



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0089964  
(43) 공개일자 2025년06월19일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

H01M 10/54 (2006.01) H01M 4/02 (2006.01)  
H01M 4/505 (2010.01) H01M 4/525 (2010.01)

(52) CPC특허분류

H01M 10/54 (2023.01)  
H01M 4/505 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2023-0179859

(22) 출원일자 2023년12월12일

심사청구일자 2023년12월12일

(71) 출원인

국립부경대학교 산학협력단

부산광역시 남구 용소로 45, 부경대학교내 (대연동)

(72) 발명자

오필건

부산광역시 해운대구 마린시티2로 38, 1동 3410호(우동, 해운대아이파크)

(74) 대리인

김정수

전체 청구항 수 : 총 6 항

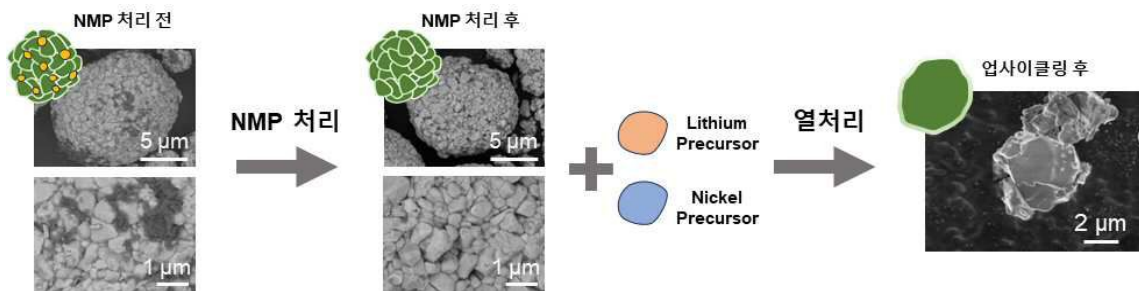
(54) 발명의 명칭 폐양극재의 전처리 및 업사이클링을 통한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법 및 이에 의해 제조된 양극 활물질

(57) 요약

본 발명은 (a) 양극 활물질, 바인더 및 도전재를 포함하는 폐양극재로부터 바인더 및 도전재 등의 불순물을 제거하고 양극 활물질을 분리하는 전처리 단계, 및 (b) 상기 분리된 양극 활물질과 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 혼합하고 열처리해 양극 활물질을 합성하는 단계를 포함하는, 폐양극재를 이용해 리튬 이차전지용 양극 활물질의

(뒷면에 계속)

대표도 - 도1



재제조하는 방법 및 그에 의해 제조된 리튬 이차전지용 양극 활물질에 대한 것으로서, 본 발명에 의하면 종래 기술과 달리 폐양극재를 분쇄해서 파괴하지 않고 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP) 등을 이용한 전처리를 실시해 폐양극재 소재 표면에 흡착되어 재활용 공정에서 방해가 되는 불순물들을 효과적으로 제거한 후, 폐양극재의 구조를 복원하고 니켈의 함량을 높여 기존 폐양극재 대비 용량을 증가시키고 양극 활물질 입자를 이차 입자에서 일차 입자화하여 열화 내구성이 좋은 양극 활물질로 재합성하는 업사이클링을 통해, 종래 기술보다 훨씬 우수한 전기화학적 성능을 가지는 양극 활물질을 제조할 수 있다.

(52) CPC특허분류

**H01M 4/525** (2013.01)

H01M 2004/028 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

|             |                                      |
|-------------|--------------------------------------|
| 과제고유번호      | 1415187600                           |
| 과제번호        | G032657012                           |
| 부처명         | 산업통상자원부                              |
| 과제관리(전문)기관명 | 한국에너지기술평가원                           |
| 연구사업명       | 저탄소고부가전극재제혁신기술개발(R&D)                |
| 연구과제명       | 저탄소 자원 순환을 위한 폐양극 업사이클링 재제조 혁신 기술 개발 |
| 기 여 율       | 1/1                                  |
| 과제수행기관명     | 인쇄전자기술연구소                            |
| 연구기간        | 2023.01.01 ~ 2023.12.31              |

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

(a) 양극 활물질, 바인더 및 도전재를 포함하는 폐양극재로부터 바인더 및 도전재를 포함하는 불순물을 제거하고 양극 활물질을 분리하는 전처리 단계; 및

(b) 상기 양극 활물질과 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 혼합하고 열처리하는 양극 활물질 합성 단계;를 포함하는,

폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 단계 (a)에서,

상기 폐양극재를 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP)을 포함하는 용매 중에서 초음파 처리해 바인더 및 도전재를 포함하는 불순물을 제거하고 양극 활물질을 분리하는 것을 특징으로 하는,

폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법.

