

使用済みリチウムイオン二次電池からの複数金属同時分離法の開発

静岡県立大学 食品栄養科学部 環境生命科学科 准教授 永井 大介

1. 緒言

近年、リチウムイオン二次電池 (LIB) は、スマートフォンやノート PC といった携帯電子機器に加え、電気自動車 (EV) やハイブリッド車の普及に伴い、その需要が急速に拡大している。特に、脱炭素社会の実現を背景として EV の導入が世界的に加速しており、LIB の使用量は今後も持続的に増加すると予測されている¹⁻⁴⁾。

市販 LIB の正極材料としては、リチウムコバルト酸化物 (LiCoO_2)、リチウムニッケル酸化物 (LiNiO_2)、リチウムマンガン酸化物 (LiMnO_2)、リン酸鉄リチウム (LiFePO_4)、および三元系リチウム酸化物 [$\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Co}_y\text{Mn}_z)\text{O}_2$, $x + y + z = 1$, NCM] などが広く用いられている。その中でも NCM 系正極材料は、高エネルギー密度、長寿命、安全性を兼ね備えることから、EV 向け正極材料として主流となっている^{5,6)}。2050 年には EV の累計台数が 1 億台を超えたとの試算もあり⁷⁾、これに伴い、使用済み LIB (廃 LIB) の排出量は今後急激に増加すると見込まれている。廃 LIB には、Co、Ni、Mn、Li といったレアメタルが高濃度で含まれており、その金属含有率は天然鉱石を上回る場合も多い。このため、資源枯渇への対応や金属資源の安定供給の観点から、廃 LIB のリサイクルは極めて重要である⁸⁾。一方で、廃 LIB には有害物質も含まれるため、不適切な処理は環境汚染や安全上のリスクを引き起こす可能性があり、効率的かつ環境調和型のリサイクル技術の確立が強く求められている⁹⁾。

このような背景のもと、欧州連合 (EU) では LIB 製造時における再生金属の使用割合を義務化しており、2030 年には Co 12%、Ni 4%、2035 年には Co 20%、Ni 12%を目標値として設定している⁹⁻¹²⁾。こうした国際的な規制動向を踏まえると、廃 LIB から Mn、Ni、Co を効率的に回収し、かつ高選択的に分離する技術の確立は、EV 産業の持続的発展に不可欠である¹³⁻¹⁶⁾。

しかしながら、Mn、Ni、Co はいずれも d ブロック遷移金属に属し、物理化学的性質が極めて類似しているため、相互分離は容易ではない。これらの金属イオンはいずれも 4s および 3d 軌道に電子を有し、配位化学的挙動が近似している。HSAB (Hard and Soft Acids and Bases) 則に基づくと、Mn(II)、Ni(II)、Co(II)はいずれも硬～中程度の酸として振る舞い、カルボキシ基やアミノ基、フェノール性水酸基といった硬～中塩基性配位子に対して非選択的に配位する。その結果、従来の溶媒抽出法では分離係数が小さく、高い選択性を得ることが困難である。加えて、これらの金属はパラ磁性を示し、原子半径 (Mn: 1.27 Å, Ni: 1.24 Å, Co: 1.25 Å) も極めて近接していることから、サイズ差を利用した分離技術の適用も難しい。

現在実用化されている湿式冶金および乾式冶金プロセスでは、多段階処理が必要であり、

コストの増大や環境負荷の高さが課題として指摘されている。特に湿式法では、強酸や有機溶媒を大量に使用するケースが多く、脱炭素・資源循環型社会に適したプロセスとは言い難い¹⁷⁻²¹⁾。したがって、工程数を削減しつつ、Mn、Ni、Co を選択的かつ効率的に分離回収可能な新規プロセスの開発が求められている。

