



Chuyển hóa pin lithium-ion thải thành vật liệu xúc tác giá trị cao trong xử lý môi trường

Upcycling Spent Lithium-Ion Batteries into High-Value Catalysts for Environmental Remediation

Lê Văn Thuận^{a, b*}, Hoàng Hiền Ý^{a, b}, Phạm Viết Trí^b, Tạ Hiền Thy^b
Le Van Thuan^{a, b*}, Hoang Hien Y^{a, b}, Pham Viet Tri^b, Ta Hien Thy^b

^a*Viện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ cao, Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam*

^a*Institute of Research and Development, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam*

^b*Khoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Công nghệ và Kỹ thuật, Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam*

^b*Faculty of Environment and Natural Sciences (ENS), School of Engineering and Technology, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam*

(Ngày nhận bài: 25/3/2026, ngày phản biện xong: 13/6/2026, ngày chấp nhận đăng: 01/8/2026)

Tóm tắt

Trong bối cảnh nhu cầu sử dụng pin lithium-ion (LIB) ngày càng gia tăng, lượng pin thải phát sinh đang đặt ra những thách thức lớn về môi trường và tài nguyên. Bài tổng quan này trình bày một cách hệ thống các hướng tiếp cận trong tái chế LIB, bao gồm luyện kim nhiệt, luyện kim ướt và tái chế trực tiếp, đồng thời phân tích sự khác biệt giữa các phương pháp này về khả năng thu hồi kim loại và mức độ bảo toàn cấu trúc vật liệu. Trên cơ sở đó, xu hướng chuyển hóa pin thải thành các vật liệu chức năng có giá trị gia tăng được làm rõ. Các vật liệu có nguồn gốc từ pin lithium-ion thải, đặc biệt là các oxit kim loại chuyển tiếp và composite chứa carbon, cho thấy tiềm năng đáng kể trong các ứng dụng xử lý môi trường như hấp phụ và xúc tác. Trong đó, các quá trình oxy hóa nâng cao, đặc biệt là hoạt hóa persulfate, đang nổi lên như một hướng ứng dụng hiệu quả nhờ khả năng phân hủy nhanh các chất ô nhiễm hữu cơ. Hướng tiếp cận này mở ra nhiều triển vọng trong thiết kế vật liệu và ứng dụng môi trường trong tương lai.

Từ khóa: pin lithium-ion thải, vật liệu xúc tác, hấp phụ, oxy hóa nâng cao, xử lý môi trường

Abstract

With the rapid growth in the use of lithium-ion batteries (LIBs), the increasing volume of spent LIBs has raised significant environmental and resource-related concerns. This mini-review provides a systematic overview of current recycling pathways, including pyrometallurgy, hydrometallurgy, and direct recycling, with a particular emphasis on their differences in metal recovery efficiency and structural preservation. Based on these approaches, the emerging strategy of converting spent LIBs into value-added functional materials is highlighted. Materials derived from spent LIBs, especially transition metal oxides and carbon-based composites, have demonstrated considerable potential in environmental remediation applications, including adsorption and catalysis. Among these, advanced oxidation processes, particularly persulfate activation, have attracted increasing attention due to their high efficiency in degrading organic pollutants. This approach offers new opportunities for the development of advanced materials for environmental applications in the future.

Keywords: spent lithium-ion batteries, catalytic materials, adsorption, advanced oxidation processes, environmental remediation

*Tác giả liên hệ: Lê Văn Thuận

Email: levanthuan3@duytan.edu.vn

1. Giới thiệu

Trong những năm gần đây, sự phát triển mạnh mẽ của các thiết bị điện tử di động và xe điện đã thúc đẩy nhu cầu sử dụng LIB trên toàn cầu. Tuy nhiên, vòng đời tương đối ngắn của các hệ pin này đã dẫn đến sự gia tăng nhanh chóng của lượng pin thải, đặt ra những thách thức nghiêm trọng về môi trường và tài nguyên. Các thành phần trong pin, đặc biệt là các kim loại chuyển tiếp như Co, Ni và Mn, có giá trị kinh tế cao nhưng đồng thời cũng tiềm ẩn nguy cơ gây ô nhiễm môi trường nếu không được xử lý đúng cách [1, 2].

Trước bối cảnh đó, nhiều phương pháp tái chế LIB đã được phát triển, bao gồm luyện kim nhiệt, luyện kim ướt và các phương pháp tái chế trực tiếp. Các chiến lược này chủ yếu tập trung vào việc thu hồi kim loại nhằm tái sử dụng trong sản xuất pin mới, góp phần giảm thiểu khai thác tài nguyên thiên nhiên và hướng tới nền kinh tế tuần hoàn [3]. Tuy nhiên, phần lớn các quy trình hiện nay vẫn ưu tiên mục tiêu thu hồi kim loại hơn là bảo toàn hoặc khai thác các đặc tính cấu trúc vốn có của vật liệu điện cực.

