

# 退役动力磷酸铁锂电池的回收工艺研究进展

吴一帆\*, 胡书春, 刘卓琳, 杨欣怡, 何志成, 任亚琦#

成都工业学院材料与环境工程学院, 四川 成都

收稿日期: 2023年5月30日; 录用日期: 2023年7月19日; 发布日期: 2023年7月31日

## 摘要

近年来, 为了加快“碳达峰”、“碳中和”的进程, 减少碳排放, 新能源汽车的产量和销量都呈现出持续爆发式增长的现象。然而, 新能源汽车的心脏——动力电池的寿命有限, 这就意味着大量的动力电池将会接连进入退役状态, 如何对其进行高效的回收再利用已成为各界所关注的问题。本文对退役磷酸铁锂电池的正极材料的回收工艺进行了总结, 包括火法回收、湿法回收、修复再生以及其他新型回收工艺, 并在此基础上阐述了电化学法回收工艺的优越性, 其有望成为未来研究的重点方向。

## 关键词

锂离子电池, 磷酸铁锂电池, 回收工艺, 电化学法

# Progress in Recycling Processes of Retired Power Lithium Iron Phosphate Batteries

Yifan Wu\*, Shuchun Hu, Zhuolin Liu, Xinyi Yang, Zhicheng He, Yaqi Ren#

School of Materials and Environmental Engineering, Chengdu Technological University, Chengdu Sichuan

Received: May 30<sup>th</sup>, 2023; accepted: Jul. 19<sup>th</sup>, 2023; published: Jul. 31<sup>st</sup>, 2023

## Abstract

In recent years, in order to accelerate the process of “carbon peaking” and “carbon neutrality” and reduce carbon emissions, the production and sales of new energy vehicles have shown a continuous explosive growth. However, the heart of new energy vehicles-power batteries have a limited life span, which means that a large number of power batteries will enter into retirement one after another. How to recycle them efficiently has become a concern for all walks of life. This paper summarizes the recycling processes of the cathode material of retired lithium iron phosphate

\*第一作者。

#通讯作者。

文章引用: 吴一帆, 胡书春, 刘卓琳, 杨欣怡, 何志成, 任亚琦. 退役动力磷酸铁锂电池的回收工艺研究进展[J]. 材料科学, 2023, 13(7): 703-711. DOI: 10.12677/ms.2023.137076

batteries, including pyrometallurgy, hydrometallurgy, regeneration, as well as other new recycling processes. On this basis, the superiority of the electrochemical recovery process is described, and this method is expected to become a key direction for future research.

## Keywords

Lithium-Ion Batteries, Lithium Iron Phosphate Batteries, Recycling Processes, Electrochemical Method

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

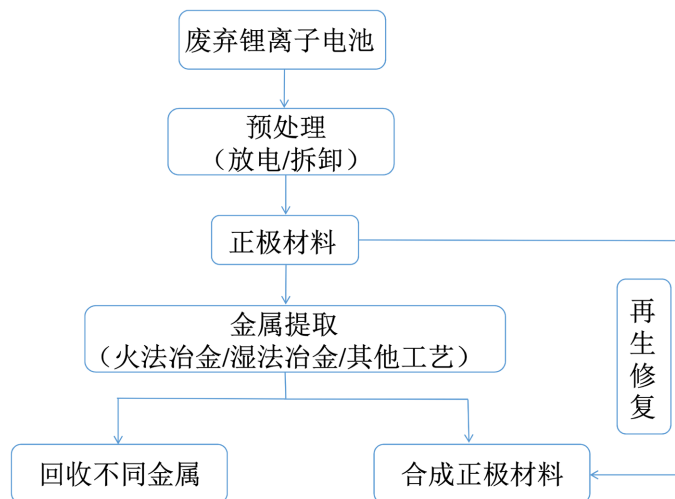
在各类动力电池中, 锂离子电池因其特殊的结构和材料, 相比于铅酸电池和镍氢电池, 具有能量密度高、循环寿命长、自放电小、工作电压稳定、工作环境宽松等众多优点, 是极具潜力和竞争力的储能技术, 在便携式电子产品(笔记本电脑、手机、数码相机)、新能源汽车、大型储能设备等领域中应用广泛[1][2]。据资料显示, 在2022年, 新能源汽车销量接近七百万辆, 但是一般动力电池的使用年限为5~8年, 真正的使用寿命只有4~6年, 巨大的销量也就暗示着未来动力电池大规模退役潮必然会到来。锂离子电池主要由外壳、正极、负极、电解液、隔膜五个部分构成, 其中正极材料占据电池的40%以上, 是核心部分[3]。根据其正极材料的不同, 锂离子电池可分为锰酸锂电池、钴酸锂电池、镍钴锰三元锂电池、磷酸铁锂电池等。退役的锂离子电池中存在有毒物质和重金属, 若未处理或处理不当就直接丢弃, 则会对环境和人体健康造成较严重的伤害; 另一方面, 锂离子电池中含有锂、镍、铜等贵金属, 若能够对这些金属进行资源回收甚至再利用, 可以我国目前缓解锂、钴等资源缺乏的紧张现状, 也对新能源行业的绿色环保可持续发展具有重要意义。本文对近几年来主要的退役磷酸铁锂电池的正极材料回收工艺进行总结, 并对其资源化再利用进行展望, 为退役磷酸铁锂电池的规模化回收提供参考。