我々はこれまでに、LIB 原料金属である Ni および Co に着目し、金属イオン還元法であるポリオール法を用いることで、両者の僅かな還元性の差〔標準還元電位：Ni(II) = -0.257 V、Co(II) = -0.277 V〕を利用した選択的分離に成功している。本手法では、NiSO₄ および CoSO₄ を原料とし、NaOH を含むエチレングリコール溶液 (EG/NaOH) を還元剤として用いることで、強磁性を示す金属 Ni と、磁性を示さない Co(OH)₂ を選択的に生成させ、磁力による分離を実現した (Ni : 選択性 85 %、回収率 90 % ; Co : 選択性 92 %、回収率 83 %)。さらに、混合金属塩溶液の滴下速度を精密に制御することで、金属イオンに対する還元剤濃度比を調整し、還元性の高い Ni(II) のみを優先的に還元する条件を見出している。

本研究では、この Co/Ni 分離技術を基盤とし、使用済み LIB に含まれる Mn(II)、Ni(II)、Co(II) を対象とした、段階的かつ選択的な一括分離プロセスの構築を目的とする。まず、三元系正極材料の主要構成元素である Mn に着目し、Ni および Co と比較して酸化反応性が高いという特性〔標準還元電位：Mn(II) = -1.18 V〕を利用した酸化沈殿法により、Mn を優先的に分離回収する手法を検討する。続いて、Mn 除去後の溶液に対して既報の Co/Ni 磁力分離法を適用することで、Ni の金属生成および磁力回収と、Co の水酸化物としての分離を連続的に行う。

本研究により、酸化沈殿法と還元・磁選法を組み合わせた環境調和型一括分離プロセスを提案することで、有害溶媒使用量の削減、工程の簡素化、ならびに処理コストの低減に貢献することを目指す。

2. 方法

2.1 Mn(II)/Co(II)/Ni(II)混合水溶液からの Mn の選択的分離

Mn(II)、Ni(II)、Co(II)を含む混合水溶液から Mn を選択的に分離するため、過マンガン酸カリウム (KMnO₄) を酸化剤および沈殿剤として用いた酸化沈殿法を適用した。MnSO₄・5H₂O、CoSO₄・7H₂O、および NiSO₄・6H₂O をそれぞれ溶解し、各金属イオン濃度が 0.200 mol/L となるように調製した混合水溶液 36 mL を反応溶液とした。これに対し、KMnO₄ (0.250 mol/L) および NaOH (0.750 mol/L) を含む水溶液 16 mL を、20 分間かけて滴下した。滴下中および滴下後、反応系は 40℃に保持し、20 分間攪拌した。反応終了後、生成した沈殿をろ過により回収し、蒸留水で十分に洗浄したのち、真空下で乾燥した。得られた沈殿物は 1.0 mol/L 硝酸水溶液に溶解し、溶液中の Mn、Ni、Co 濃度を原子吸光分析 (AAS) により定量した。

Mn の選択性および回収率は、以下の式(1)および(2)により算出した。

$$\text{Mn 選択性(\%)} = [\text{沈殿中の Mn (mmol)}] / [\text{沈殿中の Mn+Ni+Co(mmola)}] \times 100 \quad (1)$$

$$\text{Mn 回収率(\%)} = [\text{沈殿中の Mn(mmola)}] / [\text{反応に使用した Mn(mmola)}] \times 100 \quad (2)$$

2.2 Mn(II)/Co(II)/Ni(II)混合水溶液からの Mn・Co・Ni の一括分離

Mn・Ni・Co の一括分離プロセスにおいて、まず Mn の選択的分離を 2.1 と同一条件で行った。すなわち、 $\text{MnSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CoSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を各 0.200 mol/L 含む混合水溶液 36 mL に対し、 KMnO_4 (0.250 mol/L) および NaOH (0.750 mol/L) を含む水溶液 16 mL を 20 分間かけて滴下し、40℃で 20 分間攪拌した。生成した沈殿をろ過回収し、蒸留水で洗浄後、真空乾燥した。沈殿物を 1.0 mol/L 硝酸水溶液に溶解し、AAS により Mn、Ni、Co 濃度を測定して、Mn の選択性および回収率を算出した。