Gần đây, một hướng tiếp cận mới đã thu hút sự quan tâm đáng kể, đó là chuyển hóa LIB thải thành các vật liệu chức năng có giá trị cao, đặc biệt trong các ứng dụng xử lý môi trường [4–6]. Thay vì phá hủy hoàn toàn cấu trúc ban đầu, các phương pháp xử lý hóa học và nhiệt có thể được sử dụng để điều chỉnh cấu trúc, tạo khuyết tật và gia tăng diện tích bề mặt, từ đó hình thành các vật liệu có hoạt tính cao trong hấp phụ và xúc tác. Hướng tiếp cận này không chỉ nâng cao giá

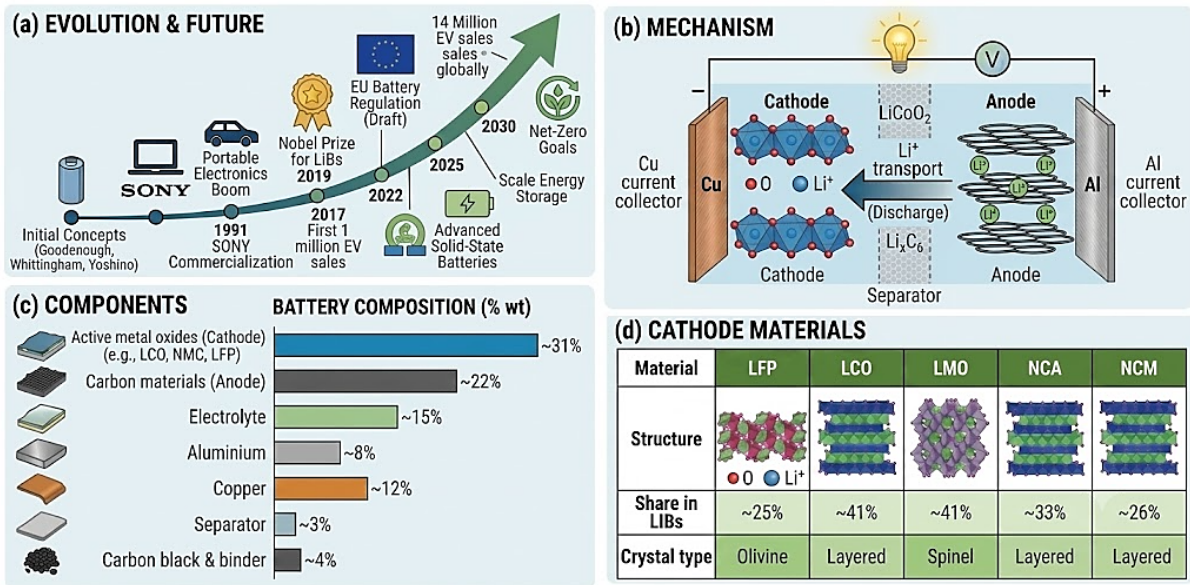
trị của chất thải mà còn mở ra tiềm năng ứng dụng trong các quá trình loại bỏ chất ô nhiễm.

Mặc dù đã có nhiều nghiên cứu riêng lẻ về tái chế pin và ứng dụng của vật liệu thu hồi, các tổng quan hiện nay vẫn còn hạn chế trong việc liên kết một cách hệ thống giữa các quá trình tái chế, chuyển hóa vật liệu và hiệu quả ứng dụng trong xử lý môi trường. Đặc biệt, mối quan hệ giữa biến đổi cấu trúc và hoạt tính chức năng của vật liệu vẫn chưa được làm rõ đầy đủ.

Do đó, bài báo này tập trung tổng quan các hướng tái chế LIB, các chiến lược chuyển hóa vật liệu điện cực thành vật liệu chức năng, cũng như các ứng dụng trong hấp phụ và xúc tác xử lý môi trường. Đồng thời, bài viết cũng thảo luận những thách thức và định hướng phát triển trong tương lai nhằm thúc đẩy hiệu quả của chiến lược “từ chất thải đến vật liệu chức năng”.

2. Tổng quan về LIB

LIB được thương mại hóa lần đầu tiên vào năm 1991 và nhanh chóng trở thành hệ lưu trữ năng lượng chủ đạo nhờ mật độ năng lượng cao, hiệu suất ổn định và tuổi thọ dài. Trong những thập kỷ gần đây, cùng với sự phát triển mạnh mẽ của các thiết bị điện tử di động và đặc biệt là xe điện, nhu cầu sử dụng LIB đã gia tăng đáng kể trên toàn cầu. Bên cạnh các ứng dụng trong điện thoại di động, máy tính xách tay và thiết bị điện tử tiêu dùng, LIB còn đóng vai trò quan trọng trong các hệ thống lưu trữ năng lượng quy mô lớn, góp phần thúc đẩy quá trình chuyển đổi sang năng lượng tái tạo [7, 8]. Sự phát triển và các lĩnh vực ứng dụng chính của LIB được thể hiện trong Hình 1a.



