短程高效回收废锂离子电池中铜金属的技术及机理研究

祖丽德孜, 李金惠, 曾现来*

清华大学环境学院, 固体废物处理与环境安全教育部重点实验室, 北京 100084

* E-mail: xlzeng@tsinghua.edu.cn

收稿日期: 2017-11-08; 接受日期: 2018-06-14; 网络版发表日期: 2018-08-02

中国博士后科学基金特别资助项目(编号: 2016T90104)、清华大学大学生研究训练计划项目和清华大学亚洲研究中心资助

摘要 信息通讯技术和电动汽车产业的快速发展产生了大量的废锂离子电池, 其资源化回收成为资源可持续利用及环境保护的重要手段. 但传统的回收过程工艺繁琐, 资源化效率较低阻碍了产业的良性发展. 为了缩短废锂离子电池的资源化工艺, 选择离子液体作为加热介质, 通过熔化黏结剂, 分离铜箔和负极材料实现对废锂离子电池中铜金属的回收. 回收过程发生急剧的热对流和热传导过程, 利用搅拌机快速运转强化了热对流的过程和机械力分离正极材料, 基于传热理论傅里叶定律建立了热传递过程数学模型. 通过详细实验研究发现, 当加热温度 180℃、搅拌速度 350 r/min、停留时间 30 min, 可以实现铜金属的短程高效回收. 本技术的研发大大促进了铜铝金属的高效回收, 打通了废锂离子电池的闭环供应链.

关键词 废锂离子电池, 资源化, 铜金属, 离子液体, 傅里叶定律

1 引言

随着信息通讯技术的快速发展和电动汽车产业的兴起, 逐步产生了大量的产品类废物, 其中废锂离子电池已成为产生量增长最快的废物流之一^[1,2]. 据估计, 我国废锂离子电池产生量2015年为10万吨, 但2020年将超过50万吨^[3]. 尽管废锂离子电池当前未列入危险废物管理的目录, 但由于废锂离子电池经常残存部分电量和含有具有毒性的电解质溶液, 粗放的处理可能引起爆炸、火灾, 存在严重的环境风险^[4]. 而且, 废锂离子电池含有丰富的金属资源, 大约含有10%金属

铜、10%金属铝、8%钴和2%锂^[5]. 因而, 对废锂离子电池进行资源化、无害化研究存在重要的理论及现实意义.

锂离子电池由外壳和内部电芯构成, 外壳一般是不锈钢、铝、镀镍金属钢壳或塑料外壳. 电池内部的阳极是由铜箔和碳粉通过黏结剂混合制成, 而有机黏结剂一般为聚合物聚偏四氟乙烯(PVDF)^[6]. 物理结构的致密性和紧凑型制约了回收处理, 而显著的分层结构又为其拆解分离资源化提供可能.

过去已开展了大量研究废锂离子电池的资源化, Chen等人^[7]开发了高温(650℃)处理工艺, 修复正极材

引用格式: 祖丽德孜, 李金惠, 曾现来. 短程高效回收废锂离子电池中铜金属的技术及机理研究. 中国科学: 技术科学, 2018, 48: 991–998
Juldez N, Li J H, Zeng X L. Short-cut and high-efficiency process to recycle copper from spent lithium-ion battery (in Chinese). Sci Sin Tech, 2018, 48: 991–998, doi: [10.1360/N092017-00385](https://doi.org/10.1360/N092017-00385)

料满足再利用要求, Wang等人^[8]开发了基于机械化学途径正极材料回收的友好工艺, Zhang等人^[9]以生产过程中边角料为原料开发了高温加热(800℃)处理再生工艺, Gao等人^[10]开发以碳酸锂回收的湿法冶金闭路循环工艺, Xiao等人^[11]开发了真空冶金回收碳酸锂的工艺. 针对铜金属的回收, 多数是通过破碎、分选以及湿法冶金或火法冶金获得, 该过程工艺繁琐, 耗能很高, 且回收率多受工艺条件限制^[12,13]. 如何快速剥离废锂离子电池阳极, 高效分离铜箔与负极材料仍然是亟待解决的关键技术问题. 离子液体具有难挥发、液程范围宽、不可燃等优点, 在许多领域均得到广泛应用^[14]. 离子液体也在废锂离子电池领域得到应用, 并成功分离了正极材料和铝箔, 回收了钴酸锂材料和金属铝^[15]. 本文将基于这些研究, 猜想将拆解的阳极置于加热的离子液体中, 通过熔化PVDF黏结剂, 分离铜箔和负极材料, 并在此基础上探究资源化过程的最佳工艺条件.

