2. 코발트와 니켈 금속혼합물에서 코발트의 선택적 침출

일반적으로 페리튬이온배터리의 회수 공정은 플라스틱과 같은 비금속 불순물을 제거한 다음, 코발트, 니켈, 구리 산화물을 금속으로 용융환원시켜 습식법으로 각 금속을 분리한다¹⁹⁾. 본 논문에서와 같이 산화제를 첨가하지 않는 조건에서 구리는 침출되지 않으므로, 구리를 제외한 코발트와 니켈 금속 분말을 동일한 중량으로 혼합해 금속 혼합물을 준비했다. 금속혼합물을 이용한 실험에서 광액농도는 100 g/L로 고정했다.

3.2.1. 유기산과 무기산에서 침출 비교

3.1.3절에서 얻어진 염산, 황산 및 메탄술폰산의 최적 조건에서 금속혼합물의 침출거동을 비교했다. 무기산인 염산과 황산의 경우, 단일 금속으로 침출시 산농도 4 M, 반응온도 80°C, 반응시간 2시간, 50 g/L의 광액 농도 일 때 99%이상 코발트 및 니켈의 침출률을 얻었다. 이 조건에서 100 g/L 금속혼합물 침출시 염산과 황산에서 단독 침출과 동일하게 99% 이상 침출률을 얻었다.

상기 조건에서 무기산에 의해 코발트와 니켈은 대부분 침출되므로 산농도 및 반응온도를 낮춰 두 금속의 침출거

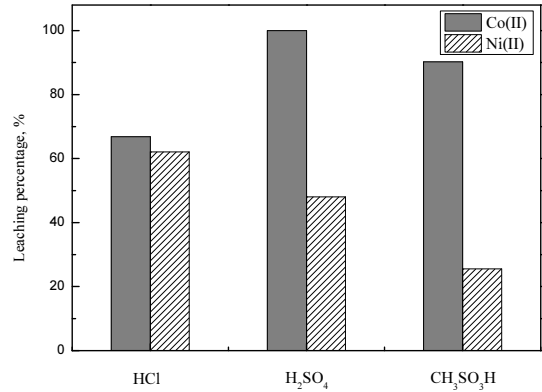


Fig. 5. Leaching percentage of Co and Ni metal mixtures in the acid solutions (Concentration of acids : 2 M, pulp density: 100 g/L, temperature: 60°C, stirred speed : 300 rpm, time : 2 h).

동을 조사했다. 산농도는 2 M, 반응온도 60°C, 반응시간 2시간, 광액농도 100 g/L로 고정했고, 결과를 Fig. 5에 나타냈다. 코발트의 침출률은 황산 > 메탄술폰산 > 염산의 순서로 높았고, 니켈의 경우 염산 > 황산 > 메탄술폰산의 순서로 높았다. 또한 본 논문의 실험조건에서 니켈의 침출률이 코발트에 비해 낮았다. 또한 황산과 메탄술폰산에서 코발트는 니켈보다 선택적으로 침출됐다. 특히, 메탄술폰산에서 코발트의 선택성이 우수했다. 따라서 메탄술폰산에서 두 금속의 분리성을 향상시키기 위해 추가실험을 수행했다.

3.2.2. 메탄술포산에서 코발트의 선택적 침출에 미치는 요인

메탄술포산에서 산농도, 반응온도, 반응시간 및 광액 농도를 변화시켜 금속혼합물에서 두 금속의 분리거동을 조사했다. 광액농도의 영향에 대한 실험을 제외하고 모든 실험에서 광액농도를 100 g/L로 고정했다. 먼저 메탄술포산의 농도를 0.1에서 2 M까지 변화시켜 산농도가 침출에 미치는 영향을 조사했다. 이 때 반응온도는 20°C, 반응시간은 2시간으로 고정했고, 결과를 Fig. 6에 나타냈다. 산농도가 증가함에 따라 두 금속의 침출률은 증가했으나 2 M의 메탄술포산에서 코발트와 니켈의 침출률은 각각 32.1%와 1.28%로 니켈은 거의 침출되지 않았다.