Hình 1. Cơ chế hoạt động, thành phần cấu tạo, phân loại vật liệu cực dương và lộ trình phát triển công nghệ của LIB [8, 9].

Về cấu tạo, một LIB điển hình bao gồm bốn thành phần chính: cực dương (cathode), cực âm (anode), chất điện ly (electrolyte) và màng ngăn (separator). Trong đó, cathode thường được cấu tạo từ các oxit kim loại chuyển tiếp chứa lithium như LiCoO_2 , LiFePO_4 , LiMn_2O_4 hoặc các hệ vật liệu đa kim như $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_z\text{O}_2$ (NMC), đóng vai trò là nguồn cung cấp và tiếp nhận ion Li^+ trong quá trình hoạt động. Anode phổ biến nhất là graphite, nơi xảy ra quá trình xen cài (intercalation) và giải xen cài (deintercalation) của ion lithium. Chất điện ly, thường là dung dịch muối lithium trong dung môi hữu cơ, cho phép ion Li^+ di chuyển giữa hai điện cực, trong khi màng ngăn có chức năng ngăn cách vật lý giữa cathode và anode, đồng thời vẫn đảm bảo tính dẫn ion [9, 10]. Cơ chế hoạt động và cấu tạo cơ bản của LIB được minh họa trong Hình 1b.

Tùy thuộc vào thành phần vật liệu cathode, LIB có thể được phân thành nhiều loại khác nhau như LiCoO_2 (LCO), LiFePO_4 (LFP), LiMn_2O_4 (LMO), cũng như các hệ vật liệu lai như NMC hoặc NCA. Mỗi loại vật liệu mang những ưu điểm và hạn chế riêng về mật độ năng lượng, độ ổn định nhiệt và chi phí sản xuất. Đáng chú ý, các vật liệu cathode này thường chứa các kim loại chuyển tiếp có giá trị cao như Co, Ni và Mn,

không chỉ đóng vai trò quan trọng trong hiệu suất điện hóa mà còn tạo ra tiềm năng lớn cho việc tái sử dụng trong các ứng dụng khác [3, 11]. Thành phần vật liệu và các hệ cathode điển hình của LIB được tổng hợp trong Hình 1c-d.

Ngoài các thành phần chính, LIB còn chứa các chất phụ trợ như chất dẫn điện (carbon black) và chất kết dính (binder), góp phần ổn định cấu trúc điện cực. Sau khi hết vòng đời sử dụng, các thành phần này vẫn giữ lại nhiều đặc tính vật liệu có giá trị, đặc biệt là cấu trúc tinh thể và trạng thái oxy hóa của kim loại. Điều này mở ra khả năng chuyển hóa LIB thải thành các vật liệu chức năng, thay vì chỉ tập trung vào thu hồi kim loại đơn thuần [12].

Như vậy, với thành phần hóa học đa dạng và hàm lượng kim loại chuyển tiếp cao, LIB không chỉ là nguồn chất thải cần xử lý mà còn là nguồn nguyên liệu tiềm năng cho các ứng dụng giá trị gia tăng. Đây chính là cơ sở quan trọng để phát triển các chiến lược chuyển hóa vật liệu từ pin thải sang các hệ vật liệu phục vụ trong xử lý môi trường.