2 实验

2.1 供试材料的基本特征

废锂离子电池主要产生于消费电子和电动汽车, 二者结构相似, 本研究选择来自手机的废锂离子电池作为研究对象, 尺寸大小约为200 mm×160 mm. 为了防止短路和自燃, 所有样品都首先通过盐水充分放电, 然后手工拆解为阴极、阳极、外壳、有机隔膜等. 每次取阳极部分20~30 g进行实验, 平行实验2次. 分析测试其物理组成见图1, 阳极部分(包括负极材料和铜箔)占47%, 阴极部分(包括正极材料和铝箔)占29%, 外壳部分占21%, 塑料部分占3%.

对于环绕铜箔的负极材料碳粉, 热传导系数 λ 、密度 ρ 、比热容 c_p 和尺寸等主要特征如表1所示^[15].

本文选用的离子液体为1-丁基-3-甲基咪唑四氟硼

图1 (网络版彩图)废锂离子电池的物理组成(w.t.)

表1 负极材料碳粉的物理性质

特征	数值
负极材料的厚度 (μm)	80
热传导系数 λ ($\text{w}/(\text{m} \cdot ^\circ\text{C})$)	129
密度 ρ (g/cm^3)	2.16
比热容 c_p ($\text{J}/(\text{kg} \cdot ^\circ\text{C})$)	710
表面热传递系数 h ($\text{w}/(\text{m}^2 \cdot ^\circ\text{C})$)	0.02

酸盐([BMIm]BF₄), 初始纯度>99%, 具有较宽的液程温度范围、适宜的黏度、良好的水溶性、易合成、价格便宜等优点^[16], 其基本特征见表2所示.

2.2 实验装置及操作步骤

实验过程在油浴锅内完成, 油浴锅由主体、热电偶、加热丝和搅拌器组成, 其中搅拌器为外置动力搅拌器(JJ-1A精密定时电动搅拌器), 相比磁力搅拌可提供更大机械力.

实验操作及分析步骤包括: 准备实验材料、制作阳极样品, 并称重; 将离子液体置于油浴锅, 调节温度、搅拌器转速等参数; 启动油浴加热, 加热到设定温度; 将清洁处理后的实验材料置于油浴锅, 进行加热分离; 实验完成后关闭油浴锅, 回收实验样品和产物. 实验完成后关闭油浴锅, 冷却后将产生的铜箔取出, 利用蒸馏水清洗, 清洗液可再次使用; 清洗的铜箔烘干至恒重, 记录处理后铜箔特征, 称重; 离子液体中的负极材料通过沉淀分离, 清洗、烘干后获得.

2.3 正交实验设计

根据Zeng和Li^[15]研究, 可知在加热离子液体拆解废锂离子电池的过程中, 影响金属剥离的潜在因素主要包括离子液体的加热温度、阳极部分在离子液体中的停留时间以及转子转速等. 另外, PVDF黏结剂的分子链间排列紧密, 密度为1.17~1.79 g/cm³, 热变形温度

表2 选用离子液体的基本特征

参数	数值
化学结构	
液程温度范围 ($^\circ\text{C}$)	-81~400
密度 ρ (g/cm^3)	1.2
黏度系数 ($\text{mPa} \cdot \text{s}$)	78.5
电导率 (S/m)	0.173

112~145℃, 熔化温度为172℃^[17].

为了获取剥离处理回收铜金属的最优条件, 基于三因素三水平进行正交实验设计如表3所示.

3 铜箔与负极材料剥离过程理论计算

3.1 剥离过程及其热传递机理

当将阳极样品材料置入加热的离子液体中时, 热量将在其表面和内部传递. 离子液体强搅拌条件下, 阳极上表面和下表面水平方向的热对流剧烈, 致使样品的外部温度快速稳定和一致; 阳极垂直方向发生着热传导, 带动了负极材料内部和PVDF的升温. 而且, 随着搅拌, 样品材料随着液体一起运动, 加速了传热过程, 促进了铜箔与负极材料的剥离. 图2说明了废锂离子电池阳极置于加热的离子液体中的热传递过程, 阳极主要发生了热传导和热对流, 其中热对流主要发生于阳极的周围, 热传导主要发生于负极材料、PVDF和铜箔内. 当加热温度达到172℃时, PVDF开始熔化, 负极材料和铜箔逐渐分离, 一段时间后直至二者全部分开, 负极材料与铜箔剥离, PVDF进入溶液.