#### 청구항 3

제2항에 있어서,

상기 폐양극재로부터 분리한 양극 활물질을 열처리하는 것을 특징으로 하는,

폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법.

#### 청구항 4

제1항에 있어서,

상기 단계 (b)에서,

상기 리튬 전구체는 리튬 함유 산화물, 황산염, 질산염, 아세트산염, 탄산염, 옥살산염, 시트르산염, 할라이드 수산화물 및 옥시수산화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상이고,

상기 니켈 전구체는 니켈 함유 산화물, 황산염, 질산염, 아세트산염, 탄산염, 옥살산염, 시트르산염, 할라이드 수산화물 및 옥시수산화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상인 것을 특징으로 하는,

폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법.

#### 청구항 5

제1항에 있어서,

상기 리튬 전구체는 리튬 아세트산(lithium acetate)이고,

상기 니켈 전구체는 산화 니켈(nickel oxide)인 것을 특징으로 하는,

폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조 방법.

## 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 따른 방법에 의해 제조된 리튬 이차전지용 양극 활물질.

## 발명의 설명

### 기술 분야

[0001] 본 발명은 리튬 이차전지 폐양극재를 재활용해 리튬 이차전지용 양극 활물질을 제조하는 방법 및 이에 의해 제조된 리튬 이차전지용 양극 활물질에 대한 것이다.

### 배경 기술

[0002] 희소 원소로 간주되는 리튬은 가장 가벼운 금속으로서 3.86Ah/g의 높은 비용량(specific capacity)과 표준수소 전극 (Standard Hydrogen Electrode, SHE) 대비 -3.04V의 매우 낮은 전극 전위(electrode potential)를 가져 고전압/고에너지 배터리에 이상적인 양극 소재이다.

[0003] 리튬 이차전지는 1991년에 최초로 상용화되어 휴대용 전자 기기에 널리 사용되기 시작하였으며, 최근에는 전기 자동차 등 친환경 차세대 자동차의 전원 공급 장치로 사용되고 있으며, 플러그인 하이브리드 전기 자동차(plug-in hybrid electric vehicle, PHEV), 하이브리드 전기 자동차(hybrid vehicle, HEV) 및 전기 자동차(electric vehicle, EV) 시장의 급격한 확장으로 인해 리튬이차전지의 수요량은 장차 급격히 증가할 것으로 예상된다.

[0004] 이와 같이 전기 자동차 시장이 급격히 성장함에 따라 2030년에는 약 1,000 GWh에 달하는 폐배터리가 생길 것으로 예상되는데, 리튬 이차전지 제조 공정 중 발생하는 불량 폐배터리 스크랩 또는 폐양극재나 사용 후 폐기되는 리튬 이차전지의 폐스크랩(블랙 파우더 등)에는 니켈, 코발트, 망간 등과 같은 유가 금속들이 함유되어 있기 때문에 최근 들어 이에 따라 배터리 원료에 대한 높은 수입 의존도, 가격 상승, 및 수급 불안정으로 인해 폐배터리의 자원 순환 산업의 중요성이 나날이 증가하고 있다.

[0005] 리튬 이차전지의 원가에서 60% 이상을 차지하는 니켈-코발트-망간 복합 금속산화물 양극재는 폐배터리의 재활용을 통해 정제 및 회수한 물질과 순수한 물질에 대한 차이가 없어 자원 순환의 관점뿐만 아니라 리튬 이차전지의 원가 안정성 확보에 대한 측면에서도 이차전지 재활용은 중대형 배터리 시장의 규모가 확대됨에 따라 필수 불가결한 기술로 자리 매김할 것으로 예상된다.