다음으로 온도가 침출에 미치는 영향을 조사하기 위해 반응온도를 20에서 80°C까지 변화시켰다. 이때 산농도는 2 M, 반응시간은 2시간으로 고정했으며 결과를 Fig. 7에 나타냈다. 실험결과 반응온도가 증가함에 따라 니켈의 침출률이 급격히 증가했다. 따라서 두 금속을 침출단계에서 분리하기 위해서는 온도를 낮게 유지하는 것이 유리하므로 후속 실험에서 반응온도를 20°C로 고정했다. 그런데 80°C에서 금속혼합물 침출시 니켈의 침출률은 28.0%로, 니켈금속을 단독으로 침출했을 때 84.6%인 것과 비교해 침출률이 현저히 낮았다. 이는 금속혼합물에서 코발트가 니켈에 비해 높은 선택적 침출거동을 보이기 때문이다. 일반적으로 표준환원전위 값이 클수록 환원이 잘 일어나고,

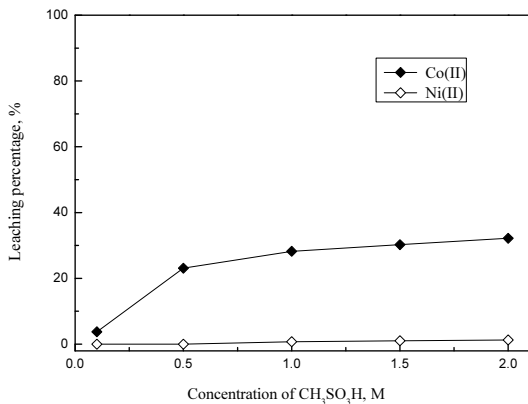


Fig. 6. Effect of acid concentration on the leaching percentage of Co and Ni metal mixtures in CH₃SO₃H solution (Concentration of acids : 0.1~ 2.0 M, pulp density: 100 g/L, temperature: 20°C, stirred speed : 300 rpm, time : 2 h).

코발트와 니켈의 표준환원전위는 각각 -0.28, -0.25 V이다. 표준환원전위가 작은 코발트는 이중금속효과로 인해 니켈 보다 산화하려는 경향이 강해 비교적 침출률이 높다.

다음으로 반응시간이 침출에 미치는 영향을 조사하기 위해 시간을 1에서 6시간까지 변화시켰다. 이 때 메탄술포산의 농도는 2 M, 반응온도는 20°C, 광액농도는 100 g/L로 고정했고, 실험결과를 Fig. 8에 나타냈다. 반응시간이 증가함에 따라 코발트의 침출률은 17.1에서 55.0%로 증가한 반면, 니켈의 침출률은 약간 증가해 6시간 이후 최대

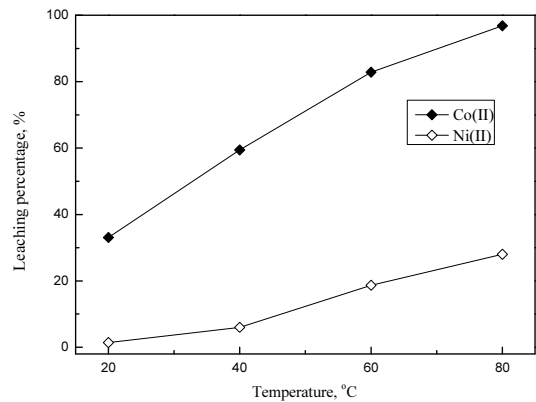


Fig. 7. Effect of reaction temperature on the leaching percentage of Co and Ni metal mixtures in CH₃SO₃H solution (Concentration of acids : 2.0 M, pulp density: 100 g/L, change of temperature: 20~80°C, stirred speed : 300 rpm, time : 2 h).

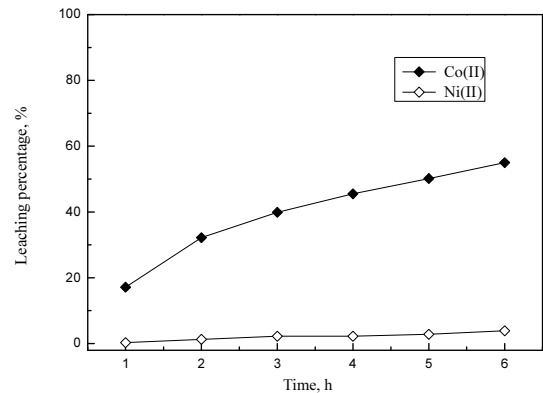


Fig. 8. Effect of reaction time on the leaching percentage of Co and Ni metal mixtures in CH₃SO₃H solution (Concentration of acids : 2.0 M, pulp density: 100 g/L, temperature: 20°C, stirred speed : 300 rpm, time : 1~6 h).