## 2. 退役磷酸铁锂电池的回收现状

磷酸铁锂材料是由“锂电池之父”称号的 Goodenough 在 1997 年发现的, 他第一次把磷酸铁锂作为锂离子电池的正极材料。磷酸铁锂是正交的橄榄石晶体结构, 具有高能量密度、安全性好(不含对人体有害的重金属)、有效寿命长(充放电可超过 2000 次)、价格低廉、原材料来源广泛等优异特点, 因此也被广泛应用到各个领域, 比如大型储能设备、电动工具、电动车辆、医疗器械等[4][5]。

伴随着大规模的动力电池退役, 磷酸铁锂电池的回收再利用迫在眉睫。国际上, 比利时的 Umicore 公司、法国的 AFE Group (Valdi) 公司、加拿大的 Glencore 公司对锂离子电池的年处理量超过 5000 吨, 国内的格林美公司、邦普公司回收处理锂离子电池每年可达上万吨[6][7]。然而这些公司还没有专门针对磷酸铁锂电池的资源化再利用的成熟的商业化工工艺。

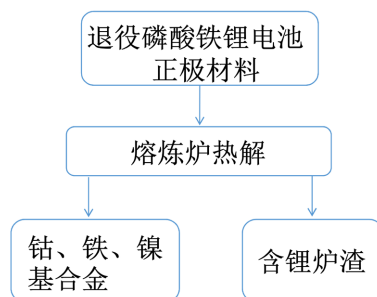
退役电池的回收再利用一般包括预处理(将退役电池进行放电、各组分拆解)、金属元素选择性提取回收或再生利用等阶段, 如图 1 所示, 其中核心过程就是金属元素的提取回收, 这一阶段通常采用的是多种工艺结合处理的方法[8]。磷酸铁锂电池的资源化再利用一般分为火法回收工艺、湿法回收工艺、再生修复工艺以及其他新型方法[9][10]。根据具体的应用需求, 选择性的回收退役磷酸铁锂电池中某些金属或化合物并进行合理的再利用, 更加能够实现新能源的可持续发展[11][12]。



**Figure 1.** A brief process and method for recycling retired power batteries  
**图 1.** 回收退役动力电池的简要流程和方法的示意图

### 3. 火法回收

火法回收工艺通常需要对电池的正极材料进行高温焙烧处理，此方法操作简单，在工业上可以被成熟应用，简要流程图如图 2 所示，但是此方法对金属的回收效率较低，经济性较差[13]。