Mn 分離後のろ液は減圧下で濃縮し、未反応の $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ および $\text{CoSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ を回収した。これらを含む 0.200 mol/L のエチレングリコール (EG) 溶液 10 mL を調製し、 NaOH を含む 0.200 mol/L EG 溶液 20 mL に対して、シリンジポンプを用いて滴下した。滴下速度は 0.316 mL/min とし、分離挙動への影響を検討した。滴下終了後、反応系を 200℃で 3 時間攪拌した結果、強磁性物質および非磁性物質が生成した。強磁性物質はネオジム磁石を用いて回収し、蒸留水で洗浄後、真空下で乾燥した。一方、非磁性物質はろ過により回収し、同様に洗浄・乾燥した。さらに、ろ液に過剰量の NaOH (0.800 g、20 mmol) を添加して非磁性沈殿物を生成させ、ろ過・洗浄・乾燥した。得られた強磁性物質、反応中に生成した非磁性沈殿物、およびろ液から回収した非磁性沈殿物をそれぞれ 1.0 mol/L 硝酸水溶液に溶解し、AAS により金属濃度を測定した。

Ni および Co の選択性および回収率は、以下の式(4)～(7)により算出した。

$$\text{Ni 選択性 (\%)} = [\text{強磁性化合物中の Ni (mmol)}] / [\text{強磁性化合物中の Ni (mmol)} + \text{Co (mmol)}] \times 100 \quad (4)$$

$$\text{Co 選択性 (\%)} = [\text{非磁性化合物中の Co (mmol)}] / [\text{非磁性化合物中の Ni (mmol)} + \text{Co (mmol)}] \times 100 \quad (5)$$

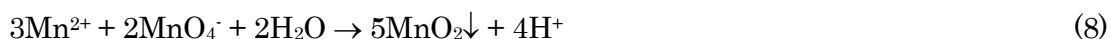
$$\text{Ni 回収率 (\%)} = [\text{強磁性化合物中の Ni (mmol)}] / [\text{分離実験に使用した Ni (mmol)}] \times 100 \quad (6)$$

$$\text{Co 回収率 (\%)} = [\text{非磁性化合物中の Co (mmol)}] / [\text{分離実験に使用した Co (mmol)}] \times 100 \quad (7)$$

3. 結果と考察

3.1 Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合溶液からの酸化沈殿法による Mn の選択的分離法の開発

Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合水溶液から Mn を選択的に回収することを目的として、過マンガン酸カリウム (KMnO₄) を酸化剤および沈殿剤として用いた酸化沈殿法を検討した。本手法では、Mn(II)を Mn(IV)O₂へと酸化し、難溶性沈殿として分離することを狙った。反応は以下の式(8)に従って進行する。



まず、硫酸水溶液で pH = 2.0 に調整した Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合水溶液（各金属イオン濃度 0.20 mol/L）に KMnO₄水溶液（0.25 mol/L）を滴下し、40℃で 20 分間攪拌した（図 1）。金属塩として硫酸塩を用いたのは、使用済みリチウムイオン二次電池からの