[0006] 폐배터리 소재에는 전지 제조과정에서 사용되는 카본, 바인더, 금속 산화물 및 기타 금속 등의 물질들이 포함되어 있어 이러한 불순물을 제거하고 유가 금속을 효율적으로 회수할 수 있는 폐양극 재활용 기술을 개발하기 위한 연구가 지속적으로 이루어지고 있는데, 기존의 폐양극 재활용 기술은 폐양극을 완전 파괴하여 유가 금속을 회수한 후, 이를 사용해 새롭게 양극 활물질을 제조하는 방식이 주류를 이루고 있으며, 이러한 방식은 자원 순환에 소요되는 비용이 많고, 이로 인해 이산화탄소가 과도하게 발생하는 단점을 가진다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0007] (특허문헌 0001) 한국 공개특허 제10-2022-0070764호 (공개일: 2022.05.31)

(특허문헌 0002) 한국 등록특허 제10-1328585호 (등록일: 2013.11.06)

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0008] 본 발명이 해결하고자 하는 기술적 과제는, 종래 기술과 달리 폐양극재를 분쇄해서 파괴하지 않아 폐양극재 재활용 공정 중 이산화탄소 배출량을 현저히 감소시켜 친환경적일 뿐만 아니라 경제적인 측면에서도 효율적으로

폐양극재로부터 유가 금속을 회수하고, 업사이클링(upcycling)을 통해 현저히 향상된 전기화학적 성능을 가지는 리튬 이차전지용 양극 활물질을 재제조하는 방법 및 이에 의해 제조된 리튬 이차전지용 양극 활물질을 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

- [0009] 상기 기술적 과제를 달성하기 위해, 본 발명은 (a) 양극 활물질, 바인더 및 도전재를 포함하는 폐양극재로부터 바인더 및 도전재 등의 불순물을 제거하고 양극 활물질을 분리하는 전처리 단계, 및 (b) 상기 분리된 양극 활물질과 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 혼합하고 열처리해 양극 활물질을 합성하는 단계를 포함하는, 폐양극재를 이용해 리튬 이차전지용 양극 활물질의 재제조하는 방법을 제안한다.
- [0010] 상기 단계 (a)에서는 양극 활물질, 바인더 및 도전재 등으로 구성된 폐양극재에서 바인더, 도전재 등의 고분자 및 탄소계 불순물을 제거해 폐양극재로부터 양극 활물질을 분리하는 전처리 공정을 수행한다.
- [0011] 이때, 상기 단계 (a)에서는 전처리에 제공되는 폐양극재는 집전체로부터 분리된 후 분쇄 또는 파쇄 공정을 거치지 않은 폐양극재인 것을 특징으로 한다.
- [0012] 상기 단계 (a)에서 폐양극재로부터 양극 활물질을 분리하는 공정은 폐양극재를 용매에 투입한 상태에서 초음파 처리해 양극 활물질에 결합된 바인더 및/또는 도전재를 양극 활물질로부터 제거하는 방식으로 이루어질 수 있으며, 이때, 상기 용매는 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP)인 것이 바람직하다.
- [0013] 나아가, 상기 단계 (a)에서는 용매 중에서의 초음파 처리 후에도 양극 활물질 표면에 잔류하는 바인더 및 도전재 등의 불순물을 열분해시켜 제거하기 위해, 용매 중에서 초음파 처리해 얻어진 양극 활물질을 열처리하는 공정을 추가로 실시할 수 있다.
- [0014] 이때, 상기 불순물이 제거된 양극 활물질의 열처리 온도 및 열처리 시간은 양극 활물질 표면에 잔류한 고분자 및 탄소계 불순물을 하소시켜 제거할 수 있을 정도의 온도 및 시간이라면 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어, 250 내지 500 °C의 온도 범위에서 1 내지 5 시간 동안 열처리를 수행할 수 있다.
- [0015] 한편, 상기 폐양극재에 포함된 양극 활물질은 리튬의 가역적인 인터칼레이션 및 디인터칼레이션이 가능한 화합물로서, 구체적으로는 니켈, 코발트, 망간, 또는 알루미늄과 같은 1종 이상의 금속과 리튬을 포함하는 리튬 복합금속 산화물을 포함할 수 있다. 보다 구체적으로, 상기 리튬 복합금속 산화물은 리튬-망간계 산화물( $\text{LiMnO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  등), 리튬-코발트계 산화물( $\text{LiCoO}_2$  등), 리튬-니켈계 산화물( $\text{LiNiO}_2$  등), 리튬-니켈-망간계 산화물( $\text{LiNi}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_2$  ( $0 < x < 1$ ),  $\text{LiMn}_{2-x}\text{Ni}_x\text{O}_4$  ( $0 < x < 2$ ) 등), 리튬-니켈-코발트계 산화물( $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  ( $0 < x < 1$ ) 등), 리튬-망간-코발트계 산화물(예를 들면,  $\text{LiCo}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_2$  ( $0 < x < 1$ ),  $\text{LiMn}_{2-x}\text{Co}_x\text{O}_4$  ( $0 < x < 2$ ) 등), 리튬-니켈-망간-코발트계 산화물( $\text{Li}(\text{Ni}_a\text{Co}_b\text{Mn}_c)\text{O}_2$  ( $0 < a < 1$ ,  $0 < b < 1$ ,  $0 < c < 1$ ,  $a+b+c=1$ ),  $\text{Li}(\text{Ni}_a\text{Co}_b\text{Mn}_c)\text{O}_4$  ( $0 < a < 2$ ,  $0 < b < 2$ ,  $0 < c < 2$ ,  $a+b+c=2$ ) 등), 또는 리튬-니켈-코발트-망간-전이금속(M) 산화물( $\text{Li}(\text{Ni}_a\text{Co}_b\text{Mn}_c\text{M}_d)\text{O}_2$  (M은 Al, Fe, V, Cr, Ti, Ta, Mg 및 Mo로 이루어지는 군으로부터 선택되고,  $0 < a < 1$ ,  $0 < b < 1$ ,  $0 < c < 1$ ,  $0 < d < 1$ ,  $a+b+c+d=1$ ) 등) 등을 들 수 있으며, 이들 중 어느 하나 또는 둘 이상의 화합물이 포함될 수 있다.
- [0016] 또한, 상기 폐양극재에 포함된 바인더는 활물질과 도전재 등의 결합과 집전체에 대한 결합에 기여하는 요소로서, 폴리비닐리덴플루오라이드, 폴리비닐알코올, 카르복시메틸셀룰로오스(CMC), 전분, 히드록시프로필셀룰로오스, 재생 셀룰로오스, 폴리비닐피롤리돈, 테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌-프로필렌-디엔 테르 폴리머(EPDM), 술폰화 EPDM, 스티렌-부타디엔 고무, 불소 고무, 이들의 2 이상의 조합 등을 들 수 있다.
- [0017] 또한, 상기 폐양극재에 포함된 도전재는 그래파이트, 탄소나노튜브, 카본블랙, 아세틸렌 블랙, 케첸 블랙, 채널 블랙, 퍼니스 블랙, 램프 블랙, 서멀 블랙 등의 탄소계 물질, 탄소 섬유나 금속 섬유 등의 도전성 섬유, 불화 카본, 알루미늄, 니켈 분말 등의 금속 분말, 산화 티탄 등의 도전성 금속 산화물, 폴리페닐렌 유도체 등의 도전성 고분자 등이 사용될 수 있다. 상용 도전재의 구체적인 예로는 아세틸렌 블랙 계열인 셰브론 케미칼 컴퍼니(Chevron Chemical Company)나 덴카 블랙(Denka Singapore Private Limited), 걸프 오일 컴퍼니(Gulf Oil Company) 제품 등), 케트젠블랙(Ketjenblack), EC 계열(아르막 컴퍼니(Armak Company) 제품), 불칸(Vulcan) XC-72(캐보트 컴퍼니(Cabot Company) 제품) 및 슈퍼(Super) P(Timcal 사 제품) 등을 들 수 있다.
- [0018] 이어서, 상기 단계 (b)에서는 이전 단계에서 폐양극재를 전처리해 얻어진 양극 활물질에 리튬 전구체 및 니켈

전구체를 첨가하고 열처리하여 증가된 니켈 함량이 증가된 양극 활물질을 합성하는 업사이클링(upcycling) 공정이 이루어진다.

- [0019] 참고로, 본원 명세서에 있어서 업사이클링(upcycling)이란 상대적으로 낮은 니켈 함량을 가지는 폐양극 활물질의 구조를 복원하는 재활용(recycling)에 그치지 않고, 양극 활물질의 니켈 함량을 증가시켜 향상된 용량을 가지는 새로운 양극 활물질로 재탄생시키는 기술을 일컫는다.
- [0020] 보다 구체적으로, 상기 단계 (b)에서는 폐양극재로부터 분리된 양극 활물질에 리튬 전구체와 함께 니켈 전구체를 첨가하고 열처리해 니켈 함량이 증가되어 용량이 향상된 양극 활물질을 합성할 뿐만 아니라, 다수의 미세 양극 활물질 입자들이 응집된 이차입자 형태를 가졌던 양극 활물질 입자를 단결정화하여 양극 제조시 고압 압연 공정에 견딜 수 있게 함으로써, 고에너지 밀도를 가지는 리튬이차전지의 제조에 적합한 양극 활물질을 얻을 수 있다.
- [0021] 이때, 상기 단계 (b)에서 폐양극재로부터 분리된 양극 활물질과 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 혼합한 후에 이루어지는 열처리는, 미세한 양극 활물질 입자들이 응집된 이차 입자 형태의 양극 활물질에서 단결정으로 이루어진 조대한 일차 입자 형태의 양극 활물질이 합성될 수 있도록 이차 입자 간 소결(sintering) 현상이 일어나는 900 내지 1000℃의 온도 범위에서 3 내지 5 시간 동안 열처리를 수행하는 것이 바람직하다.
- [0022] 또한, 상기 단결정화를 위한 1차 열처리 이후, 보다 낮은 온도로 열처리를 장시간 수행함으로써 층상구조 결정도가 높은 양극 활물질이 합성될 수 있도록 750 내지 850℃의 온도 범위에서 5 내지 20시간 동안 2차 열처리를 수행하여 업사이클링 양극 활물질을 얻을 수 있다.
- [0023] 한편, 상기 단계 (b)에서 상기 리튬 전구체는 리튬 함유 산화물, 황산염, 질산염, 아세트산염, 탄산염, 옥살산염, 시트르산염, 할라이드 수산화물 및 옥시수산화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상일 수 있다. 또한, 상기 니켈 전구체는 니켈 함유 산화물, 황산염, 질산염, 아세트산염, 탄산염, 옥살산염, 시트르산염, 할라이드 수산화물 및 옥시수산화물로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상일 수 있다.
- [0024] 또한, 상기 단계 (b)에서 양극 활물질을 합성하기 위해 폐양극재로부터 분리된 양극 활물질과 혼합되는 리튬 전구체 및 니켈 전구체의 함량은 특별히 제한되지 않으며, 본 발명에 따라 최종적으로 합성하고자 하는 양극 활물질의 구성에 맞춰 폐양극재로부터 분리된 양극 활물질, 리튬 전구체 및 니켈 전구체의 혼합비를 설정할 수 있다.
- [0025] 그리고, 본 발명은 발명의 다른 측면에서 상기 폐양극재를 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질의 제조 방법에 의해 제조된 리튬 이차전지용 양극 활물질을 제공한다.

### 발명의 효과

- [0026] 본 발명에 의하면, 종래 기술과 달리 폐양극재를 분쇄해서 파괴하지 않고 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP) 등을 이용한 전처리를 실시해 폐양극재 소재 표면에 흡착되어 재활용 공정에 방해가 되는 불순물들을 효과적으로 제거한 후, 폐양극재의 구조를 복원하고 니켈의 함량을 높여 기존 폐양극재 대비 용량을 증가시키고 양극 활물질 입자를 이차 입자에서 일차 입자화하여 열화 내구성이 좋은 양극 활물질로 재합성하는 업사이클링을 통해, 종래 기술보다 훨씬 우수한 전기화학적 성능을 가지는 양극 활물질을 제조할 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

- [0027] 도 1은 본원 실시예에서 폐양극재를 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP)로 전처리한 후 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 첨가하고 열처리하는 업사이클링 단계를 통해 단결정으로 이루어진 일차 입자 형태의 새로운 양극 활물질을 제조하는 단계를 순차적으로 도시한 개념도이다.
- 도 2는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질의 미세 구조를 대비해 보여주는 주사전자현미경(SEM) 사진이다.
- 도 3은 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질 각각과 상용 NCM622에 대한 열중량 분석(thermogravimetric analysis, TGA) 결과이다.
- 도 4는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질 각각을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.
- 도 5(a)는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 공정 없이 구조 회복 및 형상 제어를 위한 열처리가 이루어진

양극 활물질에 대한 주사전자현미경(SEM) 사진이고, 도 5(b)는 해당 양극 활물질을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.

도 6(a)는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 공정을 실시하고 구조 회복 및 형상 제어를 위한 열처리가 이루어진 양극 활물질에 대한 주사전자현미경(SEM) 사진이고, 도 6(b)는 해당 양극 활물질을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0028] 본 발명을 설명함에 있어서 관련된 공지 기능 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명을 생략할 것이다.

[0029] 본 발명의 개념에 따른 실시예는 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있으므로 특정 실시예들을 도면에 예시하고 본 명세서 또는 출원에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명의 개념에 따른 실시예를 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.

[0030] 본 명세서에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시예를 설명하기 위해 사용된 것으로, 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 명세서에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 실시된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부분품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.

[0031] 이하, 실시예를 들어 본 발명에 대해 보다 상세하게 설명하기로 한다.

[0032] 본 명세서에 따른 실시예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 명세서의 범위가 아래에서 상술하는 실시예들에 한정되는 것으로 해석되지 않는다. 본 명세서의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 명세서를 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.

### [0033] <실시예>

[0034] 도 1에 도시한 바와 같이, 본 실시예에서는 폐양극재를 N-메틸-2-피롤리돈(N-Methyl-2-Pyrrolidone, NMP)로 전처리한 후 리튬 전구체 및 니켈 전구체를 첨가하고 열처리하는 업사이클링 공정을 통해 단결정으로 이루어진 일차 입자 형태의 새로운 양극 활물질을 제조하였다.

[0035] 보다 구체적으로, 전극으로부터 스크랩된 폐양극재를 준비한 후, 폐양극재와 NMP 용매를 1:10 무게비 조건으로 NMP 용매에 폐양극재 분말을 넣고 38.4 KHz 1시간 초음파 공정을 실시하였다. NMP 처리 후 산소 분위기에서 400 ℃로 2시간 열처리하였다. 이렇게 준비된 폐양극재와 Lithium hydroxide, Nickel oxide를 최종 합성하고자 하는 양극 소재의 조성에 맞춰 혼합한 뒤 950 ℃에서 3시간 동안 1차 열처리하고, 750 ℃에서 10시간 동안 2차 열처리해 양극 활물질을 제조하였다.

[0036] 아래 표 1은 본 실시예에서 사용된 폐양극재에 대한 NMP 전처리 전후의 ICP(inductively coupled plasma spectrometry) 분석 결과로서, 이에 따르면 해당 폐양극재는 NCM523의 조성을 가지는 것으로 추정된다.

[0037] [표 1]

|    | NMP 처리 전 | NMP 처리 후 |
|----|----------|----------|
| Li | 0.98     | 0.97     |
| Ni | 0.47     | 0.48     |
| Co | 0.30     | 0.29     |
| Mn | 0.23     | 0.23     |
| Al | 0.03     | 0.01     |

[0038]

[0039] 도 2는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질의 미세 구조를 대비해 보여주는 주사전자현미경(SEM) 사진이다.

[0040] 도 2를 참조하면, NMP 처리 전 폐양극재 표면에 존재하던 어두운 색의 불순물이 NMP 처리 후에는 제거된 것을 확인할 수 있었다.

[0041] 도 3은 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질 각각과 상용 NCM622에 대한 열중량 분석 (thermogravimetric analysis, TGA) 결과이다.

[0042] 도 3을 참조하면, NMP 처리 전의 폐양극재의 경우에는 500~600 ℃의 온도 범위에서 불순물 소재(도전재 및 바인더)가 제거되어 큰 중량 손실(weight loss)이 발생하지만, NMP 처리 후의 폐양극재의 경우에는 중량 손실이 상대적으로 적게 나타났으며, 이로부터 NMP 처리를 통해 폐양극재로부터 카본계 불순물이 효과적으로 제거되었음을 확인할 수 있었다.

[0043] 도 4 및 표 2는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 전후의 폐양극 활물질 각각을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.

[0044] 도 4 및 표 2를 참조하면, NMP 처리를 통해 폐양극재로부터 불순물만 제거하여도 전기화학 성능이 154 mAh/g에서 171.8 mAh/g으로 눈에 띄게 향상되는 것으로 확인되었다.

[0045] [표 2]

|          | Charge capacity (mAh/g) | Discharge capacity (mAh/g) | ICE (%) |
|----------|-------------------------|----------------------------|---------|
| NMP 처리 전 | 171.6                   | 154.8                      | 90.2    |
| NMP 처리 후 | 187.0                   | 171.8                      | 91.9    |

[0046]

[0047] 도 5(a)는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 공정을 거치지 않고 구조 회복 및 형상 제어를 위한 열처리가 이루어진 양극 활물질에 대한 주사전자현미경(SEM) 사진이고, 도 5(b) 및 표 3은 해당 양극 활물질을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.

[0048] 도 5(b) 및 표 3을 참조하면 NMP를 이용한 전처리 공정 없이 곧바로 업사이클링 공정을 거쳐 제조된 양극 활물질을 이용한 이차전지의 방전 용량은 161.2 mAh/g로서, 목표로 한 NCM 622 용량 (~180 mAh/g)에는 못 미치는 것으로 확인되었다.

[0049] [표 3]

|                 | Charge capacity (mAh/g) | Discharge capacity (mAh/g) | ICE (%) |
|-----------------|-------------------------|----------------------------|---------|
| NMP 처리 전        | 171.6                   | 154.8                      | 90.2    |
| NMP 처리 없이 업사이클링 | 190.4                   | 161.2                      | 84.7    |

[0050]

[0051] 또한, 도 5(a)에 따르면 최종적으로 얻어지는 양극 활물질 입자는 단결정의 일차 입자 형상이 아닌 이차 입자 형태를 사실상 그대로 유지해 업사이클링이 이루어지지 않은 것으로 나타났다.

[0052] 도 6(a)는 본원 실시예에서 NMP를 이용한 전처리 공정을 실시하고 구조 회복 및 형상 제어를 위한 열처리가 이루어진 양극 활물질에 대한 주사전자현미경(SEM) 사진이고, 도 6(b) 및 표 4는 해당 양극 활물질을 포함한 양극을 구비한 리튬 이차전지에 대한 충·방전 실험 결과이다.

[0053] [표 4]

|                | Charge capacity (mAh/g) | Discharge capacity (mAh/g) | ICE (%) |
|----------------|-------------------------|----------------------------|---------|
| NMP 처리 후       | 187.0                   | 171.8                      | 91.9    |
| NMP 처리 후 업사이클링 | 212.5                   | 180.2                      | 84.8    |

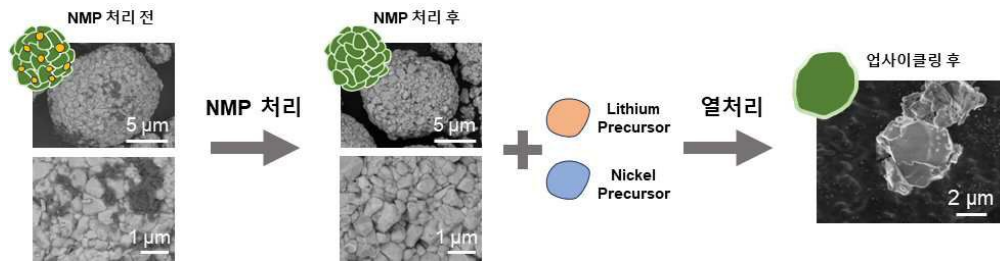
[0054]

[0055] 도 6(a) 및 도 6(b)와 표 4에 따르면, NMP를 이용해 폐양극재를 전처리한 후 에 업사이클링 공정을 실시하면 입경 5~6  $\mu\text{m}$  급의 단결정이 합성되고 방전 용량도 목표로 하는 180 mAh/g에 이르는 것으로 확인되어 전처리 공정을 거치지 않은 양극 활물질과 달리 업사이클링이 달성되었음을 확인할 수 있었다.