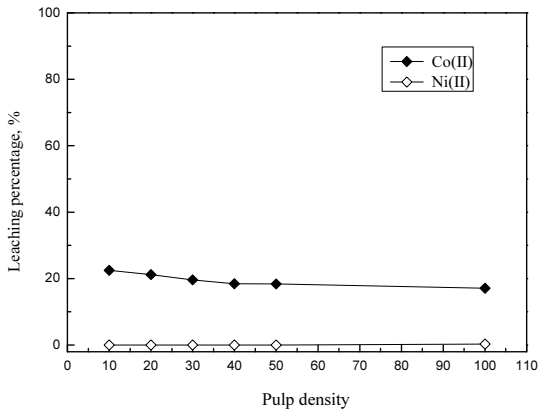


Fig. 9. Effect of pulp density on the leaching percentage of Co and Ni metal mixtures in $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{H}$ solution (Concentration of acids : 2.0 M, change of pulp density: 10~100 g/L, temperature: 20°C, stirred speed : 300 rpm, time : 1 h).

3.92% 였다. 그러나 두 금속의 분리를 위해서는 니켈이 전혀 침출되지 않는 조건이 유리하므로 후속실험에서 반응 시간은 니켈이 전혀 침출되지 않는 1시간으로 고정했다.

광액농도가 코발트와 니켈의 침출률에 미치는 영향을 알아보기 위해 광액농도를 10에서 100 g/L까지 변화시켰다. 이 때 산농도 2 M, 반응온도 20°C, 반응시간은 1시간으로 고정했고, 결과를 Fig. 9에 나타냈다. 광액농도가 증가함에 따라 코발트의 침출률이 감소했으며, 본 조건에서 니켈은 전혀 침출되지 않았다. 실험결과 산 농도 2 M, 반응온도 20°C, 반응시간 1시간, 광액농도 10 g/L에서 니켈이 전혀 침출되지 않으므로 코발트와 니켈의 분리가 가능하다. 그러나 니켈이 침출되지 않는 조건에서 코발트의 침출률이 22.5%로 여전히 낮으므로 코발트의 침출률을 향상시킬 필요가 있다. 일반적으로 산화제를 첨가하면 금속의 침출률이 증가하는데, 이전의 연구를 통해 H_2O_2 를 첨가시 낮은 온도에서 니켈과 구리를 제외한 코발트의 침출률이 향상된다는 것을 확인했다²⁰⁾. 이는 구리의 표준환원전위가 +0.34 V로 코발트 및 니켈보다 높기 때문이다. 또한 니켈은 부동태 피막을 형성해 침출이 어려운데, H_2O_2 첨가시 이러한 경향이 더욱 강화되기 때문이다^{21,22)}.

4. 결 론

페리튬이온배터리를 용융환원시켜 얻을 수 있는 코발트, 니켈 및 구리 금속의 침출거동을 조사하기 위해 산화

제를 첨가하지 않은 조건에서 침출실험을 수행했다. 산화제가 첨가되지 않은 무기산과 유기산용액에서 구리는 전혀 침출되지 않았다. 염산과 황산의 농도가 4 M 이상의 조건에서 코발트와 니켈이 99% 이상 침출됐다. 또한 단일금속의 최적 침출조건에서 코발트와 니켈의 금속혼합물 역시 염산과 황산에 99% 이상 침출됐다. 따라서 니켈, 코발트 및 구리 금속의 혼합물을 염산과 황산으로 침출하면 니켈과 코발트만을 용해시키는 것이 가능하다. 반면 메탄술폰산으로 코발트와 니켈의 금속혼합물 침출시 코발트의 침출률이 니켈에 비해 높았으며, 반응온도가 낮을수록 코발트가 선택적으로 침출됐으나 침출률이 낮았다.

감사의 글

본 연구는 2021년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원(KEIT) 연구비 지원에 의한 연구결과(과제번호 20011183)이며 이에 감사드립니다.

References

- Vetter, J., Novak, P., Wagner, M. R., et al., 2005 : Ageing mechanisms in lithium-ion batteries, *Journal of Power Sources*, 147(1-2), pp.269-281.
- Li, L., Dunn, J. B., Zhang, X. X., et al., 2013 : Recovery of Metals from spent lithium-ion batteries with organic acids as leaching reagents and environmental assessment, *Journal of Power Sources*, 233, pp.180-189.
- Li, L., Qu, W., Zhang, X., et al., 2015 : Succinic acid-based leaching system: A sustainable process for recovery of valuable metals from spent Li-ion batteries, *Journal of Power Sources*, 282, pp.544-551.
- Ma, X., Ma, Y., Zhou, J., et al., 2018 : The Recycling of Spent Power Battery: Economic Benefits and Policy Suggestions, *Earth and Environmental Science*, 159, 012017.
- Lupi, C., Pasquali, M., 2003 : Electrolytic nickel recovery from lithium-ion batteries, *Minerals Engineering*, 16(6), pp.537-542.
- Liu, C., Lin, J., Cao, H., et al., 2019 : Recycling of spent lithium-ion batteries in view of lithium recovery: A critical review, *Journal of Cleaner Production*, 228, pp.801-813.
- Gaines, L., 2014 : The future of automotive lithium-ion battery recycling: Charting a sustainable course., *Sustainable Materials and Technologies*, 1-2, pp.2-7.
- Ordóñez, J., Gago, E. J., Girard, A., 2016 : Processes and technologies for the recycling and recovery of spent lithium-ion batteries, *Renewable and Sustainable Energy*