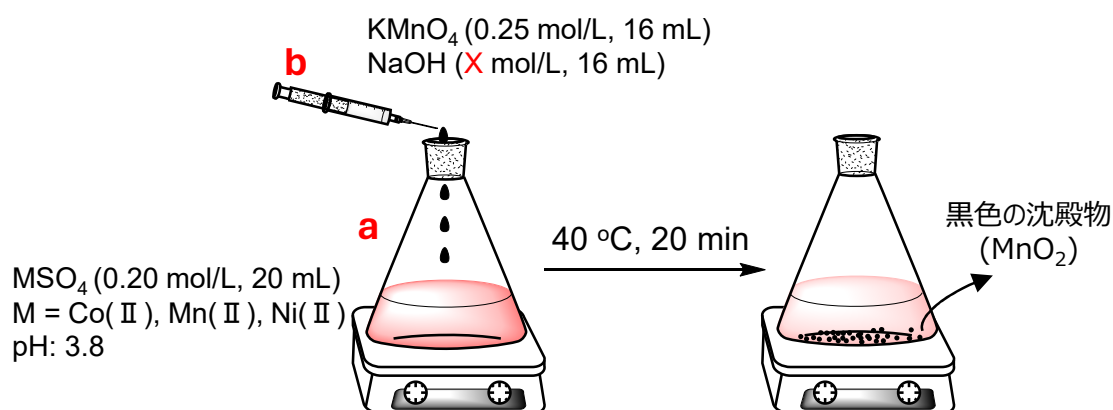


図 1 Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合溶液からの酸化沈殿法による Mn の選択的分離

浸出工程において硫酸が一般的に用いられているためである。反応後、生成した沈殿をろ過により回収し、蒸留水で洗浄後、真空乾燥した。得られた沈殿物を 1.0 mol/L 硝酸水溶液に溶解し、溶液中の Mn、Ni、Co 濃度を原子吸光分析 (AAS) により定量した。その結果、Mn の選択性は 59 %、回収率は 26 %と低い値に留まった（表 1, entry 1）。次に、酸性調整を行わない Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合水溶液（pH = 3.9）に KMnO₄水溶液を滴下したところ、Mn の選択性は 75 %、回収率は 29 %に向上した（entry 2）。しかしながら、いずれの条件においても Mn の沈殿量は十分とは言えず、分離性能の更なる改善が必要であった。

表 1 Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合溶液からの酸化沈殿法による Mn の選択的分離

entry	NaOH(mmol)	pH	Selectivity (%)	Recovery (%)
1	-	a : 2.0 b : 8.8	59	26
2	-	a : 3.9 b : 8.8	75	29
3	0.562	a : 3.9 b : 12.8	80	86
4	0.75	a : 3.9 b : 13.2	98	95
5	0.938	a : 3.9 b : 13.6	96	74

一方、斉藤らは Mn(II)の MnO_4^- による酸化反応が塩基性条件下で効率的に進行することを報告している²²⁾。そこで、反応系の pH が分離挙動に及ぼす影響を検討した。ただし、Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合水溶液を直接塩基化すると、 $\text{Ni}(\text{OH})_2$ や $\text{Co}(\text{OH})_2$ のコロイド状沈殿が生成することが確認された。そこで本研究では、NaOH を添加して塩基性に調整した KMnO_4 水溶液を、金属塩水溶液に滴下する方法を採用した。pH = 12.8 (NaOH 濃度 0.562 mol/L) に調整した KMnO_4 水溶液を滴下した場合、Mn の選択性は 80 %、回収率は 86 % へと大幅に向上した (entry 3)。さらに、NaOH 濃度を高めて pH = 13.2 (0.750 mol/L) とした KMnO_4 水溶液を用いたところ、Mn の選択性は 98 %、回収率は 95 % に達し、高選択的かつ高効率で Mn を分離できることが明らかとなった (entry 4)。一方、NaOH 濃度をさらに高めた条件 (pH = 13.6) では、Mn の選択性および回収率が低下した (entry 5)。

以上の結果から、反応溶液の pH が低い条件では Mn(II)の溶解性が高く、沈殿としての回収が困難であることが示唆される (entries 1 and 2)。一方、 KMnO_4 水溶液を塩基性とすることで、Mn(II)の酸化反応性が向上し、沈殿生成が促進されることが明らかとなった。これは、塩基性条件下において溶存酸素による Mn(II)の酸化反応が進行しやすくなるためと考えられる (式(9))。