3.2 剥离过程的时间

根据传热过程分析, 负极材料和铜箔的剥离时间可以通过3个过程确定: 传热达到热平衡、黏结剂熔化、负极材料与铜箔剥离等, 其中负极材料内部热传递直至温度平衡时间可通过傅里叶定律表达, 因而离子液体加热拆解废锂离子电池阳极的时间可通过式(1)和(2)确定.

$$t = t_1 + t_2 + t_3, \quad (1)$$

表3 正交实验设计

实验序号	加热温度 (°C)	停留时间 (min)	搅拌速度 (r/min)
1	170	20	250
2	170	25	300
3	170	30	350
4	175	20	300
5	175	25	350
6	175	30	250
7	180	20	350
8	180	25	250
9	180	30	300

$$\frac{\partial T}{\partial t_1} = \frac{\lambda}{\rho c_p} \left[\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] + \frac{q_c}{\rho c_p}, \quad (2)$$

式中, t 为剥离需要的时间(s), t_1 为温度平衡需要的时间(s), t_2 为平衡后的PVDF黏结剂熔化时间(s), t_3 为负极材料的脱落时间(s), T 为离子液体的加热温度(°C), λ 为碳粉热传导系数(W/(m·°C)), x, y, z 为直角坐标系三维方向, q_c 为过程反应热速率(J), ρ 为碳粉的密度(kg/m³), c_p 为恒压条件下的碳粉比热容(J/(kg·°C)).

3.3 铜箔和负极材料剥离过程的机理特征

利用加热离子液体对负极材料和铜箔的剥离过程中, PVDF层只有80 μm, 当加热温度达到PVDF熔点时将快速熔化, 强外力搅拌下致负极材料迅速脱落, 因而 $t_2 \approx 0$, $t_3 \approx 0$, 即 $t \approx t_1$; 热传导主要发生在PVDF层上部(经负极材料)和下部(经负极材料和铜箔)的 x 方向, y, z 方向可以忽略不计, 实际上阳极材料内部呈上下对称分

图2 (网络版彩图)废锂离子电池阳极在热介质处理中的传热过程

布(图2), 只考虑经上部的热传导计算; 由于负极材料、铜箔和离子液体之间没有显著的化学反应, 不会产生热效应, 因而 $q_c=0$. 则式(2)可简化为

$$\frac{\partial T}{\partial t_1} = \frac{\lambda}{\rho c_p} \times \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}. \quad (3)$$

将表1中的参数代入, 可得到

$$\frac{\partial T}{\partial t_1} = 8.411 \times 10^{-2} \times \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}. \quad (4)$$

同时考虑边界约束条件为

$$\begin{cases} T_0 = 25, & (t_1 = 0), \\ \frac{\partial T}{\partial x} = 0, & (x = 0), \\ -129 \times \frac{\partial T}{\partial x} = 0.02 \times (25 - T_\infty), & (x = 80), \end{cases}$$

式中, T_0 为离子液体的初始温度($^{\circ}\text{C}$), T_∞ 为离子液体设定的加热温度($^{\circ}\text{C}$).

基于偏微分方程分离变量的方法和上述边界条

件, 求解式(4), 则温度的分布特征数学函数为

$$T(x, t_1) = T_\infty + \cos(6.27x) e^{-3.31t_1} (25 - T_\infty). \quad (5)$$

当离子液体加热的到 $175^{\circ}\text{C} \sim 185^{\circ}\text{C}$ 时, 选择 $T_\infty=175^{\circ}\text{C}$, $T_\infty=180^{\circ}\text{C}$, $T_\infty=185^{\circ}\text{C}$, 利用数学软件Mathematica 10.0计算, 可得负极材料内部的温度分布如图3(a)~(c), 快速的增长趋势说明负极材料变薄、加热时间的延长将加剧了阳极内部温度的上升. 相比之下, 由于材料厚度很小(最大只有 $80 \mu\text{m}$), 因而负极材料层的厚度对阳极内部温度上升的影响不明显. 加热大概120 s后, 热量传递到阳极中心的铜箔, 使其温度达到与离子液体平衡. 加热时间和加热温度关系可通过式(6)表示, 变化曲线如图3(d)所示. 当设定的加热温度在 172°C 以上时, 平衡时间随加热温度快速下降, 当加热温度为 175°C 时, 平衡时间为1.2 min, 但当加热温度为 185°C 时, 平衡时间变为不超过0.8 min.

$$t_1 = -0.302 \times \ln \frac{172 - T_\infty}{25 - T_\infty}. \quad (6)$$

图3 (网络版彩图)不同加热条件下阳极内部温度分布特征. (a) $T_\infty=175^{\circ}\text{C}$; (b) $T_\infty=180^{\circ}\text{C}$; (c) $T_\infty=185^{\circ}\text{C}$; (d) 时间和温度的函数关系

4 结果与讨论

4.1 实验结果及分析

剥离率的计算是判断铜金属回收的关键指标. 利用质量差来判断, 实验前测试阳极样品中阴极材料的质量(利用样品总质量乘以阴极材料重量百分比获得, 其中阴极材料百分比通过初期的理化组成获得), 实验后测试残留在样品上的阴极材料质量, 利用前后质量变化率定义为剥离率. 基于正交实验设计和实验步骤, 对废锂离子电池中铜金属剥离回收, 得到不同条件下的负极材料的剥离率, 结果如表4所示, 其各组实验剥离后, 回收的铜金属如图4所示.

随着离子液体加热的进行, 温度逐渐接近PVDF黏结剂的熔点, PVDF熔化导致铜箔与负极材料之间剥离. 在外力搅拌作用下, 加快负极材料与铜箔的分离过程. 该过程主要利用热熔化的物理过程, 目的是实现铜金属高品位、纯单质态的回收, 不引入新的杂质. 根据图4可直观观察到前3组有大量的碳粉仍黏滞在铜箔上未被除去, 而4~6组稍好一些, 7~9组已基本将碳粉全部去除. 加热温度180℃, 搅拌速度越大, 停留时间越长, 越有利于二者之间的分离. 因而, 如果控制适宜的加热温度、停留时间、搅拌速度, 可以获得高纯度的铜金属, 验证技术工艺过程的可行性.

4.2 数据分析

对正交实验得到的结果采用方差分析法进行分析, 可以得到如下数据(表5).

计算结果表明, 加热温度、停留时间、搅拌速度

表 4 实验结果

实验序号	加热温度(℃)	停留时间(min)	搅拌速度(r/min)	搅拌前质量(g)	搅拌后质量(g)	剥离率(%)
1	170	20	250	1.9662	0.9977	61.1
2	170	25	300	1.9848	0.9023	67.6
3	170	30	350	1.9458	0.7227	78.0
4	175	20	300	1.9469	0.6712	81.2
5	175	25	350	1.9641	0.6409	83.6
6	175	30	250	1.9026	0.6228	83.4
7	180	20	350	1.8954	0.5868	85.6
8	180	25	250	1.938	0.5008	92.0
9	180	30	300	1.965	0.519	91.3

图 4 (网络版彩图)不同条件下各组的剥离外观图

表 5 正交实验方差分析

实验序号	加热温度(℃)	停留时间(min)	搅拌速度(r/min)	剥离率(%)
1	170	20	250	61.1
2	170	25	300	67.6
3	170	30	350	78.0
4	175	20	300	81.2
5	175	25	350	83.6
6	175	30	250	83.4
7	180	20	350	85.6
8	180	25	250	92.0
9	180	30	300	91.3
K1	1.667	1.838	1.908	
K2	2.002	1.961	1.936	
K3	2.168	2.038	1.993	
k1	68.9%	76.0%	78.9%	
k2	82.7%	81.1%	80.0%	
k3	89.6%	84.2%	82.4%	
极差	6.9%	8.3%	3.5%	
因素影响主次顺序	停留时间>加热温度>搅拌速度			
优水平	180	30	350	
优组合	(180℃, 30 min, 350 r/min)			

可以不同程度地影响离子液体的剥离效果. 而其中, 停留时间(极差为8.3%)和加热温度(极差为6.9%)两项影响较大, 搅拌速度因素(极差为3.5%)相对影响不大. 且在设定条件下, 最优组合为: 加热温度180℃、停留时间为30 min, 搅拌速度为350 r/min. 为了对其进行验证, 在该条件下进行实验, 计算负极材料的回收率达到95%, 铜金属可以得到全部回收, 其纯度达到97%以上(纯度根据负极材料的残留或铜箔的剥离率而定, 其它杂质为残留的负极材料).

4.3 分析讨论

相比正极材料和铝金属回收来说, 目前对废锂离子电池中铜回收的研究不多. 本研究的铜金属回收率可达100%, 纯度超过97%, 均高于da Costa等人^[18]的54%和66%, Granata等人^[19]的78%和95%, Zhu等人^[20]的93.1%和95.4%(图5). 主要原因在于, 过去的这些研究通常采用破碎、分选的方式对废锂离子电池回收, 铜箔在破碎时, 不仅发生粒度减小、与负极材料脱离, 也会发生卷曲. 卷曲的铜箔将负极材料包裹在内, 很难再进行分离, 因而降低了铜金属的回收纯度和回收效率. 另外, 在不同粒度的物料中, 均含有不同浓度铜金属, 过去这些研究只选择一定粒径物料进行资源化处

图5 铜金属回收效果对比

理, 则降低了铜金属的回收率.

4.4 短程高效回收废锂离子电池中有色金属的工艺技术构建及分析

上述研究发现, 离子液体加热可有效剥离废锂离子电池阳极部分的铜箔和负极材料. 基于实验结果和已有研究, 利用离子液体加热短程高效回收废锂离子电池中有色金属的工艺技术如图6所示. 首先, 废锂离子电池经过盐水放电和干燥, 为了更高效回收有价材

图6 短程高效回收废锂离子电池中有色金属的工艺技术

料,对废电池进行手工拆解,可以得到阴极、阳极、隔膜等.含有铜与碳粉的阳极和含有铝与钴酸锂材料的阴极,分别置于180℃离子液体中,调整搅拌机转速300~350 r/min,保持停留时间25~30 min完成分离处理.最后,离子液体进行冷却,将高品位的铜箔、铝箔和正极材料进行分离和清洗,最终获得高纯度的铜金属、铝金属、正极材料和负极材料,实现全组分回收.

含有离子液体的清洗液可进行重复使用,因为[BMIIm][BF₄]离子液体为水溶性的.含有清洗水的离子液体重新置入油浴锅后,当温度加热至100℃时,首先是水分蒸发,完毕后继续升温至工艺最佳温度.几乎任何主流的正负极材料都可通过该工艺回收,不管正极材料是钴酸锂还是其他物质.既然清洁的金属和正负极材料可得到回收,这为这些材料的再利用、再循环提供了可能.

从物质流分析角度看,根据构建的回收工艺和各种废锂离子电池理化组成^[5],1000 kg混合废锂离子电池

池经过放电、拆解、离子液体加热拆解、分离等过程,可以回收大约100 kg铜箔、99 kg铝箔、345 kg的正负极材料和142 kg隔膜等资源.

5 结论

(1) 离子液体加热处理废锂离子电池阳极过程中,主要发生热对流和热传导过程;利用搅拌机快速运转可强化热对流的过程和机械力剥离极材料;基于傅里叶定律对该剥离过程建立了热传递过程数学模型.

(2) 实验分析验证采用离子液体加热回收铜金属的适宜工艺条件为:加热温度180℃、搅拌速度350 r/min、停留时间30 min,经过处理后,铜金属回收率可达100%,纯度超过97%.

(3) 根据研究结果,提出了针对废锂离子电池的系统化的短程高效回收工艺:放电预处理、拆解、离子液体加热分离、清洗、过滤/回用和最终分离等过程.

