



PAPER – OPEN ACCESS

Pemungutan Lithium dari Baterai LFP Bekas dengan Metode Piro-hidrometalurgi

Author : Widiанти Densiana, dkk
DOI : 10.32734/ee.v8i1.2615
Electronic ISSN : 2654-704X
Print ISSN : 2654-7031

Volume 8 Issue 1 – 2025 TALENTA Conference Series: Energy & Engineering (EE)



This work is licensed under a [Creative Commons Attribution-NoDerivatives 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by-nd/4.0/).
Published under licence by TALENTA Publisher, Universitas Sumatera Utara



Pemungutan Lithium dari Baterai LFP Bekas dengan Metode Pirohidrometalurgi

Widianti Densiana¹², Indra Perdana¹², Maulana Gilar Nugraha¹

¹¹Dapartemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Gadjah Mada

Jl. Grafika No.2, Bulaksumur, Daerah Istimewa Yogyakarta 55281, Indonesia

²Green e-Waste and Battery Recycling Research Group (GREENERY)

Jl. Grafika No.2, Bulaksumur, Daerah Istimewa Yogyakarta 55281, Indonesia

widiantidensiana@mail.ugm.ac.id, iperdana@ugm.ac.id, maulana.gilar.n@ugm.ac.id

Abstrak

Pertumbuhan pesat penggunaan baterai lithium-ion (LiB), khususnya Lithium Iron Phosphate (LFP), seiring meningkatnya adopsi kendaraan listrik dan upaya global menuju *Net Zero Emission* (NZE) 2060, turut memicu peningkatan limbah baterai bekas. Meskipun tidak mengandung logam berharga seperti nikel dan kobalt, baterai LFP tetap memiliki potensi daur ulang yang tinggi berkat kandungan litium di dalamnya. Pemanfaatan kembali logam berharga dari limbah baterai *Lithium Iron Phosphate* (LFP) menjadi fokus utama dalam mendukung ekonomi sirkular dan keberlanjutan sumber daya. Penelitian ini mengevaluasi pengaruh laju pemanasan dan rasio massa ammonium sulfat terhadap *recovery* litium melalui proses *roasting* dan *water leaching*. Hasil menunjukkan bahwa laju pemanasan rendah (5°C/menit) menghasilkan efisiensi reaksi sulfatasi termal yang lebih baik, sehingga meningkatkan *recovery* litium. Sementara itu, peningkatan rasio ammonium sulfat hingga 1:1.4 (w/w) juga berkontribusi pada pembentukan litium sulfat (Li_2SO_4) yang larut dalam air, sehingga mendorong kenaikan nilai *recovery*. Analisis *Response Surface Methodology* (RSM) mengonfirmasi bahwa kombinasi antara rasio ammonium sulfat yang tinggi dan laju pemanasan rendah hingga sedang memberikan hasil *recovery* lithium terbaik (>95%). Namun, *recovery* besi (Fe) relatif rendah dan tidak stabil pada sebagian besar kondisi, terutama saat laju pemanasan tinggi. Hasil ini menunjukkan bahwa pengaturan kondisi termal dan proporsi reagen merupakan kunci dalam optimasi proses *recovery* litium dari baterai LFP bekas secara efisien dan berkelanjutan.

Kata Kunci: Baterai LFP; Pelindian Air; *Roasting*; Pirometalurgi; Ammonium Sulfat; *Recovery* Litium

Abstract

The rapid growth in the use of lithium-ion batteries (LiBs), particularly Lithium Iron Phosphate (LFP), driven by the increasing adoption of electric vehicles and global efforts toward Net Zero Emissions (NZE) by 2060, has led to a significant rise in spent battery waste. Although LFP batteries do not contain high-value metals like nickel or cobalt, their lithium content presents a strong potential for recycling. The recovery of valuable metals from spent LFP batteries is a key step in supporting circular economy initiatives and ensuring resource sustainability. This study investigates the effect of heating rate and the mass ratio of ammonium sulfate on lithium recovery through a *roasting* and *water leaching* process. The results indicate that a lower heating rate (5°C/min) improves the efficiency of thermal sulfation, leading to higher lithium recovery. Moreover, increasing the ammonium sulfate ratio up to 1:1.4 (w/w) enhances the formation of water-soluble lithium sulfate (Li_2SO_4), further boosting recovery performance. Response Surface Methodology (RSM) analysis confirms that the combination of high ammonium sulfate ratio and low to moderate heating rate yields the best lithium recovery (>95%). However, iron (Fe) recovery remains relatively

low and unstable under most conditions, especially at higher heating rates. These findings highlight the importance of optimizing thermal conditions and reagent proportions to achieve efficient and sustainable lithium recovery from spent LFP batteries.