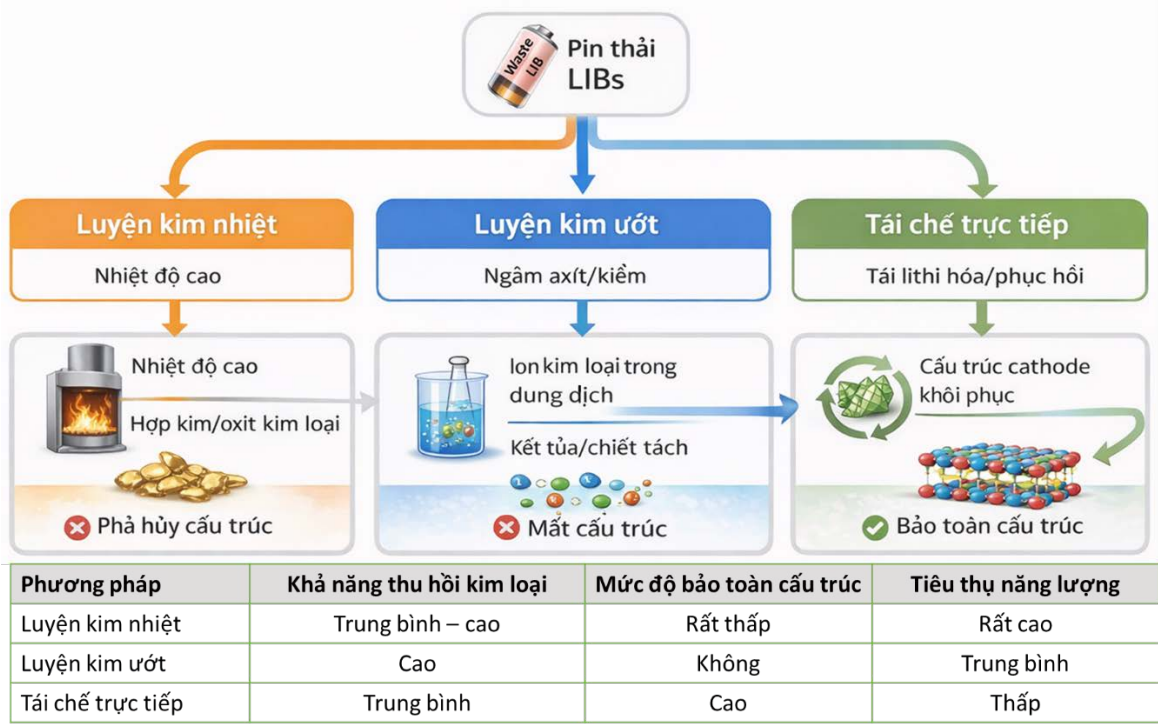
3. Các hướng tiếp cận tái chế LIB

Sự gia tăng nhanh chóng của lượng LIB thải đã thúc đẩy sự phát triển của nhiều công nghệ tái

chế nhằm thu hồi tài nguyên và giảm thiểu tác động môi trường. Các phương pháp tái chế hiện nay có thể được phân thành ba hướng chính (Hình 2) [1, 12]. Mỗi phương pháp có những ưu điểm và hạn chế riêng, đồng thời phản ánh các triết lý khác nhau trong việc xử lý vật liệu điện cực sau khi hết vòng đời sử dụng.

Luyện kim nhiệt là phương pháp truyền thống, trong đó pin thải được xử lý ở nhiệt độ cao để loại bỏ các thành phần hữu cơ và thu hồi

kim loại dưới dạng hợp kim hoặc oxit. Ưu điểm của phương pháp này là quy trình đơn giản, khả năng xử lý khối lượng lớn và ít nhạy cảm với thành phần đầu vào. Tuy nhiên, nhược điểm đáng kể là tiêu tốn năng lượng cao, phát sinh khí thải và đặc biệt là làm mất cấu trúc ban đầu của vật liệu điện cực. Do đó, mặc dù có thể thu hồi các kim loại có giá trị như Co và Ni, phương pháp này không bảo toàn được các đặc tính cấu trúc quan trọng phục vụ cho các ứng dụng chức năng sau này [9].



Hình 2. Các hướng tiếp cận chính tái chế LIB thải

Ngược lại, luyện kim ướt được phát triển mạnh trong những năm gần đây nhờ khả năng thu hồi kim loại với hiệu suất cao và tính linh hoạt trong điều chỉnh điều kiện phản ứng. Trong phương pháp này, các vật liệu điện cực được hòa tan trong môi trường axit hoặc kiềm, sau đó kim loại được tách ra thông qua các quá trình kết tủa, chiết dung môi hoặc trao đổi ion [12]. Mặc dù cho phép kiểm soát tốt thành phần và độ tinh khiết của sản phẩm, phương pháp này vẫn chủ yếu hướng đến mục tiêu thu hồi kim loại riêng lẻ. Đồng thời, quá trình hòa tan hoàn toàn cấu trúc vật liệu cũng làm mất đi các đặc trưng vi cấu

trúc có thể khai thác cho các ứng dụng xúc tác hoặc hấp phụ [13].

Trong khi đó, tái chế trực tiếp là hướng tiếp cận mới, tập trung vào việc bảo toàn và tái sử dụng cấu trúc vật liệu điện cực ban đầu thông qua các quá trình xử lý nhẹ hơn, chẳng hạn như tái lithi hóa hoặc phục hồi cấu trúc tinh thể. Phương pháp này có tiềm năng giảm chi phí năng lượng và duy trì được các đặc tính điện hóa của vật liệu. Tuy nhiên, hiệu quả của tái chế trực tiếp phụ thuộc mạnh vào mức độ suy giảm của vật liệu ban đầu và vẫn gặp nhiều thách thức trong việc mở rộng quy mô công nghiệp.

Từ góc độ phát triển vật liệu chức năng, có thể nhận thấy rằng phần lớn các công nghệ tái chế hiện nay vẫn tập trung vào thu hồi kim loại hơn là khai thác giá trị cấu trúc của vật liệu điện cực. Trong khi đó, các vật liệu cathode sau sử dụng vẫn chứa các pha oxit kim loại chuyển tiếp với cấu trúc tương đối ổn định, cùng với sự hiện diện của các khuyết tật và trạng thái oxy hóa đa dạng. Những đặc điểm này, nếu được điều chỉnh hợp lý thông qua các quá trình xử lý hóa học và nhiệt, có thể tạo ra các vật liệu có hoạt tính cao trong các ứng dụng môi trường [14].

Do đó, một xu hướng đang nổi lên là kết hợp giữa các bước tiền xử lý từ luyện kim ướt (như hòa tan chọn lọc hoặc loại bỏ tạp chất) với các quá trình xử lý nhiệt nhằm tái cấu trúc vật liệu theo hướng tạo khuyết tật, tăng diện tích bề mặt và điều chỉnh trạng thái hóa học của kim loại. Cách tiếp cận này không chỉ tận dụng được nguồn nguyên liệu sẵn có từ pin thải mà còn mở ra khả năng thiết kế các vật liệu xúc tác và hấp phụ hiệu quả cao.

Tóm lại, ba hướng tái chế chính của LIB phản ánh sự chuyển dịch từ các phương pháp thu hồi kim loại truyền thống sang các chiến lược khai thác giá trị vật liệu ở mức độ cao hơn. Việc kết hợp hợp lý giữa các công nghệ tái chế và các phương pháp biến đổi vật liệu sẽ đóng vai trò then chốt trong việc phát triển các hệ vật liệu chức năng từ pin thải.

4. Ứng dụng của vật liệu từ LIB thải trong xử lý môi trường

Sự chuyển hướng từ thu hồi kim loại sang tái sử dụng trực tiếp vật liệu điện cực đã mở ra nhiều ứng dụng tiềm năng của LIB thải trong lĩnh vực xử lý môi trường. Các vật liệu có nguồn gốc từ pin thải, đặc biệt là cathode chứa các kim loại chuyển tiếp như Co, Ni và Mn, thể hiện hoạt tính cao trong các quá trình loại bỏ chất ô nhiễm nhờ đặc tính oxy hóa-khử linh hoạt và khả năng tạo các vị trí hoạt động trên bề mặt. Đồng thời, các thành phần carbon từ anode và chất dẫn điện

cũng góp phần cải thiện khả năng hấp phụ và truyền điện tử trong hệ xúc tác [15]. Nhìn chung, các ứng dụng môi trường của vật liệu từ LIB thải có thể được chia thành hai hướng chính: hấp phụ và xúc tác, trong đó xúc tác, đặc biệt là các quá trình oxy hóa nâng cao (AOPs), đóng vai trò chủ đạo [8, 16, 17].

4.1. Ứng dụng trong hấp phụ

Mặc dù không phải là hướng nghiên cứu chiếm ưu thế, các vật liệu thu được từ LIB thải vẫn cho thấy tiềm năng đáng kể trong hấp phụ các chất ô nhiễm, đặc biệt là thuốc nhuộm và kim loại nặng. Thành phần carbon (graphite, carbon black) cùng với các oxit kim loại tạo nên hệ vật liệu composite tự nhiên, có khả năng cung cấp cả vị trí hấp phụ vật lý và tương tác hóa học. Ngoài ra, việc loại bỏ binder và xử lý nhiệt có thể làm lộ ra nhiều bề mặt hoạt động hơn, từ đó cải thiện đáng kể khả năng hấp phụ. Trong một số trường hợp, khả năng hấp phụ không chỉ đóng vai trò là cơ chế chính mà còn hỗ trợ các quá trình xúc tác bằng cách tập trung chất ô nhiễm lên bề mặt vật liệu, tạo điều kiện thuận lợi cho các phản ứng tiếp theo.

Một số nghiên cứu gần đây đã chứng minh hiệu quả của vật liệu từ pin thải trong loại bỏ kim loại nặng. Ví dụ, các vật liệu cathode từ pin lithium iron phosphate (LFP) và lithium manganate (LMO) sau sử dụng có thể được tái sử dụng trực tiếp làm chất hấp phụ, với dung lượng hấp phụ đối với Cu^{2+} , Pb^{2+} , Cd^{2+} và Zn^{2+} đạt lần lượt khoảng 44,28; 39,54; 25,63 và 27,34 mg g^{-1} đối với LFP, và ở mức tương đương đối với LMO. Quá trình hấp phụ được mô tả tốt bởi mô hình động học giả bậc hai và đẳng nhiệt Langmuir, cho thấy cơ chế hấp phụ hóa học đóng vai trò chi phối và bề mặt vật liệu tương đối đồng nhất [18].

Bên cạnh đó, phần graphite thu hồi từ pin lithium-ion thải cũng thể hiện tiềm năng vượt trội khi được chuyển hóa thành các vật liệu như graphene oxide hoặc graphite oxide. Các vật

liệu này có diện tích bề mặt và độ xốp cao, cho phép đạt dung lượng hấp phụ rất lớn đối với cả thuốc nhuộm ($>550 \text{ mg g}^{-1}$) và ion kim loại (lên đến $\sim 93 \text{ mg g}^{-1}$ đối với Ni^{2+}). Hiệu suất loại bỏ có thể đạt khoảng 97% đối với thuốc nhuộm và 94% đối với kim loại, vượt trội so với nhiều vật liệu thương mại. Điều này cho thấy tiềm năng khai thác đồng thời cả thành phần cathode và anode của pin thải trong các ứng dụng hấp phụ [19].

4.2. Ứng dụng trong xúc tác và oxy hóa nâng cao

Đây là hướng ứng dụng nổi bật và được nghiên cứu rộng rãi nhất của vật liệu từ LIB thải. Các vật liệu này có thể được sử dụng trực tiếp sau tiền xử lý hoặc sau khi biến tính để hoạt hóa các chất oxy hóa như H_2O_2 , peroxymonosulfate (PMS) hoặc peroxydisulfate (PDS), từ đó tạo ra các gốc oxy hóa mạnh phục vụ phân hủy các hợp chất hữu cơ khó phân hủy [20,21].

Trong số đó, hệ PMS được sử dụng phổ biến nhờ hiệu quả cao và phạm vi pH rộng. Cơ chế hoạt hóa PMS chủ yếu liên quan đến sự trao đổi electron giữa các kim loại chuyển tiếp trên bề

mặt vật liệu và phân tử PMS, dẫn đến sự hình thành các loài oxy hóa mạnh như $\text{SO}_4^{\cdot-}$. Đáng chú ý, các vật liệu cathode sau sử dụng thường chứa nhiều khuyết tật, biến dạng mạng tinh thể và trạng thái oxy hóa hỗn hợp, giúp tăng cường khả năng xúc tác so với vật liệu ban đầu [22].

Hai hướng tiếp cận chính trong ứng dụng xúc tác bao gồm: (i) sử dụng trực tiếp vật liệu điện cực sau tiền xử lý, và (ii) tổng hợp lại vật liệu xúc tác mới từ các thành phần đã hòa tan. Phương pháp thứ nhất có ưu điểm về đơn giản và chi phí thấp, trong khi phương pháp thứ hai cho phép kiểm soát tốt hơn cấu trúc và thành phần vật liệu.

Ngoài ra, các hệ xúc tác dựa trên pin thải cũng đã được ứng dụng trong nhiều quá trình khác như xúc tác quang hóa và xúc tác nhiệt. Ví dụ, các vật liệu composite như CoFe_2O_4 hoặc các hệ oxide đa kim có thể đạt hiệu suất loại bỏ chất ô nhiễm cao, với hiệu suất phân hủy có thể đạt trên 90% trong thời gian phản ứng tương đối ngắn [23]. Bên cạnh đó, việc kết hợp với các vật liệu carbon từ anode giúp cải thiện độ ổn định và khả năng tái sử dụng của hệ xúc tác.

Bảng 1. Tổng hợp một số nghiên cứu về ứng dụng vật liệu từ LIB thải trong xử lý môi trường

Vật liệu	Phương pháp xử lý	Ứng dụng	Hiệu suất	TLTK
NaFeS_2 (từ LFP)	Chuyển hóa hóa học + nung	Quang xúc tác (MB)	$\sim 98\%$ trong 20 phút	[24]
CoFe_2O_4 từ LCO	Nung sunfat hóa kết hợp hòa tách	Oxy hóa CO	$\sim 98\%$ CO (300°C)	[25]
Vật liệu MNC biến tính (SG-MNC)	Hòa tách + sol-gel + nung	Hoạt hóa PMS (MB, SMX, LVF, RhB)	Gần như hoàn toàn trong 30 phút	[15]
Co_3O_4 (từ LIB)	Hòa tách (axit lactic) + kết tủa + nung	Quang xúc tác (MB)	$\sim 61,5\%$ trong 120 phút	[26]
M/BP-BC (từ cathode LIB)	Hòa tách + sol-gel + nung (700°C)	PMS (MB, RhB, CIP)	98,3% MB; $\sim 92\%$ sau 6 chu kỳ	[20]

Từ các nghiên cứu đã công bố, có thể nhận thấy một số xu hướng rõ rệt trong việc ứng dụng vật liệu từ LIB thải. Trước hết, xu hướng sử dụng trực tiếp vật liệu điện cực sau tiền xử lý đang ngày càng được quan tâm do tính đơn giản và

hiệu quả kinh tế. Đồng thời, việc khai thác các đặc tính nội tại như khuyết tật, trạng thái oxy hóa hỗn hợp và cấu trúc đa pha của vật liệu đóng vai trò quan trọng trong việc nâng cao hoạt tính xúc tác.

Bên cạnh đó, sự kết hợp giữa các thành phần kim loại và carbon trong pin thải tạo ra các hệ vật liệu composite có tính hiệp đồng cao, giúp cải thiện đồng thời khả năng hấp phụ và xúc tác. Tuy nhiên, các thách thức liên quan đến độ ổn định, hiện tượng hòa tan kim loại và khả năng ứng dụng thực tế trong môi trường phức tạp vẫn cần được nghiên cứu thêm.

5. Thách thức và triển vọng

Mặc dù các nghiên cứu gần đây đã chứng minh tiềm năng đáng kể của việc chuyển hóa LIB thải thành vật liệu chức năng cho xử lý môi trường, việc triển khai rộng rãi hướng tiếp cận này vẫn đối mặt với nhiều thách thức cả về mặt kỹ thuật lẫn ứng dụng thực tiễn. Trước hết, một trong những vấn đề nổi bật là độ ổn định của vật liệu trong quá trình sử dụng. Các vật liệu có nguồn gốc từ cathode thường chứa các kim loại chuyển tiếp như Co, Ni và Mn, có thể bị hòa tan một phần trong môi trường phản ứng, đặc biệt dưới điều kiện axit hoặc trong các hệ oxy hóa mạnh. Hiện tượng này không chỉ làm suy giảm hoạt tính xúc tác theo thời gian mà còn tiềm ẩn nguy cơ gây ô nhiễm thứ cấp, đặt ra yêu cầu về việc kiểm soát quá trình rò rỉ kim loại và đánh giá độc tính môi trường một cách toàn diện. Bên cạnh đó, tính không đồng nhất của nguồn nguyên liệu pin thải cũng là một rào cản đáng kể. Thành phần và cấu trúc của LIB thay đổi tùy theo loại cathode (LCO, LFP, NMC, NCA) cũng như điều kiện sử dụng và mức độ suy giảm, dẫn đến sự biến động về tính chất của vật liệu thu hồi. Điều này gây khó khăn trong việc chuẩn hóa quy trình xử lý và thiết kế vật liệu có tính lặp lại cao, đặc biệt khi hướng tới quy mô công nghiệp. Ngoài ra, mặc dù nhiều phương pháp chuyển hóa vật liệu đã được đề xuất, phần lớn vẫn dừng lại ở quy mô phòng thí nghiệm với điều kiện phản ứng được kiểm soát chặt chẽ. Việc mở rộng quy mô đòi hỏi phải cân nhắc đến các yếu tố như chi phí hóa chất, tiêu thụ năng lượng và tính khả thi của quy trình, đặc biệt khi so sánh với các vật

liệu xúc tác thương mại hiện có. Trong bối cảnh đó, lợi thế về chi phí và tính bền vững của vật liệu từ pin thải cần được đánh giá một cách toàn diện hơn, thay vì chỉ dựa trên hiệu suất xử lý trong các điều kiện tối ưu.

Tuy nhiên, bên cạnh các thách thức, lĩnh vực này cũng đang mở ra nhiều hướng phát triển đầy triển vọng. Một trong những xu hướng đáng chú ý là chuyển dịch từ tư duy “thu hồi kim loại” sang “thiết kế vật liệu chức năng”, trong đó các đặc tính nội tại của vật liệu từ pin thải như khuyết tật cấu trúc, trạng thái oxy hóa hỗn hợp và cấu trúc đa pha được tận dụng như những yếu tố có lợi cho hoạt tính xúc tác. Cách tiếp cận này không chỉ giúp đơn giản hóa quy trình mà còn tạo ra các vật liệu có hiệu suất cao mà không cần các bước tổng hợp phức tạp. Bên cạnh đó, việc phát triển các hệ vật liệu composite, đặc biệt là sự kết hợp giữa oxit kim loại và carbon từ anode, đang cho thấy hiệu quả rõ rệt trong việc cải thiện độ ổn định và khả năng tái sử dụng. Các chiến lược biến tính bề mặt hoặc kết hợp với các vật liệu khác cũng mở ra khả năng điều chỉnh hoạt tính theo mục tiêu cụ thể, chẳng hạn như ưu tiên hấp phụ, xúc tác hoặc cả hai.

Trong tương lai, việc tích hợp các công cụ mô phỏng và trí tuệ nhân tạo trong thiết kế vật liệu có thể giúp tối ưu hóa nhanh chóng các thông số cấu trúc và thành phần, từ đó rút ngắn thời gian phát triển và nâng cao hiệu quả ứng dụng. Đồng thời, các nghiên cứu đánh giá vòng đời và tác động môi trường sẽ đóng vai trò quan trọng trong việc xác định tính bền vững thực sự của các công nghệ này. Tóm lại, mặc dù còn tồn tại nhiều thách thức, việc chuyển hóa LIB thải thành vật liệu chức năng cho xử lý môi trường vẫn là một hướng nghiên cứu đầy tiềm năng. Sự kết hợp giữa các chiến lược xử lý hiệu quả, thiết kế vật liệu có chủ đích và đánh giá toàn diện về môi trường sẽ là chìa khóa để đưa các giải pháp này tiến gần hơn đến ứng dụng thực tiễn.

6. Kết luận

Bài tổng quan này đã trình bày một cách hệ thống các hướng tiếp cận trong tái chế LIB thải, từ các phương pháp truyền thống như luyện kim nhiệt và luyện kim ướt đến các chiến lược tái chế trực tiếp. Trên cơ sở đó, xu hướng chuyển dịch từ thu hồi kim loại đơn thuần sang khai thác giá trị vật liệu đã được làm rõ, mở ra khả năng chuyển hóa pin thải thành các vật liệu chức năng phục vụ trong xử lý môi trường. Các kết quả tổng hợp cho thấy vật liệu có nguồn gốc từ LIB thải, đặc biệt là các hệ oxit kim loại chuyển tiếp và composite chứa carbon, thể hiện hiệu quả đáng kể trong cả hấp phụ và xúc tác. Trong đó, các quá trình oxy hóa nâng cao, đặc biệt là các hệ hoạt hóa persulfate, đang nổi lên như một hướng ứng dụng tiềm năng nhờ hiệu suất cao và tính linh hoạt. Đồng thời, các đặc tính nội tại của vật liệu như cấu trúc đa pha, trạng thái oxy hóa hỗn hợp và sự hiện diện của khuyết tật đóng vai trò quan trọng trong việc nâng cao hoạt tính. Tuy nhiên, để tiến tới ứng dụng thực tiễn, cần giải quyết các thách thức liên quan đến độ ổn định, hiện tượng hòa tan kim loại và khả năng mở rộng quy mô. Trong bối cảnh đó, việc phát triển các chiến lược chuyển hóa vật liệu có kiểm soát, kết hợp với đánh giá toàn diện về hiệu quả và tác động môi trường, sẽ là yếu tố then chốt. Tóm lại, việc chuyển hóa LIB thải thành vật liệu chức năng không chỉ góp phần giảm thiểu ô nhiễm mà còn phù hợp với định hướng phát triển bền vững và kinh tế tuần hoàn. Đây là một hướng nghiên cứu đầy triển vọng, cần được tiếp tục khai thác nhằm thúc đẩy các giải pháp xử lý môi trường hiệu quả và thân thiện hơn trong tương lai.

Lời cảm ơn: Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong nhiệm vụ mã số NCUD.05-2025.34.

Tài liệu tham khảo

- [1] Adebajo, I.T., Eko, J., Agbeyegbe, A.G., Yuk, S.F., Cowart, S.V., Nagelli, E.A., Burpo, F.J., Allen, J.L.,

- Tran, D.T., Bhattarai, N., Shah, K., Hwang, J.-Y., & Sun, H.H. (2025). "A comprehensive review of lithium-ion battery components degradation and operational considerations: A safety perspective". *Energy Advances*, **4**, 820–877. DOI: 10.1039/D5YA00065C.
- [2] Ngoy, K.R., Lukong, V.T., Yoro, K.O., Makambo, J.B., Chukwuati, N.C., Ibegbulam, C., Eterigho-Ikelegbe, O., Ukoba, K., & Jen, T.-C. (2025). "Lithium-ion batteries and the future of sustainable energy: A comprehensive review". *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, **223**, 115971. DOI: 10.1016/j.rser.2025.115971.
- [3] Dobó, Z., Dinh, T., & Kulcsár, T. (2023). "A review on recycling of spent lithium-ion batteries". *Energy Reports*, **9**, 6362–6395. DOI: 10.1016/j.egy.2023.05.264.
- [4] Ke, X., Qian, K., Li, X., Zheng, X., Yuan, Z., Ma, T., & Jin, W. (2026). "Upcycling spent lithium iron phosphate battery into Fe-CN₃P single atom catalyst for environmental remediation". *Angewandte Chemie International Edition*. DOI: 10.1002/anie.2788872.
- [5] Wang, C., Wang, L., Fu, Z., