

## 폐배터리 재활용 공정 폐액 중 리튬 회수를 위한 분리 기술 고찰

송대성<sup>†</sup> · 김은규 · Thang-Toan Vu

전남대학교 화학공학부  
61186 광주광역시 북구 용봉로 77  
(2022년 1월 26일 접수, 2022년 2월 21일 수정본 접수, 2022년 2월 23일 채택)

### A review on Separation Technologies for Lithium Recovery from Waste Solutions in Recycling Process of Waste Battery

Daesung Song<sup>†</sup>, Eunkyu Kim and Thang-Toan Vu

School of Chemical Engineering, Chonnam National University, 77 Yongbong-ro, Buk-gu, Gwangju, 61186, Korea  
(Received 26 January 2022; Received in revised from 21 February 2022; Accepted 23 February 2022)

#### 요 약

본 연구에서는 폐배터리 재활용 공정에서 발생하는 공정폐액 중 리튬 회수를 위한 후보 기술들을 검토하고 상용화 관점에서 해당 공정에 적용 가능한 기술들을 정성적 측면에서 검토하였다. 현재 기술 수준에서 상용화 규모로 적용 가능한 증발법, 침전 및 용매추출 기술이 있다. 증발법의 경우 대규모의 땅을 필요로 하고 농축과정에서의 Li 손실로 낮은 회수율 보여 적용하기 어렵다. 침전의 경우, 상용화되어 있는 기술로 인산의 높은 Li/Na 선택도로 높은 회수율을 보이지만 비싼 인산 사용으로 회수 단계 필요로 공정이 복잡하고 Li 농축과정에서 고체를 다루고 있어 연속운전이 불가능하다는 단점이 있다. 용매추출의 경우, Li/Na 선택도가 높은 저렴한 추출제를 찾는다면 전 단계의 다른 금속 추출 시 사용되고 있는 방법으로 연속운전이 가능하고 Li 농축 시 액체 상태이기 때문에 연속운전이 가능하다는 장점이 있다. 침전기술과 비교하여 유사한 회수율을 보인다면 상용화가 가능성이 가장 높을 것이다.

**Abstract** – In this study, candidate technologies for lithium recovery from the process waste liquid generated in the waste battery recycling process were reviewed, and technologies applicable to the process from the commercialization point of view were reviewed from a qualitative point of view. The evaporation method is difficult to apply because it requires a large-scale land and shows a low recovery rate due to the loss of Li during the concentration process. In the case of precipitation, a commercially available technology shows a high recovery rate due to the high Li/Na selectivity of phosphoric acid, but there are disadvantages in that the process is complicated due to the use of expensive phosphoric acid, requiring a recovery step, and continuous operation is impossible because solids are handled in the Li concentration process. In the case of solvent extraction, if we find an inexpensive extractant with high Li/Na selectivity, continuous operation is possible with the method used in extraction of other metals in the previous step, and when Li is concentrated, continuous operation is possible because it is in a liquid state. If it shows a similar recovery rate compared to precipitation technology, commercialization will be the most likely.

Key words: Waste battery recycling, Lithium recovery, Waste liquid, Separation technology

#### 1. 서 론

##### 1-1. 연구배경

최근 전기차 및 ESS와 같은 중·대형 배터리를 사용하는 산업의 급격한 성장으로, 리튬 이차전지에 대한 시장 규모도 크게 확대되고

있다. SNE 리서치에 따르면 2030년에 리튬 이차전지 시장 규모가 19년 대비 약 17배 이상 성장할 것으로 전망하고 있고, 리튬 이차전지 제조에 필요한 원자재 수요 역시 급증할 것으로 예상하고 있다[1].

그러나 핵심원료인 니켈, 코발트 및 리튬과 같은 희소금속의 경우, 그 수급처가 일부 지역에만 편중되어있어 한국은 대부분의 희소금속 수급을 수입에 전적으로 의존하여 지속적인 무역수지 적자가 발생하고 있다. 특히 핵심원료 중 하나인 리튬은 리튬 이차전지 제조 공정과 세라믹, 화학, 야금 등 다양한 산업에서 없어서는 안되는 소재다[2-4]. 리튬은 주로 1차(광석, 염수 및 해수) 및 2차 자원(폐배터리)의 두 가지 범주에서 채굴된다[5]. 많은 연구자들이 환경, 광산 및

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: dssong@jnu.ac.kr

‡이 논문은 광운대학교 교재목 교수님의 정년을 기념하여 투고되었습니다.

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.

재활용으로 기능하는 여러 측면에서 리튬 공급에 대한 포괄적인 분석을 통해 리튬이 부족한 고위험 상황에서 자원 효율성을 개선하고 있다[6,7]. 2080년까지 예상되는 리튬 소비율을 기반으로 하여 육지의 가용 리튬 매장량이 소진될 것으로 예상하고 있다[8]. 따라서 육지의 가용 리튬 자원을 대체하기 위해 염수, 해수와 같은 1차 액체 자원에서 리튬을 추출하는 방법에 대한 연구 또한 활발히 진행되고 있다[9]. 리튬 이차전지의 에너지 저장능력 및 수명에 대한 연구가 비약적인 발전을 가져왔지만, 수명은 대략 8~10년이다. 지속적인 리튬 이차전지 수요증가는 미래에 더 많은 폐배터리를 배출할 것이다[9-11]. 따라서 2차 자원으로부터 리튬 회수는 원료 확보, 환경 오염, 경제적 효율성 및 지속 가능성 확보 측면에서 필수적이다.

이러한 상황을 반영하여, 국내기업 및 세계 각 기업에서는 폐배터리 배출에 대비하여, 희소금속을 회수하는 재활용 공정 연구 및 상용화가 진행 중이다. 일부 기업(성일하이텍(한국), Umicore(벨기에), GEM(중국) 등)에서 상용화한 폐배터리 재활용 공정은 리튬을 제외한 망간, 코발트, 니켈과 같은 금속을 pH 조절을 통하여 선 회수한 후, 남은 공정 폐액에서 리튬을 회수하게 되는데, 앞선 공정에서의 사용한 산, 염기 수용액 첨가 등으로 공정폐액에 리튬이 낮은 농도로 존재하여 전통적인 회수 방법으로는 경제성 확보가 어려운 상황이다.

본 연구에서는, 폐배터리 재활용 공정에서 발생하는 공정폐액 중 리튬 회수를 위한 후보 기술들을 검토하고 각 기술의 장단점을 파악해 보았다. 또한, 상용화 관점에서 해당 공정에 적용 가능한 기술을 정성적 측면에서 검토하고 공정 성능을 예측하여, 가장 적합한 후보 기술을 제안하였다.

## 2. 폐배터리 회수 공정

폐배터리 회수공정은 크게 물리적 처리 공정과 화학적 처리 공정으로 구성되어 있다. 물리적 처리 공정은 Black Powder를 얻기 위한 폐배터리 해체, 파쇄, 선별, 분급 등의 단위공정을 포함하고, 화학적 처리 공정은 분리된 활물질에서 침출, 침전, 용매추출 및 결정화 등의 단위공정을 거쳐 금속을 회수하는 공정이다[12-14]. 본 연구에서는, 화학적 처리 공정을 대상으로 하며, 상용화한 폐배터리 재활용 공정에서 망간, 코발트, 니켈과 같은 금속을 용매추출을 통한 선 회수한 후, 남은 공정 폐액에서 리튬을 회수를 대상으로 상용화 관점에서 적용 가능한 기술을 검토하였다.

### 2-1. 화학적 처리 공정

물리적 처리 공정을 거쳐 분리된 활물질로부터 희소금속을 회수하기 위해서는 화학적 처리 단계를 거치게 된다. 해당 공정의 개략도를 Fig. 1에 도시하였다.

산 침출 공정은 물리적 처리를 거쳐 얻어진 활물질 분말을 염산, 질산, 황산 등을 사용하여 금속 성분을 용출시키는 단계로 다양한 산을 사용할 수 있다. 취급이 용이하고 가격이 저렴한 황산을 주로 침출액으로 사용한다. 이때 침출율을 높이기 위해 환원제로 일정량의 과산화수소를 추가 투입하여 침출한다. 침출 후에 활물질에 포함되어 있는 불순물을 제거하기 위해 수산화나트륨을 이용한 pH 조절을 통해 수상 내 철, 알루미늄 등의 불순물을 제거한다.

불순물 제거 후 적절한 추출제를 이용하여 망간, 코발트, 니켈 순으로 금속을 회수 후 남은 공정 폐액에서 리튬을 회수해야 하나 전

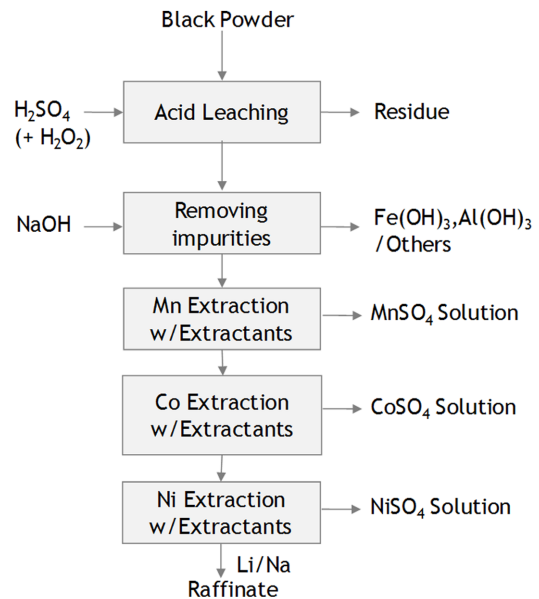


Fig. 1. Precipitation route.

단에서 사용한 산, 염기 수용액의 첨가로 리튬 농도가 약 3~6 g/L 수준으로 낮아 리튬 회수공정의 경제성 확보가 어려운 것으로 판단된다.

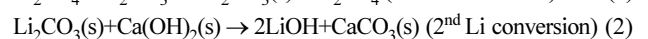
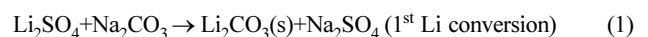
## 3. 연구결과

### 3-1. 리튬 회수 기술 비교

최근 몇 년 동안 증발법(Evaporation), 이온 체 흡착(ion sieves adsorption), 침전(precipitation), 멤브레인(membrane) 및 용매추출(solvent extraction) 기술이 리튬 회수를 위해 사용되고 있다[15-17]. 증발법 및 침전 기술은 상용기술이며, 이온 체 흡착과 멤브레인 기술은 현재 실험실 규모 그리고 용매추출은 파일럿 규모에서 연구가 진행 중이다. 이온 체 흡착과 멤브레인 기술의 경우 실험실 규모에서 재료의 성능 개선연구 단계로 현 단계에서 상용화 가능성을 확인하기 어려운 기술로 판단하였다[18-22]. 현재 상용화 되어 운전되고 있는 화학적 처리단계 기준으로 증발법, 침전 및 용매추출 기술의 적용 가능성 검토를 위해 Fig. 1의 Raffinate (Li/Na) Feed 사용을 가정하였다.

전통적으로 사용되어온 증발법 공정 개략도를 Fig. 2에 도시하였다. Li 농축시키기 위해 증발법을 사용하는데 증발에 필요한 운전비용 절감을 위해 대규모의 땅에서 태양열을 이용하는 방법이 일반적이다. 증발법이 경제성을 가지기 위해서는 농축 후의 리튬 농도가 20 g/L 이상이 되어야 한다. 또한, 이 과정에서 LiNaSO4가 석출되어 Li의 손실이 발생하게 된다. 전체 Li 회수율은 70% 이하이다. 또한, 전환 과정에서 고체 물질을 다루고 있어 연속운전이 어렵다.

첫 번째 그리고 두 번째 Li 전환에 해당하는 반응식은 아래와 같다[7].



현재 가장 많이 사용되고 있는 침전 기술은 인산 등을 이용해 Li를 침전시켜 회수하는 기술로, 국내의 경우 포스코에서 기술을 개발하

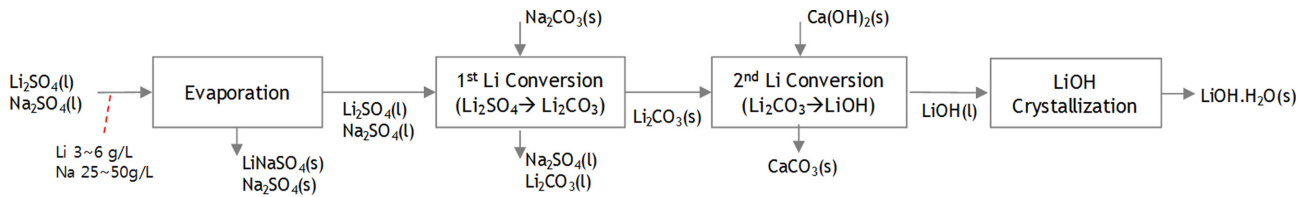


Fig. 2. Evaporation route.

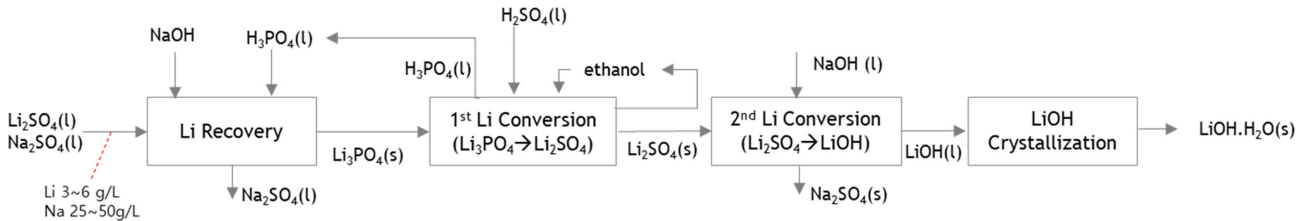
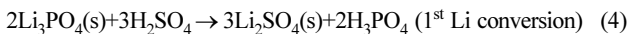
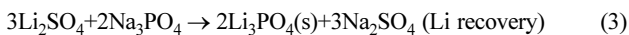


Fig. 3. Precipitation route.

여 상용화하였다. 공정 개략도를 Fig. 3에 도시하였다. 이 기술의 핵심은 인산을 활용한 Li 회수이다. 인산을 활용하여 Li 회수공정에서 99% 이상의 Li 회수가 가능하고, 전체 공정의 Li 회수율은 80% 수준이다. 하지만, 높은 인산 가격으로 ethanol을 활용한 회수공정(1<sup>st</sup> Li Conversion)이 추가로 필요해 공정이 복잡하고 모든 단계에서 고체를 다루고 있어 연속운전이 매우 어렵다.

각 단계별 해당 반응식은 아래와 같다[2,7].



용매추출법의 경우 습식제련(hydrometallurgy)에서 금속 회수를 위해 가장 많이 쓰이고 있는 방법이다. Fig. 1에 도시된 것과 같이 Black powder로부터 Mn, Co, Ni를 회수할 때 사용된다. 금속에 대한 선택도가 높고 저렴한 추출제가 개발된 경우 다른 기술에 비해 상용화 가능성이 높다. Li/Na 혼합물 중 Li에 대한 선택도가 높고 저렴한 추출제가 있다면, Mn, Co, Ni 회수에 사용되는 같은 방식의 용매 추출공정을 사용하여 전체 회수공정이 단순해지고 연속공정 운전이 가능하다는 장점들이 있다. 용매추출 공정 개략도를 Fig. 4에 도시하였다.

Li 추출 단계의 반응식들은 아래와 같다. 여기서 A는 추출제를 나타낸다.

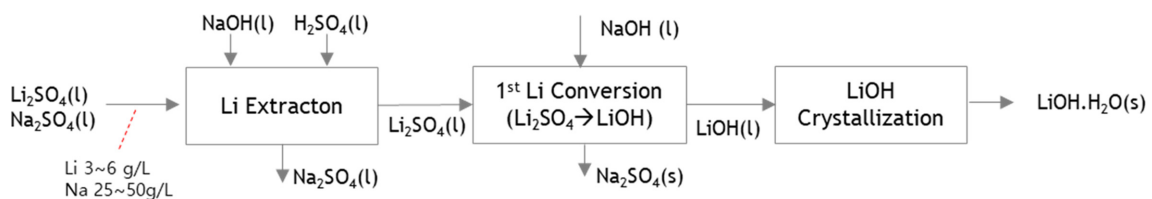
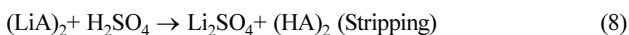
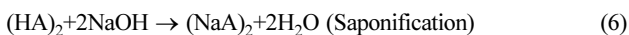


Fig. 4. Extraction route.