Keywords: Spent LFP Battery; Water Leaching; Roasting; Pyrometallurgy; Ammonium Sulfate; Recovery Lithium

1. Introduction

Pertumbuhan penggunaan *Lithium-ion Battery* (LiB) meningkat pesat seiring dengan meluasnya pemakaian kendaraan listrik dan perangkat elektronik, terutama dalam upaya global mencapai *Net Zero Emission* (NZE) pada 2060 [1]. Salah satu jenis baterai yang makin populer untuk kendaraan listrik adalah *Lithium Iron Phosphate* (LFP), karena dinilai lebih aman, tidak beracun, dan ramah lingkungan dibandingkan baterai berbasis nikel. Namun, peningkatan penggunaan baterai LFP juga berdampak pada jumlah limbah baterai bekas yang terus bertambah [2]. Seiring dengan banyaknya penggunaan baterai LFP, jumlah limbah baterai bekas juga diprediksi meningkat dalam beberapa tahun mendatang. Meskipun baterai LFP tidak mengandung logam bernilai tinggi seperti nikel atau kobalt, kandungan litium di dalamnya tetap menjadikannya sebagai sumber sekunder yang berpotensi untuk di daur ulang. Pemanfaatan limbah baterai LFP untuk pemulihan litium tidak hanya berkontribusi terhadap konservasi sumber daya, tetapi juga mendukung Pembangunan sistem ekonomi sirkular yang berkelanjutan.

Oleh karena itu, diperlukan teknologi daur ulang yang efisien dan berkelanjutan untuk memulihkan logam berharga, khususnya litium. Salah satu pendekatan yang menjanjikan adalah metode kombinasi pirometalurgi-hidrometalurgi (piro-hidrometalurgi), yang melibatkan proses pemanggangan (*roasting*) dengan bahan aditif seperti ammonium sulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) untuk memecah struktur katoda LFP menjadi senyawa litium sulfat (Li_2SO_4) yang lebih mudah larut dalam air dan meningkatkan *recovery* litium, diikuti dengan proses pelindian menggunakan air (*water leaching*) pada suhu ruang untuk menyederhanakan proses dan mengurangi konsumsi energi [3]-[5]. Penelitian ini bertujuan untuk mengevaluasi pengaruh laju pemanasan dan rasio penggunaan ammonium sulfat dalam proses *roasting* terhadap efisiensi pemulihan litium dari baterai LFP bekas. Diharapkan hasilnya dapat memberikan informasi mengenai kondisi operasi optimal yang menghasilkan *recovery* litium terbaik.

Nomenclature

LiB	<i>Lithium-ion Battery</i>
NZE	<i>Net Zero Emission</i>
LFP	<i>Lithium Iron Phosphate</i>
w/w	<i>Wight/Weight</i>
ICP-OES	<i>Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrophotometry</i>
RSM	<i>Response Surface Methodology</i>

2. Material & Metode

2.1. Material

Penelitian ini menggunakan bahan utama berupa black mass dari baterai LFP bekas yang diperoleh dari sistem baterai swap pada kendaraan listrik. Sementara itu, bahan pendukung yang digunakan meliputi ammonium sulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) yang berfungsi sebagai aditif dalam tahap proses *roasting*.

2.2. Metode

Tahapan proses diawali dengan *discharging* untuk menghilangkan muatan listrik yang tersisa di dalam limbah baterai LFP melalui perendaman larutan NaCl. Selanjutnya baterai dihancurkan secara mekanis untuk menghasilkan

fragmen kecil yang terdiri dari material grafit, aluminium, tembaga, separator. Hasil cacahan material baterai dicuci menggunakan *demineralized water*. Selanjutnya dilakukan pemisahan antara separator, aluminium, tembaga dan cairan, kemudian cairan akan diendapkan melalui endapan bertingkat untuk mendapatkan serbuk black mass. Serbuk black mass yang dihasilkan diroasting dengan tambahan bahan aditif berupa ammonium sulfat $((\text{NH}_4)_2\text{SO}_4)$ dengan rasio 1:0.4, 0.9, 1.4 (w/w) pada suhu 450°C selama 60 menit dengan laju pemanasan 5°C/menit, 10°C/menit, dan 15°C/menit. Blackmass hasil roasting dilakukan *water leaching* pada suhu ruang selama 30 menit.

2.3. Karakterisasi

Filtrat dan residu hasil *water leaching* dianalisis menggunakan *Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrophotometry* (ICP-OES Optima 8300, PerkinElmer) untuk mengetahui secara kuantitatif berapa banyak litium dan logam lainnya didalam *black mass* yang dapat dilarutkan dan yang tertinggal di dalam padatan setelah *water leaching*.

3. Pembahasan

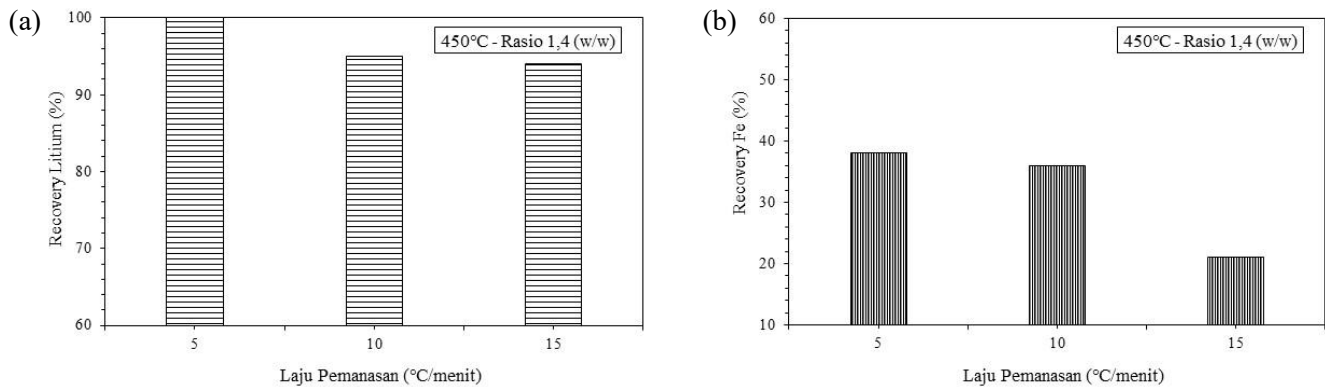
3.1. Pengaruh Laju Pemanasan

Parameter penting dalam proses *roasting black mass* baterai LFP dengan penambahan ammonium sulfat adalah laju pemanasan. Proses *roasting* bertujuan untuk mengubah senyawa litium yang tidak larut seperti LiFePO_4 menjadi senyawa yang larut dalam air yaitu litium sulfat (Li_2SO_4) melalui reaksi sulfatasi termal. Pengaruh laju pemanasan (5, 10, dan 15°C/menit) pada proses *roasting* selama 60 menit dan suhu 450°C dengan rasio ammonium sulfat $\text{LiFePO}_4 : ((\text{NH}_4)_2\text{SO}_4)$ 1: 1.4 (w/w) dengan kecepatan pengadukan 500 rpm. Gambar 1 menunjukkan hasil analisis (ICP-OES Optima 8300, PerkinElmer) pada setiap variasi laju pemanasan. Hasil analisis pada Gambar 1(a) menunjukkan selama proses *roasting* laju pemanasan memiliki dampak yang signifikan dalam *recovery* litium melalui *water leaching*. Pada laju pemanasan 5°C/menit, 10°C/menit, dan 15°C/menit dengan rasio 1:1.4 (w/w) litium yang ter-*recovery* masing-masing sebesar 94%, 93%, dan 67%.

Berdasarkan Gambar 1(b), *recovery* Fe menunjukkan pola menurun seiring dengan peningkatan laju pemanasan, dimana nilai *recovery* tertinggi sebesar 38% pada laju pemanasan 5°C/menit, kemudian sedikit menurun pada laju 10°C/menit (36%), dan menurun secara signifikan hingga 21% pada laju 15°C/menit. Penurunan ini menunjukkan bahwa laju pemanasan yang tinggi ($>10^\circ\text{C}/\text{menit}$) berpotensi membentuk senyawa besi yang tidak larut dalam air, seperti Fe_2O_3 , akibat laju reaksi oksidasi yang lebih cepat dibandingkan pembentukan senyawa besi yang larut. Sebaliknya, pada pemanasan yang lebih lambat, waktu tinggal yang lebih panjang memungkinkan terbentuknya senyawa antara Fe yang lebih mudah larut, meskipun proses ini secara khusus ditujukan untuk mengekstraksi litium secara selektif.

Berdasarkan nilai *recovery* Li yang dihasilkan, peningkatan laju pemanasan menyebabkan penurunan pemulihan lithium selama *leaching*. Hal ini dapat dijelaskan dalam termokimia, dimana pada laju pemanasan yang rendah memberikan waktu reaksi yang panjang, memungkinkan pembentukan produk Li_2SO_4 berjalan lebih sempurna [3]. Sebaliknya jika laju pemanasan semakin tinggi cenderung menyebabkan reaksi kurang sempurna karena waktu kontak yang berlangsung sangat cepat, yang dapat menyebabkan dekomposisi termal ammonium sulfat terjadi sebelum reaksi dengan *black mass* selesai. Akibatnya, kandungan litium yang dapat bereaksi menjadi lebih sedikit, sehingga *recovery* litium berpotensi menurun. Pemanasan dengan laju tinggi menginduksi gradien suhu dalam partikel, sehingga dapat menurunkan efisiensi reaksi reduksi dan menghasilkan produk yang tidak homogen, serta menyisakan senyawa litium yang tidak larut. Akumulasi gas CO_2 pada permukaan partikel aktif juga dapat menghambat reaktivitas antara karbon dan litium. Sebaliknya, laju pemanasan yang lambat memungkinkan proses difusi dan reaksi berlangsung lebih optimal [6]. Dengan demikian, heating rate 5°C/menit dapat dikatakan sebagai

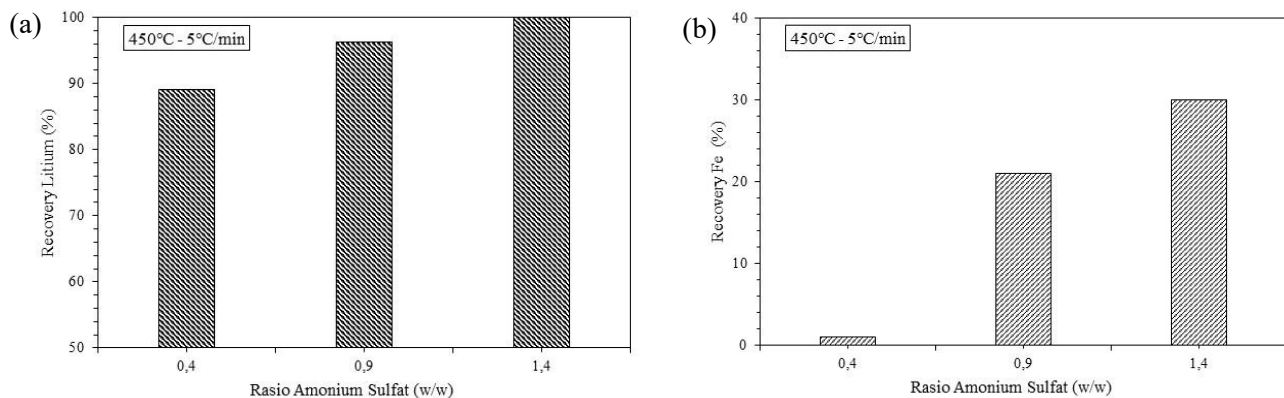
kondisi yang optimal dalam *recovery* litium karena mampu menjaga kestabilan reaksi, dan memberikan nilai *recovery* yang cukup tinggi.



Gambar 1. Variasi laju pemanasan (5°C/min , 10°C/min , 15°C/min) dengan suhu 450°C dan rasio ((NH₄)₂SO₄) 1:1.4 (w/w) pada recovery (a) Litium (Li) (b) Besi (Fe)

3.2. Pengaruh Rasio Ammonium Sulfat

Rasio massa antara *black mass* LFP dengan ammonium sulfat ((NH₄)₂SO₄) penting dalam proses *roasting* karena dapat menentukan jumlah reagen yang tersedia untuk bereaksi dengan litium. Pengaruh rasio ammonium sulfat LiFePO₄ : ((NH₄)₂SO₄) (1:0.4 , 1:0.9 , dan 1:1.4 (w/w)). Gambar 2(a) menunjukkan semakin tinggi rasio ammonium sulfat, maka nilai *recovery* litium juga meningkat.



Gambar 2. Variasi rasio ammonium sulfat pada suhu 450°C dan heating rate 5°C/menit dalam recovery (a) Litium (Li) (b) Besi (Fe)

Pada rasio 0.4 diperoleh *recovery* sekitar 89%, kemudian meningkat menjadi 96% pada rasio 0.9 dan mencapai 100% pada rasio 1.4. Peningkatan rasio ammonium sulfat membentuk lebih banyak ion sulfat (SO₄²⁻) yang diperlukan dalam proses pemisahan litium, reaksi pembentukan Li₂SO₄ dapat dilihat pada reaksi 1.

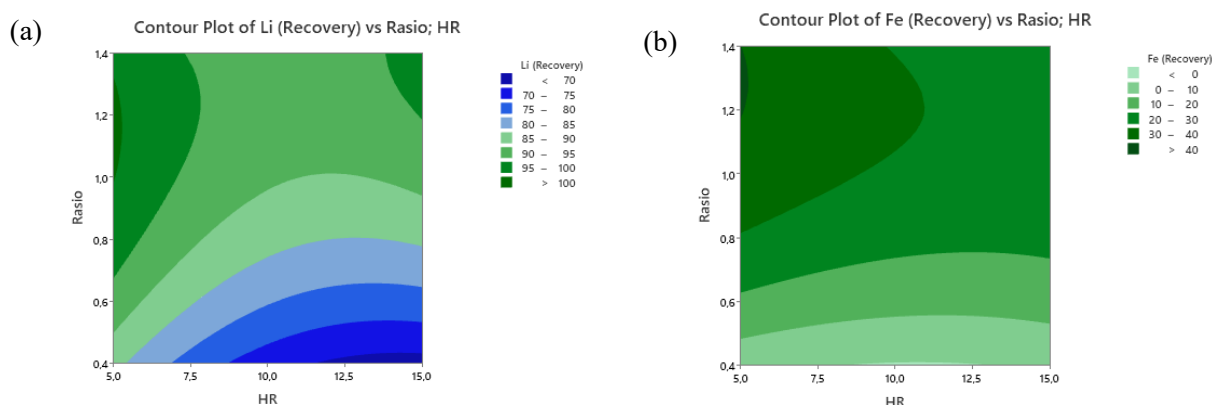


Pada rasio rendah (1:0.4 (w/w)), jumlah ammonium sulfat terbatas sehingga tidak semua litium dapat bereaksi secara maksimal. Hal ini menyebabkan sebagian litium masih dalam bentuk LiFePO_4 yang tidak larut, sehingga *recovery* litium yang diperoleh menjadi lebih rendah. Ketika rasio ditingkatkan ke rasio 1:0.9 dan 1:1.4 (w/w), jumlah reagen cukup untuk bereaksi dengan hampir keseluruhan kandungan litium dalam *black mass*. Pada rasio 1.4 kemungkinan semua litium telah bereaksi dan berubah menjadi bentuk senyawa yang dapat larut dalam air (Li_2SO_4), yang kemudian dapat di ambil melalui proses *water leaching*. Hal ini menjelaskan bagaimana *recovery* litium mendekati 100% pada rasio tertinggi. Namun peningkatan rasio ammonium sulfat mempengaruhi perilaku *recovery* Fe. Berdasarkan Gambar 2(b), *recovery* Fe menunjukkan peningkatan rasio ammonium sulfat dari 0.4 ke 1.4 (w/w) menunjukkan tren peningkatan yang cukup signifikan terhadap *recovery* Fe. Pada rasio rendah (0.4 w/w), *recovery* Fe sangat kecil (<2%), namun meningkat tajam menjadi 21% pada rasio 0.9 (w/w) dan mencapai 30% pada rasio 1.4 (w/w). hal ini mengindikasikan bahwa semakin banyak ammonium sulfat yang ditambahkan, semakin besar kemungkinan terbentuknya senyawa antara Fe dan Sulfat yang mudah larut dalam air seperti FeSO_4 [3].

Sehingga, dengan *recovery* Fe yang tinggi, hal ini menunjukkan penurunan selektivitas proses terhadap *recovery* Li. Oleh karena itu, meskipun penggunaan rasio tinggi bermanfaat bagi *recovery* Litium, diperlukan optimalisasi lebih lanjut agar Fe tidak ikut terlarut dalam jumlah yang signifikan. Serta ketersediaan bahan aditif menjadi faktor dominan dalam mendukung efisiensi reaksi, namun demikian dalam pertimbangan kelesatarian lingkungan penggunaan rasio terlalu tinggi perlu dipertimbangkan kembali.

3.3. Analisis menggunakan Metode *Response Surface Methodology* (RSM)

Pendekatan secara statistic dengan metode *Response Surface Methodology* (RSM) digunakan untuk mengevaluasi interaksi antara rasio ammonium sulfat dan laju pemanasan terhadap Tingkat *recovery* logam litium (Li) dan besi (Fe). Berdasarkan Gambar 3 terlihat bahwa laju pemanasan dan rasio ammonium sulfat memiliki pengaruh yang signifikan terhadap *recovery* Li maupun Fe. Pola distribusi warna menunjukkan zona interaksi antara kedua variable. Zona berwarna gelap menunjukkan *recovery* yang lebih tinggi, sedangkan area yang lebih terang menunjukkan *recovery* rendah. Pada Gambar 3(a) *recovery* Li semakin meningkat ketika rasio ammonium sulfat semakin besar terutama diatas 1.0 (w/w). Pada laju pemanasan rendah hingga sedang ($5\text{--}10^\circ\text{C}/\text{menit}$) *recovery* Li dapat mencapai lebih dari 95% jika rasio ammonium sulfat tinggi. Sebaliknya jika rasio ammonium sulfat rendah (0.4 w/w), maka berapapun laju pemanasannya *recovery* Li tetap rendah sekitar 67-89%. Hal ini dikarenakan semakin banyak ammonium sulfat yang ditambahkan maka semakin efektif proses pemisahan litium dari *black mass* LFP. Amonium sulfat membantu memecah struktur kimia *black mass* baterai LFP sehingga litium lebih mudah untuk dipisahkan [3]. Namun jika laju pemanasannya terlalu tinggi, proses pemecahan struktur kimia yang terjadi terlalu cepat sehingga litium tidak punya cukup waktu untuk bereaksi dan terlepas yang membuat *recovery*-nya menurun.



Gambar 3. Pengaruh Laju Pemanasan dan Rasio Ammonium Sulfat dengan Metode *Response Surface Methodology* (RSM) terhadap (a) *Recovery* Li dan (b) *Recovery* Fe

Berbeda dengan litium, untuk besi (Fe) menunjukkan pola yang lebih tidak stabil dan nilai *recovery*-nya jauh lebih rendah secara keseluruhan. Area dengan *recovery* Fe yang paling tinggi (30-38%) hanya muncul pada rasio ammonium sulfat sedang hingga tinggi (0.9-1.4 (w/w)) dengan laju pemanasan rendah (5°C/menit). Jika laju pemanasan dinaikan, *recovery* Fe cenderung turun drastis bahkan mendekati 0% di beberapa kombinasi. Hal ini dapat disebabkan karena senyawa Fe cenderung berubah menjadi bentuk oksida yang tidak larut dalam air, terutama pada suhu tinggi dan ber-oksigen [7].

4. Kesimpulan

Proses roasting *black mass* baterai LFP menggunakan ammonium sulfat menunjukkan bahwa laju pemanasan dan rasio reagen sangat memengaruhi *recovery* logam. Laju pemanasan yang lambat (5°C/menit) terbukti optimal untuk *recovery* litium, menghasilkan nilai hingga 98%, karena memberi waktu reaksi yang cukup untuk pembentukan Li_2SO_4 . Sebaliknya, laju yang terlalu cepat menyebabkan reaksi tidak sempurna dan menurunkan efisiensi *recovery*. Peningkatan rasio ammonium sulfat hingga 1.4 (w/w) meningkatkan *recovery* lithium mendekati 100% karena ketersediaan ion sulfat yang lebih banyak, namun juga memicu peningkatan *recovery* Fe hingga 30%, yang menurunkan selektivitas terhadap litium. Oleh karena itu, pemilihan rasio perlu mempertimbangkan efisiensi proses dan dampak ekonomi-lingkungan. Analisis RSM menunjukkan bahwa kombinasi laju pemanasan rendah dan rasio ammonium sulfat tinggi memberikan hasil terbaik untuk *recovery* lithium, sedangkan *recovery* Fe bersifat lebih fluktuatif dan menurun tajam pada pemanasan cepat. Optimalisasi parameter diperlukan agar proses tetap selektif terhadap litium tanpa meningkatkan pelarutan Fe secara signifikan.

Ucapan Terima Kasih

Penulis menyampaikan ucapan terima kasih kepada Lembaga Pengelola Dana Pendidikan (LPDP) dengan Nomor Riset: PRJ-77/LPDP/2020 atas dukungan finansial dalam proyek riset mengenai *recovery* litium dari baterai bekas.

Referensi

- [1] A. Hayder, K. Hassan Abbas, and P. Michael, "Preprocessing of Spent Lithium-Ion Batteries for Recycling : Need, Methods, and Trends," in *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2022, vol. 168, doi: 10.1016/j.rser.2022.112809.
- [2] Y. Cheng, Z. Jiliang, C. Zhihe, J. Qiankun, C. Yongqiang, and W. Chengyan, "Sustainable and Facile Process for Lithium Recovery from Spent $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_z\text{O}_2$ Cathode Materials via Selective Sulfation with Ammonium Sulfate," in *Journal of ACS Sustainable Chem. Eng.*, 2020, 8, 15732-15739, doi: 10.1021/acssuschemeng.0c05676.
- [3] X. Qu, J. Ma, B. Zhang, J. Zhao, B. Qiu, X. Chen, F. Zhou, X. Li, S. Gao, D. Wang, dan H. Yin, "Fast Ammonium Sulfate Salt Assisted Roasting for Selectively Recycling Degraded LiFePO_4 Cathode," in *Journal of Cleaner Production*, Dec. 2023, vol. 435, p. 140428, doi: 10.1016/j.jclepro.2023.140428.
- [4] B. Zhang, X. Qu, X. Chen, D. Liu, Z. Zhao, H. Xie, D. Wang, dan H. Yin, "A Sodium Salt-Assisted Roasting Approach Followed by Leaching for Recovering Spent LiFePO_4 Batteries," in *Journal of Hazardous Materials*, Feb. 2022, vol. 424, Part C, p. 127586, doi: 10.1016/j.jhazmat.2021.127586.
- [5] B. Zhang, X. Qu, J. Qu, X. Chen, H. Xie, P. Xing, D. Wang, dan H. Yin, "A Paired Electrolysis Approach for Recycling Spent Lithium Iron Phosphate Batteries in an Undivided Molten Salt Cell," in *Journal Green Chemistry*, 2020, vol. 22, no. 24, pp. 8633–8641, doi: 10.1039/d0gc01782e.
- [6] I. Perdana, D. R. Aprilianto, F. A. Fadillah, R. Fadli, H. T. B. M. Petrus, W. Astuti, M. A. Muflikhun, H. Nilasari, H. S. Oktaviano, F. Fathoni, E. Raihan, and S. U. Muzayanah, "Lithium Recovery from Mixed Spent LFP-NMC Batteries Through Atmospheric Water Leaching," in *Sci. Rep.*, 2025, vol. 15, Art. no. 2591, doi: 10.1038/s41598-025-86542-6.
- [7] G. Rzepa, T. Bajda, A. Gaweł, K. Debiec, and Ł. Drewniak, "Mineral transformations and textural evolution during roasting of bog iron ores," in *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 2016, vol. 123, pp. 615–630, doi: 10.1007/s10973-015-4925-1.