一方、過剰な水酸化物イオンが存在する条件では、Ni(II)や Co(II)の水酸化物沈殿が生成し、Mn の選択性が低下することが確認された。以上より、 KMnO_4 による Mn(II)の酸化沈殿を利用した選択的分離法においては、NaOH により KMnO_4 水溶液の pH を 13.2 程度に制御することが最適条件であり、Mn を選択性 98 %、回収率 95 % で分離可能であることが明らかとなった。

3.2 Mn・Ni・Coの一括分離法の開発

前節(3.1)において、Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合溶液からMn(II)を選択的に酸化沈殿させることで、Mnを高選択性(98%)かつ高回収率(96%)で分離可能であることを明らかにした。また、我々はこれまでに、Ni(II)とCo(II)の還元挙動の差に基づき、生成物の磁性差を利用した高選択的Co/Ni分離法を確立している。これら二つの分離手法はいずれも高い分離性能を有する一方で、個別に工程を設けた場合、操作工程数の増加、装置構成の複雑化、および処理コストの増大が懸念される。特に、使用済みLIBの実用的リサイクルプロセスでは、大量処理・連続運転への適応性が求められることから、工程の簡素化と薬剤使用量の低減が不可欠である。そこで本研究では、Mnの酸化沈殿分離工程とNi/Coの磁力分離工程を連続的に統合したMn・Ni・Coの一括分離プロセスの構築を検討した(図2)。本節では、その分離挙動および実用的有効性について検討した結果を述べる。

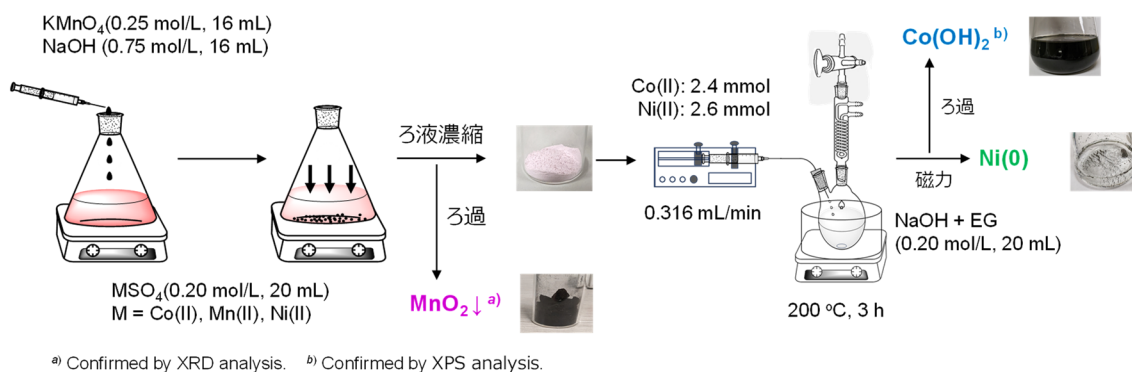


図2 Mn・Ni・Coの一括分離法

Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合溶液(pH 3.9、各金属濃度 0.200 mol/L)に対し、3.1で決定した最適条件に基づき、NaOHによりpH 13.2に調整した KMnO_4 水溶液(0.250 mol/L)を滴下し、40°Cで20分間攪拌した。反応後に生成した沈殿物を回収し、原子吸光分析により金属濃度を定量した。その結果、Mnの選択性は97%、回収率は95%と極めて高い値を示し、Mnが選択的に酸化沈殿分離されることが確認された(表2)。一方、NiおよびCoはほぼ溶存状態を維持しており、後段工程への供給が可能であることが示された。

表 2 Mn・Ni・Co の一括分離法

entry	Metal	Selectivity (%)	Recovery(%) ^{a)}
1	Mn	97	95
	Co	81	61
	Ni	76	90
2	Mn	97	95
	Co	91	89
	Ni	93	90

^{a)} Determined by atomic absorption analysis.

Mn 分離後のろ液を濃縮することで得られた淡黄色粉末中の金属含有量は、Co 1.83 mmol、Ni 2.00 mmol であった。この粉末をエチレングリコール (EG) 10 mL に溶解し、NaOH を含む EG 溶液 (0.200 mol/L) に対して、Ni/Co 分離における最適条件である滴下速度 0.315 mL/min でシリンジポンプにより滴下した。その後、200℃で 3 時間撹拌した。反応後、強磁性物質および非磁性物質が生成し、強磁性物質はネオジム磁石により分離した。非磁性物質はろ過により回収し、さらにろ液に過剰量の NaOH を添加して生成した沈殿物も回収した。各回収物中の金属濃度を AAS により定量した結果、Co は選択性 81 %、回収率 61 %、Ni は選択性 76 %、回収率 90 %を示した。これらの値は、既報の最適条件 (Co 選択性 90 %、回収率 94 % ; Ni 選択性 95 %) と比較して、選択性の低下が認められた。特に Ni の回収率が高い一方で選択性が低下していることから、Co(II)の還元反応も同時に進行していることが示唆された。これは、Mn 分離後に得られた溶液中で Ni 濃度が相対的に高く、Ni の高い還元性に引きずられる形で Co の還元が促進されたためと考えられる。

この仮説を検証するため、金属イオン濃度を 0.150 mol/L に低減し、滴下速度を 0.789、0.315、0.158 mL/min と変化させて Co/Ni 分離挙動を検討した (図 3)。その結果、0.315 mL/min における分離結果 (Ni 選択性 63 %、回収率 92 % ; Co 選択性 78 %、回収率 43 %) は、前述の Mn 分離後溶液を用いた結果と類似しており、金属濃度の低下が分離性能低下の一因であることが示された。

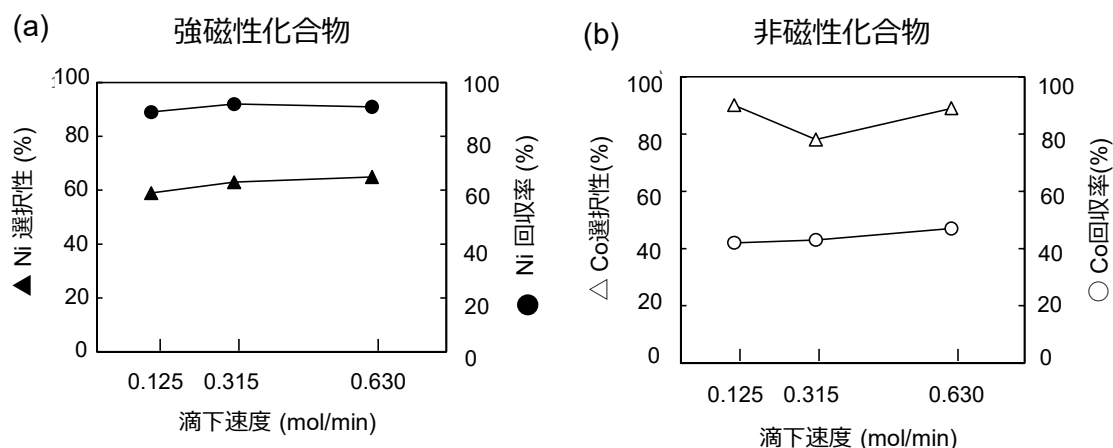


図3 Ni/Co の相互分離 ($[\text{Ni(II)}]_0 = [\text{Co(II)}]_0 = 0.15 \text{ mol/L}$)

そこで、Mn 分離後に得られる淡黄色粉末量を増加させ (Co 2.40 mmol、Ni 2.60 mmol)、同様の条件で Ni/Co 分離を実施した。EG 溶液 (10 mL) を NaOH 含有 EG 溶液 (0.200 mol/L) に対して 0.315 mL/min で滴下し、200℃で 3 時間攪拌した。その結果、Ni の選択性は 93 %、回収率は 90 %、Co の選択性は 91 %、回収率は 89 %と、いずれも大幅に改善され、選択的かつ高回収率での分離が可能であることが明らかとなった。

以上の結果より、Mn の酸化沈殿分離後の溶液に対して Co/Ni 磁力分離法を適用することで、Mn・Ni・Co を段階的かつ高選択的に分離可能であることが示された。本研究で提案する酸化沈殿法と還元・磁選法を組み合わせた一括分離プロセスは、工程数の削減、操作の簡素化、および環境負荷低減を同時に達成可能な、実用性の高い環境調和型金属分離プロセスであると結論付けられる。

4. まとめ

本研究では、使用済みリチウムイオン二次電池 (LIB) に含まれる主要金属である Mn、Ni、Co を対象として、工程数の削減と環境負荷低減を両立した新規一括分離プロセスの構築を目的に検討を行った。

まず、Mn(II)/Ni(II)/Co(II)混合水溶液から Mn を選択的に分離する手法として、過マンガン酸カリウム (KMnO_4) を酸化剤とする酸化沈殿法を検討した。その結果、NaOH により KMnO_4 水溶液の pH を 13.2 に制御することで、Mn(II)を MnO_2 として選択的 (98 %) かつ高回収率 (95 %) で分離可能であることを明らかにした。この手法では、Ni(II)および Co(II)の共沈を抑制しつつ Mn のみを優先的に除去できる点が特徴である。

次に、Mn 分離後の溶液に対して、既報のポリオール法に基づく Ni/Co 磁力分離法を適用した。その結果、金属イオン濃度および滴下速度が分離挙動に大きく影響することが明らかとなり、Mn 分離後溶液中の Ni/Co 濃度を適切に制御することで、Ni (金属 Ni) および Co (非磁性化合物) を選択的かつ高回収率 (Ni : 選択性 93 %、回収率 90 % ; Co : 選

択性 91 %、回収率 89 %) で分離できることを示した。

以上の結果より、Mn の酸化沈殿分離と Ni/Co の還元・磁選分離を連続的に組み合わせることで、Mn・Ni・Co を段階的かつ高選択的に回収可能な一括分離プロセスを確立した。本プロセスは、従来の湿式冶金プロセスと比較して工程数が少なく、有機溶媒の使用を抑制できる点で環境調和型であり、使用済み LIB リサイクルへの実用的応用が期待される。

謝辞

本研究は公益財団法人 JFE21 世紀財団の研究助成をもとに行われました。ここに深く謝意を表します。尚、本研究の一部は Hydrometallurgy に投稿中である。

参考文献

- [1] Z. Yao, R. Yin, Q. Peng, A review on thermal management system and employed biomimetic technology to enhance lithium-ion battery packs for electric vehicles, *J. Energy Storage* **111**, 115399 (2025).
- [2] R. Suganya, L.M.I. Leo Joseph, S. Kollem, Understanding lithium-ion battery management systems in electric vehicles: Environmental and health impacts, comparative study, and future trends: a review, *Results Eng.* **24**, 103047 (2024).
- [3] R.E. Kassar, A.A. Takash, J. Faraj, M. Hammoud, M. Khaled, H.S. Ramadan, Recent advances in lithium-ion battery integration with thermal management systems for electric vehicles: a summary review, *J. Energy Storage* **91** 112061 (2024).
- [4] D. Shao, L. Hu, J. Zhang, R. Hu, G. Zhang, L. Jiang, X. Wang, Y. Wen, Advanced low-temperature preheating strategies for power lithium-ion batteries applied in electric vehicles: a review, *Int. J. Electrochem. Sci.* **19**, 100817 (2024).
- [5] J. Guo, X. Li, X. Xiang, Z. Shao, Recycling, regeneration, and reutilization of cathode materials of spent $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_{(1-x-y)}\text{O}_2$ batteries, *J. Environ. Chem. Eng.* **12**, 114740 (2024).
- [6] J. Meng, G. Qu, Y. Huang, Stabilization strategies for high-capacity NCM materials targeting for safety and durability improvements, *eTransportation* **16**, 100233 (2023).
- [7] J. Tan, Z. Cheng, J. Zhang, X. Xiang, Nucleation-oxidation coupled technology for high-nickel ternary cathode recycling of spent lithium-ion batteries, *Sep. Purif. Technol.* **298**, 121569 (2022).
- [8] S. Wang, J.A. Yu, Comparative life cycle assessment on lithium-ion battery: case study on electric vehicle battery in china considering battery evolution, *Waste Manage.* **39**, 156-164 (2021).

- [9] D. Dang, Y. Qu, Z. Ma, L. Yu, L. Duan, W. Liu, The effect of elemental doping on nickel-rich NCM cathode materials of lithium ion batteries, *J. Phys. Chem. C* **126**, 151-159 (2021).
- [10] J. Dunn, A. Kendall, M. Slattery, Electric vehicle lithium-ion battery recycled content standards for the US-targets, costs, and environmental impacts, *Resour. Conserv. Recycl.* **185**, 106488 (2022).
- [11] Q. Hoarau, E. Lorang, An assessment of the European regulation on battery recycling for electric vehicles, *Energy Policy* **162**, 112770 (2022).
- [12] L. Albertsen, J.L. Richter, P. Peck, C. Dalhammar, A. Plepys, Circular business models for electric vehicle lithium-ion batteries: an analysis of current practices of vehicle manufactures and policies in the EU, *Resour. Conserv. Recycl.* **172**, 105658 (2021).
- [13] Practical hydrometallurgical process of Li from spent LIBs has been constructed. See references 14-16.
- [14] B. Swain, Recovery and recycling of lithium: a review, *Sep. Purif. Technol.* **172**, 388-403 (2017).
- [15] X. Guo, C. Xiao, G. Huang, Q. Tian, H. Sun, Recovery of lithium from the effluent obtained in the process of spent lithium-ion batteries recycling, *J. Env. Manage.* **198**, 84-89 (2017).
- [16] J. Ordonez, E.J. Gago, A. Girard, Processes and technologies for the recycling and recovery of spent lithium-ion batteries, *Renew. Sust. Energ. Rev.* **60**, 195-205 (2016)
- [17] C. Li, G. Dai, R. Liu, C. Wang, S. Wang, Y. Ju, H. Jiang, S. Jiao, C. Duan, Separation and recovery of nickel cobalt manganese lithium from waste ternary lithium-ion batteries, *Sep. Purif. Technol.* **306**, 122559 (2023).
- [18] Q. Li, K. Y. Fung, K. M. Ng, Separation of Ni, Co, and Mn from spent $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.3}\text{Co}_{0.2}\text{O}_2$ cathode materials by ammonia dissolution, *ACS Sustain. Chem. Eng.* **7**, 12718-12725 (2019).
- [19] R. Sattar, S. Ilyas, H. N. Bhatti, A. Ghaffar, Resource recovery of critically-rare metals by hydrometallurgical recycling of spent lithium ion batteries, *Sep. Purif. Technol.* **209**, 725-733 (2019).
- [20] X. Chen, Y. Chen, T. Zhou, D. Liu, H. Hu, S. Fan, Hydrometallurgical recovery of metal values from sulfuric acid leaching liquor of spent lithium-ion batteries, *Waste Manag.* **38**, 349-356 (2015).

- [21] R.-C. Wang, Y.-C. Lin, S.-H. Wu, A novel recovery process of metal values from the cathode active materials of the lithium-ion secondary batteries, *Hydrometallurgy* **99**, 194-201 (2009).
- [22] T. Saito, Y. Ozawa, G. Kondo, Water treatment. II. Removal of manganese from water by using potassium permanganate, *Kogyo Kagaku Zasshi* **66**, (1963) 1645-1647.