- Reviews, 60, pp.195-205.
9. Georgi-Maschler, T., Friedrich, B., Weyhe, R., et al., 2012 : Development of a recycling process for Li-ion batteries, *Journal of Power Sources*, 207, pp.173-182.
 10. Hagelucken, C., 2006 : Recycling of Electronic Scrap at Umicore's Integrated Metals Smelter and Refinery, *World of Metallurgy – Erzmetall*, 59, pp.154-161.
 11. Mohammad, A. H. S., Kumy, A., 2013 : Hydrometallurgical Recovery of Value Metals from Spent Lithium Ion Batteries, *American Journal of Materials Engineering and Technology*, 1(1), pp.8-12.
 12. Silva, R. A., Zhang, Y., Hawboldt, K., et al., 2019 : Study on Iron-nickel Separation Using Ion Exchange Resins with Different Functional Groups for Potential Iron Sub-production, *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 42, pp.1-15.
 13. Zhang, P., Yokoyama, T., Itabashi, O., et al., 1998 : Hydrometallurgical process for recovery of metal values from spent lithium-ion secondary batteries, *Hydrometallurgy*, 47(2-3), pp.259-271.
 14. Li, J., Yang, X., Fu, Y., et al., 2019 : Recovery of Fe, Mn, Ni and Co in sulfuric acid leaching liquor of spent lithium ion batteries for synthesis of lithium ion-sieve and $Ni_xCo_yMn_{1-x-y}(OH)_2$, *Hydrometallurgy*, 190, 105190.
 15. Lee, C. K., Rhee, K. I., 2003 : Reductive leaching of cathodic active materials from lithium ion battery wastes, *Hydrometallurgy*, 68(1-3), pp.5-10.
 16. Chen, L., Tang, X., Zhang, Y., et al., 2011 : Process for the recovery of cobalt oxalate from spent lithium-ion batteries, *Hydrometallurgy*, 108(1-2), pp.80-86.
 17. Rybka, P., Regel-Rosocka, M., 2012 : Nickel and Cobalt Extraction from Chloride Solutions with Quaternary Phosphonium Salts, *Separation Science and Technology*, 47(9), pp.1296-1302.
 18. Jemesr, P. G., 1978 : Hydrolysis of esters of oxy acids: pKa values for strong acids; Brønsted relationship for attack of water at methyl; free energies of hydrolysis of esters of oxy acids; and a linear relationship between free energy of hydrolysis and pKa holding over a range of 20 pK units, *Canadian Journal of Chemistry*, 56(17), pp.2342-2354
 19. Mookherjee, S., Gadkari, A. A., Deo, D. M., et al., 1992 : Pyrometallurgical Preconcentration Technique for the Recovery of Copper, Nickel and Cobalt from Copper Converter Slag, *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 9(1-4), pp.213-222.
 20. Tran, T. T., Moon, H. S., Lee, M. S., 2020 : Separation of Cobalt, Nickel, and Copper from Synthetic Metallic Alloy by Selective Dissolution with Acid Solutions Containing Oxidizing Agent, *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, pp.1-13.
 21. Adolf, P., 1975 : The Kinetics of Nickel Passivation, *Electrochem. Soc.: Electrochemical science Lectrochemical Science And Technology*, 122(1), pp.80-82.
 22. Kolotyrlkin, Y. M., Florianovich, G. M., Goryachkin, V. A., et al., 1976 : Role of Oxidizers In The Active Dissolution And Passivation Of Metals, *Journal of Electroanalytical Chemistry and Interfacial Electrochemistry*, 69(3), pp.407-414.

문현승

- 목포대학교 신소재공학과 학사
 - 현재 목포대학교 신소재공학과 석사과정
-

송시정

- 목포대학교 신소재공학과 학사
 - 목포대학교 신소재공학과 석사
 - 현재 목포대학교 신소재공학과 박사과정
-

Thanh Tuan Tran

- Can Tho University Chemistry 학사
 - Can Tho University Organic Chemistry 석사
 - 현재 목포대학교 신소재공학과 박사과정
-

이만승

- 현재 목포대학교 신소재공학과 교수
 - 당 학회지 제11권 1호 참조
-