**Figure 2.** Diagram of pyrometallurgy  
**图 2.** 火法回收流程示意图

在高温焙烧过程中，电极碎片中的有机物和碳被去除，金属化合物则被还原成金属，进而转化为合金，但在这个过程中锂会以炉渣的形式存在，难以回收，而且高温处理会不可避免的产生大量的二噁英、粉尘和氟化物等有害物质，造成二次污染，环境不友好，国内企业在实际生产中应用火法回收也比较少[14][15]。因此，火法回收工艺的前景并不明朗，若想要提高回收的经济性，则需要火法回收与其他工艺进行结合[16]。袁文辉等以钴酸锂电池为原料，配以氧化硅-氧化钙-氧化铝型炉渣，焦炭和铝箔作为还原剂，得到的合金是钴-铜-铁合金，合金中三种金属质量占比为 95.7%，但钴的回收率较低，为 58.7%，锂在合金中只有 0.01%，基本未熔入合金中[17]。火法高温焙烧确实能够回收部分有价值的金属，但像锂等贵价金属不能熔入合金，混杂在炉渣中，如何提高全部金属的回收率将是本方法的研究重点。基于此，Dang 等探索出一种氯化焙烧法来回收炉渣中的锂，选择氯化钠、氯化钙和氯化铝作为焙烧时的给氯剂，将炉渣中锂的氧化物转化为氯化锂，氯化锂高温易蒸发[18]。经实验对比，炉渣与氯化钙在 1000℃下焙烧 90 分钟，氯和锂的摩尔比达到 1.8:1 时，锂的蒸发率超过 97%，再将蒸发的锂进行收集，从而达到回收锂的目的。

然而，磷酸铁锂因其特殊的橄榄石的晶体结构，焙烧的温度远超过钴酸锂、锰酸锂等，需要达到极高的温度才有可能还原出金属，这又导致了额外的资源损耗，所以磷酸铁锂电池的回收工艺通常不采用火法回收。

#### 4. 湿法回收

湿法回收工艺是把已经过预处理的正极材料溶解在溶液(浸出剂)中，金属离子从浸出剂中浸出，再经过萃取提纯从而生成目标产物，这种工艺可以选择性的回收金属离子，效果显著，简要的工艺流程如图 3 所示[19][20]。

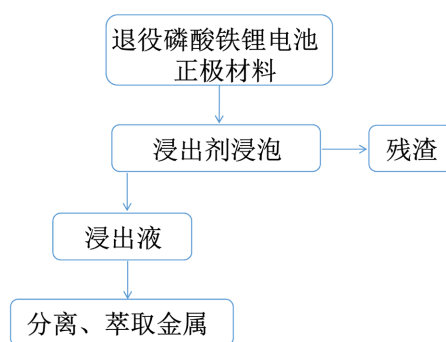


Figure 3. Diagram of hydrometallurgy

图 3. 湿法回收流程示意图

浸出环节是湿法回收的关键，此环节的的目的是让正极材料中的金属从固态转变为液态，以离子的形式存在于溶液中，为后续的萃取提纯做铺垫。浸出剂使用较多的有硫酸、硝酸、盐酸、磷酸等。磷酸铁锂电池的浸出通常有两种路线，一种是常规的将锂和铁均以离子形式浸出，另一种则是选择性浸出锂离子，铁以化合物形式回收。然而，由于具有橄榄石结构的磷酸铁锂十分稳定，常规的浸出路线会消耗较多的酸，经济耗费高，对环境不友好，相比之下，选择性浸出锂离子的路线则可行性较高。Li 等研究出一种选择性浸出工艺，采用低浓度的硫酸作为浸出剂，同时加入了过氧化氢( $H_2O_2$ )作为氧化剂，锂能够选择性的浸出到溶液中，再通过反应以磷酸锂的形式回收，铁离子则从+2 价氧化到+3 价，铁和磷以磷酸铁的形式存在于浸出渣中，在最优实验条件下，锂的浸出率为 96.85%，铁的浸出率为 0.027%，磷的浸出率为 1.95% [21]。此工艺大大降低了常规路线中酸的消耗，为磷酸铁锂电池的湿法回收提供了一种新思路。

然而，使用硫酸、硝酸等作为浸出剂在会产生混合酸的废液，采用磷酸就可以避免此类情况的发生，但是磷酸对磷酸铁锂的溶解有一定的影响，会使得锂离子的浸出率有所降低，通常需要其他工艺进行辅助处理。王子璇等采用磷酸作为浸出剂，通过电解法提高了锂在磷酸体系中的浸出率[22]。在电解电压 2.5 V、磷酸电解液浓度为  $0.6 \text{ mol/dm}^3$  反应条件下，锂的浸出率可达到 95.6%，再通过氨水调节浸出溶液的 pH 值进行分步沉淀，铁和锂分别以二水合磷酸铁、磷酸锂的形式回收，铁和锂的回收率分别为 98.8% 和 99.4%。在整个过程中除了磷酸根没有引入其他酸根，副产物只有磷酸二氢铵，克服了湿法回收时二次废料多，成本高的问题，实现了退役磷酸铁锂电池中金属的选择性回收和资源的高效再利用。