1<sup>st</sup> Li Conversion 단계의 반응식은 아래와 같다[7].



위 내용을 바탕으로 폐배터리 금속 회수공정에서 발생하는 공정 폐액에 상용화 규모로 적용 가능한 기술별 특징을 아래 Table 1에 정리하였다. 증발법의 경우, Li 농축과정에서 LiNaSO<sub>4</sub>(s) 침전으로 회수율이 낮고 농축과정에 대규모 땅이 필요하기 때문에 해당 공정에 적용하는 것은 불가능하다. 상용화 되어 사용되고 있는 침전법의 경우 높은 회수율을 보이지만, 비싼 인산 사용으로 회수 단계가 필요하고 Li 농축과정에서 고체를 다루고 있어 연속운전이 불가능하다. 반면에 용매추출의 경우 Li/Na 선택도가 높은 저렴한 추출제를 찾는다면, 다른 금속 추출 시 사용되고 있는 방법으로 연속운전에 유리한 부분이 있고 Li 농축 시 액체 상태이기 때문에 연속운전이 가능하다는 장점이 있다.

### 3-2. 리튬 회수를 위한 추출제 검토

용매추출법을 통해 폐배터리 금속 회수공정의 공정폐액에서 Li를 회수하기 위해서는 적절한 추출제를 찾거나 개발하는 것이 필수적이다. 적용 가능한 추출제는 크게 Phosphoric acid 계열, β-diketone 계열, 그리고 Crown-ether가 있다. Phosphoric acid 계열 추출제로는 D2EHPA (Di-(2-ethylhexyl)phosphoric acid), PC88A (2-ethylhexyl phosphonic acid-mono-2-ethylhexyl ester), 그리고 CYNEX 272 (bis(2,4,4-trimethylpentyl) phosphinic acid) 등이 있다. 이 추출제들은 Mn (D2EHPA), Co (CYNEX 272 or PC88A), Ni (D2EHPA) 용매추출 공정에서 사용되고 있다. 하지만, Li/Na의 해당 추출제 적용 시 그 선택도가 낮은 것으로 알려져 있다. β-diketone 계열 추출제로는

Table 1. Characteristics of each technology

Technology	Evaporation	Precipitation	Extraction
Characteristic			
Li concentration type	Evaporation - Precipitation: $\text{LiNaSO}_4(\text{s})$ and $\text{Na}_2\text{SO}_4(\text{s})$	Precipitation - $3\text{Li}_2\text{SO}_4 + 2\text{Na}_3\text{PO}_4 \rightarrow 2\text{Li}_3\text{PO}_4(\text{s}) + 3\text{Na}_2\text{SO}_4$	Li Extraction - Extraction: $\text{Li}_2\text{SO}_4 + (\text{NaA})_2 \rightarrow \text{Na}_2\text{SO}_4 + (\text{LiA})_2$ - Stripping: $(\text{LiA})_2 + \text{H}_2\text{SO}_4 \rightarrow \text{Li}_2\text{SO}_4 + (\text{HA})_2$
Concentrated Li type	$\text{Li}_2\text{SO}_4$ Solution	$\text{Li}_3\text{PO}_4$ Solid	$\text{Li}_2\text{SO}_4$ Solution
Conversion to LiOH	1) 1st Li conversion - $\text{Li}_2\text{SO}_4 + \text{Na}_2\text{CO}_3(\text{s}) \rightarrow \text{Li}_2\text{CO}_3(\text{s}) + \text{Na}_2\text{SO}_4$ 2) 2nd Li conversion - $\text{Li}_2\text{CO}_3(\text{s}) + \text{Ca}(\text{OH})_2(\text{s}) \rightarrow 2\text{LiOH} + \text{CaCO}_3(\text{s})$	1) 1st Li conversion - $2\text{Li}_3\text{PO}_4(\text{s}) + 3\text{H}_2\text{SO}_4 \rightarrow 3\text{Li}_2\text{SO}_4(\text{s}) + 2\text{H}_3\text{PO}_4$ 2) 2nd Li conversion - $\text{Li}_2\text{SO}_4 + 2\text{NaOH} \rightarrow \text{LiOH} + \text{Na}_2\text{SO}_4(\text{s})$	1) 1st Li conversion - $\text{Li}_2\text{SO}_4 + 2\text{NaOH} \rightarrow \text{LiOH} + \text{Na}_2\text{SO}_4(\text{s})$
Disadvantage	- Loss of Li during evaporation - Low recovery rate ( $< 70\%$ )	- High price of $\text{H}_3\text{PO}_4$ - $\text{H}_3\text{PO}_4$ recovery process required - Solid handling during Li concentration	- A lot of extraction stage required if Li/Na Selectivity of extractants is low
Advantage		- High recovery rate ( $\approx 80\%$ )	- Simple Process - No solid handling during Li concentration - High recovery rate ( $\approx 80\%$ )

Table 2. Characteristics of each extractant

Extractant	Phosphoric Acid	$\beta$ -diketone	Crown-ether
Characteristic			
Advantage	- Low Price	- High Li/Na Selectivity - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 1563$ (LIX54/Cyanex923) - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 2106$ (HBTA/TOPO) - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 1995$ (HDBM/TOPO) - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 650$ ((LIX54&LIX51)/TOPO) - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 1150$ (HTTA/PHEN) - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 630$ (HTTA/TOPO)	- Very high Li/Na Selectivity - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} = 2360$
Disadvantage	- Low Li/Na selectivity - $\beta_{\text{Li}/\text{Na}} < 100$ (PC88A)	- High price - Neutral ligands required	- Not commercial product

HTTA (2-thenoyltrifluoroacetone), HBTA (benzoyltrifluoroacetone), LIX54 (mixture of hydrocarbon) 등이 있다. 이 추출제의 경우 Neutral ligand와 함께 사용해야 Synergy 발생으로 Li/Na 선택도가 높아진다. Neutral Ligand로는 TOPO (tri-n-octylphosphine oxide), PHEN (phenanthroline), CYNEX 923 (mixture of TOPO and hydrocarbon) 등이 있다. 추출제와 Neutral Ligand의 조합에 따라 Li/Na 선택도가 크게 달라진다. 마지막으로 Crown-ether의 경우, Ionic size에 의한 차이로 가장 높은 Li/Na 선택도를 보이지만 상용화되어 생산되는 물질이 아니다.

위 내용을 바탕으로 적용 가능한 추출제별 특징을 아래 Table 2에 정리하였다[23,24]. 상용화되어 금속용매 추출에 사용되고 있는 Phosphoric acid 계열 경우 다른 추출제에 비해 Li/Na 선택도 낮은 것으로 알려져 있지만, 낮은 Li/Na 선택도로 인해 얼마나 많은 추출단이 사용되는지에 대한 연구는 없었다. 따라서 투자비 및 운전비 측면과 함께 검토될 필요가 있다.  $\beta$ -diketone 계열의 경우 상용화되어 사용되고 있는 추출제 및 Neutral ligand의 혼합물은 없지만 Phosphoric acid 계열에 비해 높은 Li/Na 선택도를 보이기 때문에 상용화 가능성이 높다고 판단된다. Crown-ether의 경우 가장 높은 Li/Na 선택도를 보이지만 합성이 필요한 물질로 현재 상용화 가능성은 매우 낮다고 판단된다.

따라서, Phosphoric acid와  $\beta$ -diketone 계열의 추출제를 대상으로

폐배터리 금속 회수공정의 공정폐액에 적용 가능할 것으로 예상되는 용매추출공정의 상용화 가능성 검토가 필요하다.

#### 4. 결론 및 고찰

본 연구에서는 폐배터리 재활용 공정에서 발생하는 공정폐액 중 리튬 회수를 위한 후보 기술들을 검토하고 각 기술의 장단점을 파악해 보았다. 또한, 상용화 관점에서 해당 공정에 적용 가능한 기술을 정성적 측면에서 검토하고 공정 성능을 예측하여, 가장 적합한 후보 기술을 제안하였다.

해당 공정에 상용화 규모로 적용 가능한 증발법, 침전 및 용매추출 기술의 적용 가능성을 검토하였다. 증발법의 경우 낮은 대규모의 땅을 필요로 하고 농축과정에서의 Li Loss로 낮은 회수율 보여 적용하기 어려운 것으로 판단된다. 침전의 경우, 이미 상용화가 되어있고 높은 회수율을 보이지만 비싼 인산 사용으로 회수 단계 필요로 공정이 복잡하고 Li 농축과정에서 고체를 다루고 있어 연속운전이 불가능하다는 단점이 있다. 용매추출의 경우, Li/Na 선택도가 높은 저렴한 추출제를 찾는다면, 다른 금속 추출 시 사용되고 있는 방법으로 연속운전이 가능하고 Li 농축 시 액체 상태이기 때문에 연속운전이 가능하다는 장점이 있다. 침전기술과 비교하여 유사한 회수율을 보인다면 충분히 상용화가 가능할 것으로 판단된다.

또한, 해당 공정에 사용 가능한 추출제를 검토하였다. Phosphoric acid와  $\beta$ -diketone 계열의 추출제를 적용 가능할 것으로 판단된다. 향후, 침전 및 용매추출공정의 상용화 가능성을 정량적으로 검토하기 위한 연구가 필요할 것으로 사료된다.

## 감 사

본 연구는 한국 환경부 주관 화학물질 특성화대학원의 지원을 통해 수행됨.

## References

1. <2020> Global LIB Line Expansion Outlook (~2030).
2. Zhang, Y., Hu, Y., Wang, L. and Sun, W., "Systematic Review of Lithium Extraction from Salt-lake Brines Via Precipitation Approaches," *Miner. Eng.*, **139**, 105868(2019).
3. Zhao, X., Yang, H., Wang, Y., Yang, L. and Zhu, L., "Lithium Extraction from Brine by an Asymmetric Hybrid Capacitor Composed of Heterostructured Lithium-rich Cathode and Nano-bismuth Anode," *Sep. Purif. Technol.*, 119078(2021).
4. Wesselborg, T., Virolainen, S. and Sainio, T., "Recovery of Lithium from Leach Solutions of Battery Waste Using Direct Solvent Extraction with Tbp and  $\text{FeCl}_3$ ," *Hydrometallurgy* **202**, 105593 (2021).
5. Gu, G. and Gao, T., "Sustainable Production of Lithium Salts Extraction from Ores in China: Cleaner Production Assessment," *Resour. Policy*, **74**, 102261(2021).
6. Choubey, P. K., Chung, K.-S., Kim, M.-S., Lee, J.-C. and Srivastava, R. R., "Advance Review on the Exploitation of the Prominent Energy-storage Element Lithium. Part ii: From Sea Water and Spent Lithium Ion Batteries (libs)," *Miner. Eng.*, **110**, 104(2017).
7. Liu, C., Lin, J., Cao, H., Zhang, Y. and Sun, Z., "Recycling of Spent Lithium-ion Batteries in View of Lithium Recovery: A Critical Review," *J. Clean. Prod.*, **228**, 801(2019).
8. Yang, S., Zhang, F., Ding, H., He, P. and Zhou, H., "Lithium Metal Extraction from Seawater," *Joule*, **2**, 1648(2018).
9. Meshram, P., Pandey, B. D. and Mankhand, T. R., "Extraction of Lithium from Primary and Secondary Sources by Pre-treatment, Leaching and Separation: A Comprehensive Review," *Hydrometallurgy*, **150**, 192(2014).
10. Zhang, X., Li, L., Fan, E., Xue, Q., Bian, Y., Wu, F. and Chen, R., "Toward Sustainable and Systematic Recycling of Spent Rechargeable Batteries," *Chem. Soc. Rev.*, **47**, 7239(2018).
11. Ballinger, B., Stringer, M., Schmeda-Lopez, D. R., Kefford, B., Parkinson, B., Greig, C. and Smart, S., "The Vulnerability of Electric Vehicle Deployment to Critical Mineral Supply," *Appl. Energy*, **255**, 113844(2019).
12. Zhang, P., Yokoyama, T., Itabashi, O., Suzuki, T. M. and Inoue, K., "Hydrometallurgical Process for Recovery of Metal Values from Spent Lithium-ion Secondary Batteries," *Hydrometallurgy*, **47**, 259(1998).
13. Xu, L., Chen, C. and Fu, M.-L., "Separation of Cobalt and Lithium from Spent Lithium-ion Battery Leach Liquors by Ionic Liquid Extraction Using Cyphos il-101," *Hydrometallurgy*, **197**, 105439 (2020).
14. Bae, H. and Kim, Y., "Technologies of Lithium Recycling from Waste Lithium-ion Batteries: A Review," *Adv. Mater.*, **2**, 3234(2021).
15. Zhang, Y., Hu, Y., Sun, N., Khoso, S. A., Wang, L. and Sun, W., "A Novel Precipitant for Separating Lithium from Magnesium in High Mg/Li Ratio Brine," *Hydrometallurgy*, **187**, 125(2019).
16. Li, B., Wu, J. and Lu, J., "Life Cycle Assessment Considering Water-energy Nexus for Lithium Nanofiltration Extraction Technique," *J. Clean. Prod.*, **261**, 121152(2020).
17. Sun, S., Yu, X., Li, M., Duo, J., Guo, Y. and Deng, T., "Green Recovery of Lithium from Geothermal Water Based on a Novel Lithium Iron Phosphate Electrochemical Technique," *J. Clean. Prod.*, **247**, 119178(2020).
18. Al-Ghouti, M. A. and Al-Absi, R. S., "Mechanistic Understanding of the Adsorption and Thermodynamic Aspects of Cationic Methylene Blue Dye onto Cellulosic Olive Stones Biomass from Wastewater," *Sci. Rep.*, **10**, 1(2020).
19. Park, J., Sato, H., Nishihama, S. and Yoshizuka, K., "Lithium Recovery from Geothermal Water by Combined Adsorption Methods," *Solvent Extr. Ion Exch.*, **30**, 398(2012).
20. Li, X., Mo, Y., Qing, W., Shao, S., Tang, C. Y. and Li, J., "Membrane-based Technologies for Lithium Recovery from Water Lithium Resources: A Review," *J. Membr. Sci.*, **591**, 117317(2019).
21. Gao, D., Guo, Y., Yu, X., Wang, S. and Deng, T., "Extracting Lithium from the High Concentration Ratio of Magnesium and Lithium Brine Using Imidazolium-based Ionic Liquids with Varying Alkyl Chain Lengths," *J. Chem. Eng. Jpn.*, **49**, 104(2018).
22. Liu, X., Zhong, M., Chen, X. and Zhao, Z., "Separating Lithium and Magnesium in Brine by Aluminum-based Materials," *Hydrometallurgy*, **176**, 73(2018).
23. Pranolo, Y., Zhu, Z. and Cheng, C. Y., "Separation of Lithium from Sodium in Chloride Solutions Using SSX Systems with LIX 54 and Cyanex 923," *Hydrometallurgy*, **154**, 33-39(2015).
24. Zhang, L., Li, L., Shi, D., Li, J., Peng, X. and Nie, F., "Selective Extraction of Lithium from Alkaline Brine Using HBTA-TOPO Synergistic Extraction System," *Sep. Purif. Technol.*, **188**, 167-173(2017).

## Authors

**Daesung Song:** Professor, Department of Chemical Engineering, Chonnam National University, Gwangju 61186, Korea; dssong@chonnam.ac.kr

**Eunkyu Kim:** Master's course, Department of Chemical Engineering, Chonnam National University, Gwangju 61186, Korea; kanrr4662@naver.com

**Thang Toan Vu:** Doctor's course, Department of Chemical Engineering, Chonnam National University, Gwangju 61186, Korea; 208642@jnu.ac.kr