参考文献

- Kim H, Jang Y C, Hwang Y, et al. End-of-life batteries management and material flow analysis in South Korea. *Front Environ Sci Eng*, 2018, 12: 3
- Pehlken A, Albach S, Vogt T. Is there a resource constraint related to lithium ion batteries in cars? *Int J Life Cycle Assess*, 2017, 22: 40–53
- Zeng X, Li J, Ren Y. Prediction of various discarded lithium batteries in China. In: 2012 IEEE International Symposium on Sustainable Systems and Technology (ISSST). Boston, 2012
- Gies E. Recycling: Lazarus batteries. *Nature*, 2015, 526: S100–S101
- Zeng X, Li J. Spent rechargeable lithium batteries in e-waste: Composition and its implications. *Front Environ Sci Eng*, 2014, 8: 792–796
- Wang M, Tan Q, Chiang J F, et al. Recovery of rare and precious metals from urban mines—A review. *Front Environ Sci Eng*, 2017, 11: 1–17
- Chen J, Li Q, Song J, et al. Environmentally friendly recycling and effective repairing of cathode powders from spent LiFePO₄ batteries. *Green Chem*, 2016, 18: 2500–2506
- Wang M M, Zhang C C, Zhang F S. An environmental benign process for cobalt and lithium recovery from spent lithium-ion batteries by mechanochemical approach. *Waste Manage*, 2016, 51: 239–244
- Zhang X, Xue Q, Li L, et al. Sustainable recycling and regeneration of cathode scraps from industrial production of lithium-ion batteries. *ACS Sust Chem Eng*, 2016, 4: 7041–7049
- Gao W, Zhang X, Zheng X, et al. Lithium carbonate recovery from cathode scrap of spent lithium-ion battery: A closed-loop process. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 1662–1669
- Xiao J, Li J, Xu Z. Novel approach for *in situ* recovery of lithium carbonate from spent lithium ion batteries using vacuum metallurgy. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 11960–11966
- Zeng X, Li J, Singh N. Recycling of spent lithium-ion battery: A critical review. *Critical Rev Environ Sci Tech*, 2014, 44: 1129–1165
- Zhang X, Xie Y, Lin X, et al. An overview on the processes and technologies for recycling cathodic active materials from spent lithium-ion batteries. *J Mater Cycle Waste Manag*, 2013, 15: 420–430
- 张锁江, 刘晓敏, 姚晓倩, 等. 离子液体的前沿、进展及应用. *中国科学B辑: 化学*, 2009, 39: 1134–1144
- Zeng X, Li J. Innovative application of ionic liquid to separate Al and cathode materials from spent high-power lithium-ion batteries. *J Hazard*

- Mater*, 2014, 271: 50–56
- 16 Holomb R, Martinelli A, Albinsson I, et al. Ionic liquid structure: The conformational isomerism in 1-butyl-3-methyl-imidazolium tetrafluoroborate ([bmim][BF₄]). *J Raman Spectrosc*, 2008, 39: 793–805
- 17 东莞国佳. PVDF塑胶原料(poly vinylidene fluoride)-聚偏氟乙烯. 2014 [2014-02-23]. <http://www.gjsjyl.com/hydt/2013/0822/418.html>
- 18 da Costa A J, Matos J F, Bernardes A M, et al. Beneficiation of cobalt, copper and aluminum from wasted lithium-ion batteries by mechanical processing. *Int J Mineral Process*, 2015, 145: 77–82
- 19 Granata G, Moscardini E, Pagnanelli F, et al. Product recovery from Li-ion battery wastes coming from an industrial pre-treatment plant: Lab scale tests and process simulations. *J Power Sources*, 2012, 206: 393–401
- 20 Zhu S G, He W Z, Li G M, et al. Recovering copper from spent lithium ion battery by a mechanical separation process. In: 2011 International Conference on Materials for Renewable Energy & Environment (ICMREE). Shanghai, 2011. 1008–1012

Short-cut and high-efficiency process to recycle copper from spent lithium-ion battery

JULDEZ Nurlan, LI JinHui & ZENG XianLai

Key Laboratory for Solid Waste Management and Environment Safety, School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China

The booming flourish of information communication technology and electric vehicle industry has resulted in plenty of spent lithium-ion battery (LiB). Its recycling is recognized as the vital approach for resource sustainability and environmental improvement. However, the conventional recycling process was much complicated with a low recycling efficiency. We chose ionic liquid as heat medium to melt the binder and separate copper foil and anode material. Theoretical analysis based on Fourier's law was adopted to determine the heat transfer mechanism of cathode material and to examine the relationship between heating temperature and retention time. All the experimental and theoretic results show that peel-off rate of copper foil from anode materials could reach 95% when major process parameters were controlled at 180°C heating temperature, 350 r/min agitator rotation, and 30 min retention time. The obtained results further imply that the application of ionic liquid for recycling copper and anode materials from spent LiBs is short cut and highly efficient, regardless of the application source of the LiBs or the types of anode material. The proposed process will smooth the high recycling rate for copper and aluminum, and enable the closed-loop supply chain for spent lithium-ion battery.

spent lithium-ion battery, recycling, copper, ionic liquid, Fourier's law

doi: [10.1360/N092017-00385](https://doi.org/10.1360/N092017-00385)