无机酸虽然能够高效的选择性浸出金属离子，但同时也会产生对环境有害的废水，由此，有机酸也就进入了学者们的视线，有机酸的优点在于其具有可生物降解的特性，绿色环保，并且已经研究出柠檬酸、草酸、苹果酸、甲酸等都有较高的浸出率[23]。Kumar 等提出了以柑橘类果汁作为浸出剂，此类果汁中含有丰富的柠檬酸、苹果酸等有机酸[24]。在柑橘类果汁和  $H_2O_2$  混合浸出剂中加入废旧磷酸铁锂粉末

浸泡, 锂离子浸出在溶液中, 铁以磷酸铁形式沉淀, 浸出液再用碳酸钠处理, 最后得到产物碳酸锂。通过多次实验对比, 发现在柠檬、苹果和橘子中, 柠檬汁的浸出效果最好, 锂的浸出率可达 94.83%, 铁和磷的浸出率分别为 4.05% 和 0.84%。有机酸相比于无机酸, 污染较小, 但成本较高, 而且作为新兴浸出剂, 目前对其机理研究尚不完全, 还有待进一步的研究探索。

湿法回收浸出时需要使用大量的无机酸性溶液, 酸腐蚀性较大, 这对实验设备的耐腐蚀能力有较高要求, 同时大量酸溶液形成大量的废液, 废液难以处理, 但若直接排放对环境对人体都造成二次伤害。有机酸虽然环境友好且有较好的浸出效果, 但成本较高, 湿法回收工艺仍需深入钻研。

## 5. 修复再生

修复再生工艺不会破坏材料, 不通过金属浸出环节, 直接修复正极材料的晶体结构, 从而恢复其电化学性能。与前两种工艺方法相比, 修复再生工艺简单, 流程短, 可以降低金属回收过程中的损耗, 实现电池中金属离子在服役和退役间的闭环, 但如何把回收材料中的杂质尽可能的去除, 以实现高效修复结构还是目前实验室研究的热点[25]。

研究表明, 锂离子电池失效的原因之一是电池在多次充放电循环过程中造成了锂的缺失进而导致材料的不可逆改变, 因此补充锂源是提高再生正极材料电化学性能的重要途径。除此之外, 铁、磷、碳等也是制备再生材料所需补加的元素。

高温固相再生法是最常用的修复再生的方法, 一般是在高温惰性气氛中将退役电池的正极材料制备为碳包覆磷酸铁锂。陈永珍等采用在退役电池正极材料中添加了的锂、铁、磷源进行高温固相修复, 其中  $n(\text{锂}):n(\text{铁}):n(\text{磷})=1.05:1:1$ , 产物为再生材料 a1, 再进一步添加过量的锂、铁、磷源, 分别得到过量元素源再生材料 a2、a3、a4, 调控 a1 与 a2、a3、a4 摩尔比为 1:0.5、1:1.0、1:1.5 [26]。氩气气氛中将 4 种再生材料均升温至 650℃ 保温 10 小时, 而后进行电化学性能测试, 在 0.1C 倍率下, 退役材料的首次放电容量为 103.4 mAh/g, 再生材料 a3 的首次放电容量最高为 134.0 mAh/g; 经过 50 次充放电循环后, 再生材料 a3 的放电容量依然最高, 为 115.3 mAh/g。锂、铁、磷源的加入在一定程度上改善了退役材料的电化学性能, 但是产物再生材料的含碳量稍有偏高。董重瑞等提出一种先将正极材料氧化除碳, 再在制备再生材料时补加碳源的方法[27]。具体工艺流程为将退役电池正极片在 400℃ 的空气气氛中煅烧 4 小时(测试结果显示正极材料中的碳基本去除干净), 再向其中加入碳酸锂和磷酸二氢铵以补充锂、铁、磷, 比例为  $n(\text{锂}):n(\text{铁}):n(\text{磷})=1.05:1:1$ , 然后加入蔗糖作为碳源, 调节碳含量分别为 5%、10%、15%, 球磨混合后置于高纯度氩气中高温煅烧, 最终得到含碳量可控的再生材料。含碳量 5% 的再生材料在 0.1C 倍率下首次放电容量达到 133.8 mAh/g, 1C 倍率下首次放电容量为 108.5 mAh/g, 循环 300 次后依然保持 100.4 mAh/g, 容量保持率达 92.5%, 电化学性能与商业磷酸铁锂正极相接近。此方法解决了高温固相修复后再生材料的碳含量偏高的问题, 能够根据需求准确控制再生材料的含碳量, 前景可期。