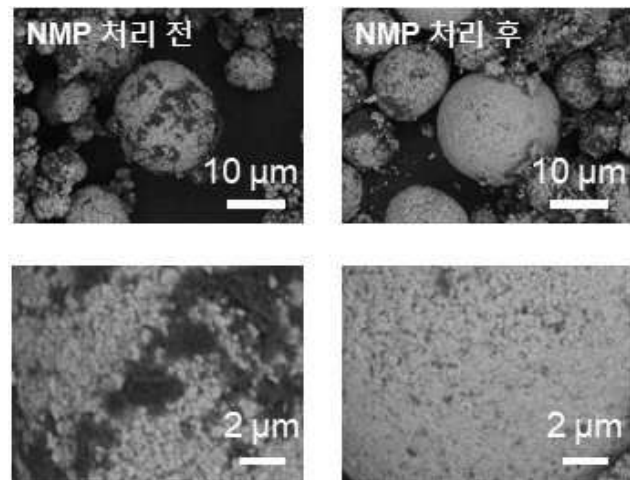
[0056] 이상, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명의 실시예를 설명하였지만, 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자는 본 발명이 그 기술적 사상이나 필수적인 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 실시될 수 있다는 것을 이해할 수 있을 것이다. 그러므로 이상에서 기술한 실시예에는 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적이 아닌 것으로 이해해야만 한다.

## 도면

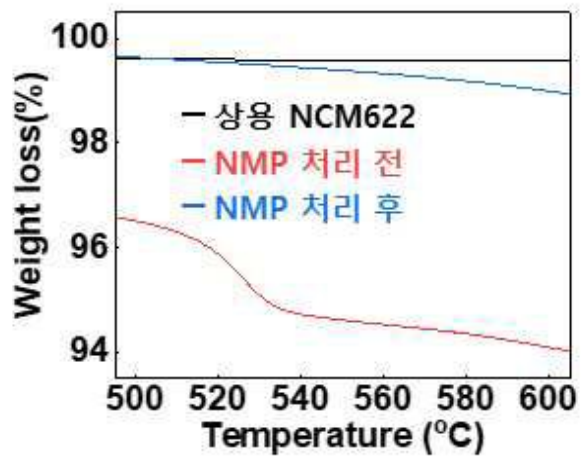
### 도면1



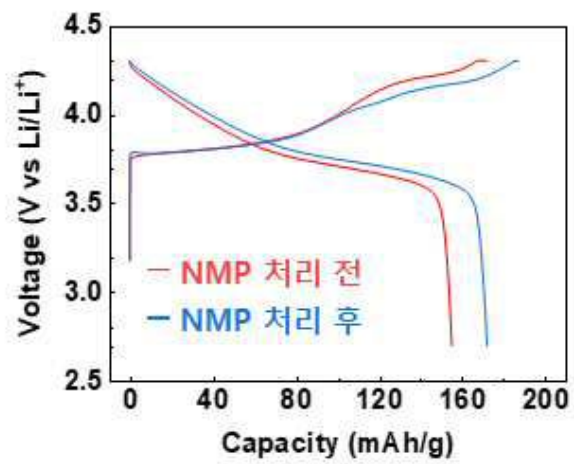
### 도면2



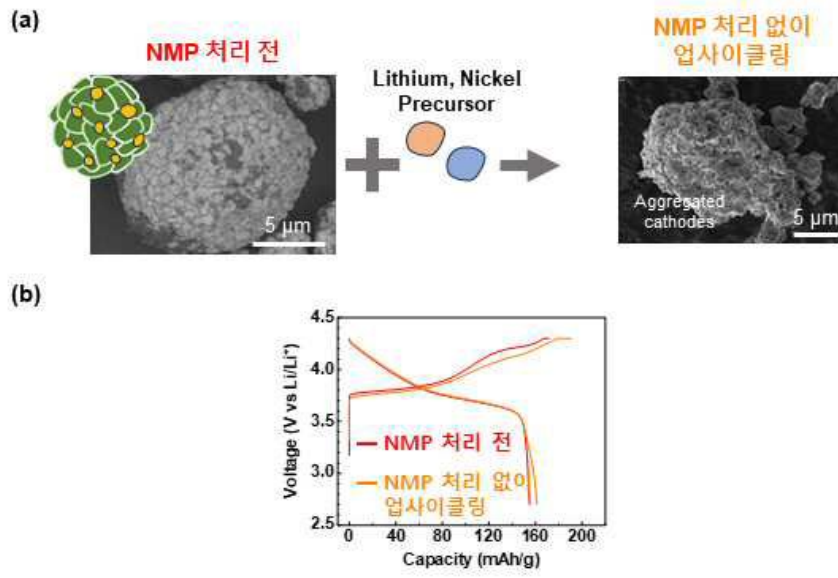
도면3



도면4



도면5



도면6