除了上述的高温固相再生法, 水热法是正极材料再生技术的另一种工艺。Song 等提出了一种采用水热法将退役磷酸铁锂电池的正极材料和负极材料同时再生的闭环回收工艺, 机理如图 4 所示[28]。废旧磷酸铁锂和氢氧化锂(锂源)、抗坏血酸(还原剂)、十二烷基苯磺酸钠一起加入到去离子水中进行水热反应, 同时加入由回收的石墨制备而成的氧化石墨烯, 一段时间后氧化石墨烯被还原为石墨烯, 同时磷酸铁锂的橄榄石晶体结构恢复, 得到的产物是磷酸铁锂分布在石墨烯层间结构中的复合材料。这种复合材料呈球形, 颗粒非常均匀, 0.2C 下初始放电容量为 163.3 mAh/g, 充放电 100 次后容量保留率为 99.63%, 具有稳定的循环性能和优异的倍率容量。此种工艺绿色环保、低成本、高回报, 得到的磷酸铁锂/石墨烯复合材料比高温固相再生得到的磷酸铁锂正极材料在电动汽车和混合动力汽车产业中应用的表现得更加优异。

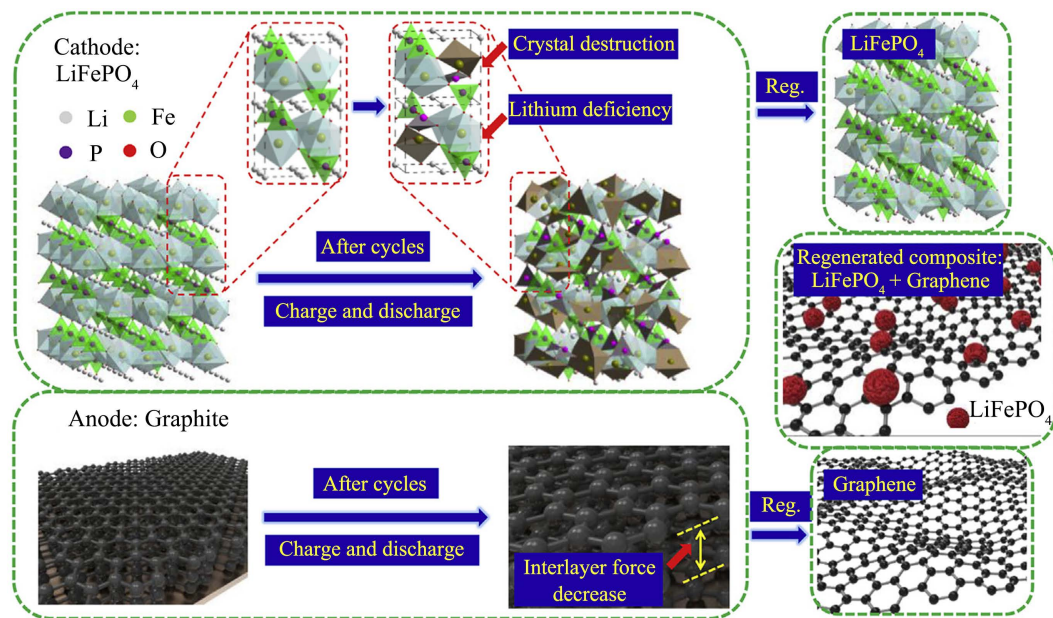


Figure 4. Mechanism of cathode/anode integrated regeneration process of spent LiFePO<sub>4</sub> battery including spent cathode and anode [28]

图 4. 退役磷酸铁锂电池正负极一体化再生机理示意图[28]

## 6. 其他新型工艺

在近几年的报道中，磷酸铁锂电池还可以通过盐辅助碳热还原法、电化学法等进行回收，这都是较为新型的回收方法，仍需进一步的探索。

磷酸铁锂因具有橄榄石结构，热力学性质稳定，不能被还原，火法回收较为困难。Zhang 等在退役电池正价材料与石墨的混合物的焙烧过程中加入碳酸钠，碳酸钠作为活化剂，破坏了磷酸铁锂中铁与磷酸之间的化学键，并且将其转化生成铁和锂盐，工艺流程如图 5 所示[29]。温度为 900℃， $n$ (磷酸铁锂): $n$ (碳酸钠) = 1:1， $n$ (磷酸铁锂): $n$ (石墨) = 1:2，焙烧时间为 4 h 时，磷酸铁锂中铁离子可以完全转化为铁，再通过磁选分离，回收锂盐，锂的回收率高达 99.2%。此工艺弥补了传统火法回收磷酸铁锂的难点，工艺简单，在工业应用上展现出巨大的潜力。

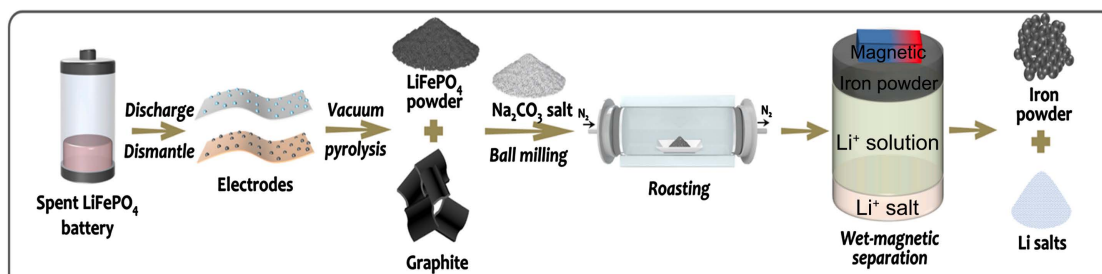
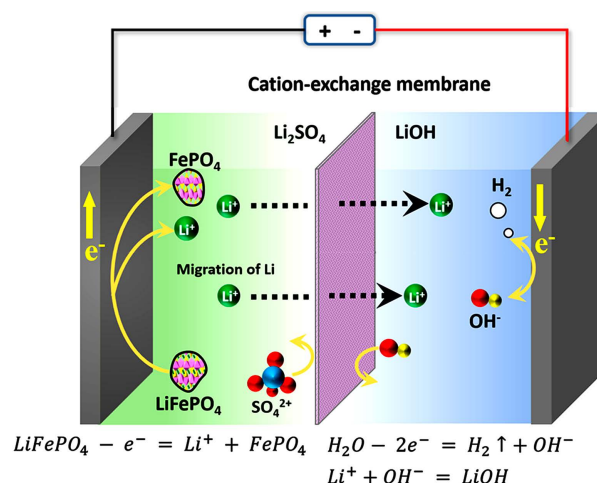


Figure 5. Flow diagram for the Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-assisted carbothermic roasting-magnetic separating process

图 5. 钠盐辅助碳热焙烧-磁选工艺流程示意图[29]

中南大学的 Li 等采用电化学法回收退役的磷酸铁锂材料，机理如图 6 所示，将磷酸铁锂置于电解池的阳极中，经过氧化还原反应，释放出锂，并生成磷酸铁，浸出的锂通过阳离子交换膜迁移到阴极中，在阴极与氢氧根形成氢氧化锂(LiOH)，然后真空蒸发结晶就可以得到高纯度的 LiOH·H<sub>2</sub>O [30]。在这个过

程中未使用有污染的浸出剂，也可使锂的浸出率达到 95%以上，并且回收得到的产物也具有较高的经济价值，是一种极具有前景的绿色环保回收方法。



**Figure 6.** Mechanistic of electrochemical method [30]  
**图 6.** 电化学法机理示意图[30]

## 7. 总结与展望

近年来，随着新能源行业的发展，电动汽车对动力电池的使用量越来越多，退役的磷酸铁锂离子电池的资源再利用备受关注。退役磷酸铁锂电池中含有较多的金属离子和有毒有害物质，若不对其进行合理的回收再利用将会导致环境和经济的双重损失。

火法回收发展时间较长，工艺相对成熟，但是同样会造成环境污染；湿法回收中，可选择性回收金属离子，回收率高，但流程长，使用的浸出剂也需要再次处理，成本高；修复再生工艺操作简单、成本低、环境友好、能源消耗少，但是不同的退役电池根据其失效原因需制定针对性的修复工艺，难以实现工业化。

电化学法不使用大量的浸出剂，并且成本低、污染小、操作简单，本课题组正在研究此方法对退役磷酸铁锂电池进行回收，期望能为退役动力电池的回收行业做出贡献。

## 参考文献

- [1] Xin, Y.M., Xu, H.Y., Ruan, J.H., *et al.* (2021) A Review on Application of  $\text{LiFePO}_4$  Based Composites as Electrode Materials for Lithium-ion Batteries. *International Journal of Electrochemical Science*, **16**, Article ID: 210655. <https://doi.org/10.20964/2021.06.33>
- [2] Werner, D., Peuker, U.A. and Mütze, T. (2020) Recycling Chain for Spent Lithium-Ion Batteries. *Metals*, **10**, Article 316. <https://doi.org/10.3390/met10030316>
- [3] Kumawat, S., Singh, D. and Saini, A. (2022) Recycling of Spent Lithium-Iron Phosphate Batteries: Toward Closing the Loop. *Materials and Manufacturing Processes*, **38**, 135-150. <https://doi.org/10.1080/10426914.2022.2136387>
- [4] Padhi, A.K., Nanjundaswamy, K.S. and Goodenough, J.B. (1997) Phospho-Olivines as Positive-Electrode Materials for Rechargeable Lithium Batteries. *Journal of the Electrochemical Society*, **144**, 1188-1194. <https://doi.org/10.1149/1.1837571>
- [5] Fatima, N., Solangi, N., Safdar, F., *et al.* (2022) A Short Overview of Recycling and Treatment of Spent  $\text{LiFePO}_4$  Battery. *North American Academic Research*, **5**, 76-87.
- [6] Mayyas, A., Steward, D. and Mann, M. (2019) The Case for Recycling: Overview and Challenges in the Material Supply Chain for Automotive Li-Ion Batteries. *Sustainable Materials and Technologies*, **19**, e00087. <https://doi.org/10.1016/j.susmat.2018.e00087>

- [7] Gu, F., Guo, J.F., Yao, X., *et al.* (2017) An Investigation of the Current Status of Recycling Spent Lithium-Ion Batteries from Consumer Electronics in China. *Journal of Cleaner Production*, **161**, 765-780. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2017.05.181>
- [8] Nagori, S., Mathad, V., Pachpore, S.S., *et al.* (2021) A Review of Industrial Processes for Recycling of Li-Ion Batteries. *Design Engineering*, **8**, 1230-1240.
- [9] Dalini, E.A., Karimi, G.R., Zandvakili, S., *et al.* (2020) A Review on Environmental, Economic and Hydrometallurgical Processes of Recycling Spent Lithium-Ion Batteries. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, **197**, 1-22.
- [10] Forte, F., Pietrantonio, M., Pucciarmati, S., Puzone, M. and Fontana, D. (2021) Lithium Iron Phosphate Batteries rEcycling: An Assessment of Current Status. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, **51**, 2232-2259. <https://doi.org/10.1080/10643389.2020.1776053>
- [11] Li, X.L., Zhang, J., Song, D.W., Song, J.S. and Zhang, L.Q. (2017) Direct Regeneration of Recycled Cathode Material Mixture from Scrapped LiFePO<sub>4</sub> Batteries. *Journal of Power Sources*, **345**, 78-84. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2017.01.118>
- [12] Liu, T., Jiao, F., Zhong, X.H., *et al.* (2019) Research Progress of Repair Regeneration of Anode and Cathode Materials from Spent LiFePO<sub>4</sub> Battery. *Chinese Journal of Power Sources*, **43**, 699-701.
- [13] Zheng, X.H., Zhu, Z.W., Lin, X., *et al.* (2018) A Mini-Review on Metal Recycling from Spent Lithium Ion Batteries. *Engineering*, **4**, 361-370. <https://doi.org/10.1016/j.eng.2018.05.018>
- [14] Gaines, L. (2018) Lithium-Ion Battery Recycling Processes: Research towards a Sustainable Course. *Sustainable Materials and Technologies*, **17**, e00068. <https://doi.org/10.1016/j.susmat.2018.e00068>
- [15] Zhou, L.F., Yang, D.R., Du, T., Gong, H. and Luo, W.B. (2020) The Current Process for the Recycling of Spent Lithium Ion Batteries. *Frontiers in Chemistry*, **8**, Article 578044. <https://doi.org/10.3389/fchem.2020.578044>
- [16] Bai, Y.C., Muralidharan, N., Sun, Y.K., *et al.* (2020) Energy and Environmental Aspects in Recycling Lithium-Ion Batteries: Concept of Battery Identity Global Passport. *Materials Today*, **41**, 304-315. <https://doi.org/10.1016/j.mattod.2020.09.001>
- [17] 袁文辉, 邱定蕃, 王成彦. 还原熔炼失效锂离子电池制备 Co-Cu-Fe 合金[J]. 材料科学与工艺, 2010, 18(4): 455-458.
- [18] Dang, H., Wang, B.F., Chang, Z.D., *et al.* (2018) Recycled Lithium from Simulated Pyrometallurgical Slag by Chlorination Roasting. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, **6**, 13160-13167. <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.8b02713>
- [19] Fan, M., Zhao, Y., Kang, Y.Q., *et al.* (2022) Room-Temperature Extraction of Individual Elements from Charged Spent LiFePO<sub>4</sub> Batteries. *Rare Metals*, **41**, 1595-1604. <https://doi.org/10.1007/s12598-021-01919-6>
- [20] Liu, P.W., Fei, Z.T., Zhang, Y.J., *et al.* (2022) Efficient Oxidation Approach for Selective Recovery of Lithium from Cathode Materials of Spent LiFePO<sub>4</sub> Batteries. *JOM*, **74**, 1934-1944. <https://doi.org/10.1007/s11837-022-05172-9>
- [21] Li, H., Xing, S.Z., Liu, Y., *et al.* (2017) Recovery of Lithium, Iron, and Phosphorus from Spent LiFePO<sub>4</sub> Batteries Using Stoichiometric Sulfuric Acid Leaching System. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, **5**, 8017-8024. <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.7b01594>
- [22] 王子璇, 李俊成, 李金东, 等. 废磷酸铁锂正极材料资源化回收工艺[J]. 储能科学与技术, 2022, 11(1): 45-52.
- [23] Fan, E., Li, L., Zhang, X.X., *et al.* (2018) Selective Recovery of Li and Fe from Spent Lithiumion Batteries by an Environmentally Friendly Mechanochemical Approach. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, **6**, 11029-11035. <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.8b02503>
- [24] Kumar, J., Shen, X., Li, B., *et al.* (2020) Selective Recovery of Li and FePO<sub>4</sub> from Spent LiFePO<sub>4</sub> Cathode Scraps by Organic Acids and the Properties of the Regenerated LiFePO<sub>4</sub>. *Waste Management*, **113**, 32-40. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2020.05.046>
- [25] 杨秋菊, 赵世超, 王楠, 等. 废旧动力锂离子电池中磷酸铁锂的再生[J]. 电池, 2014(1): 60-62.
- [26] 陈永珍, 黎华玲, 宋文吉, 等. 废旧磷酸铁锂材料的固相再生及电化学性能研究[J]. 化工学报, 2018, 69(12): 5316-5325.
- [27] 董重瑞, 赵光金, 赵栋, 等. 废旧电池磷酸铁锂正极的中温回收及再生[J]. 电源技术, 2019, 43(2): 201-203, 240.
- [28] Song, W., Liu, J.W., You, L., *et al.* (2019) Re-Synthesis of Nano-Structured LiFePO<sub>4</sub>/Graphene Composite Derived from Spent Lithium-Ion Battery for Booming Electric Vehicle Application. *Journal of Power Sources*, **419**, 192-202. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2019.02.065>
- [29] Zhang, B.L., Qu, X., Chen, X., *et al.* (2022) A Sodium Salt-Assisted Roasting Approach Followed by Leaching for Recovering Spent LiFePO<sub>4</sub> Batteries. *Journal of Hazardous Materials*, **424**, Article ID: 127586.



- 
- <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.127586>
- [30] Li, Z., He, L.H., Zhu, Y.F. and Yang, C. (2020) A Green and Cost-Effective Method for Production of LiOH from Spent LiFePO<sub>4</sub>. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, **8**, 15915-15926.  
<https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.0c04960>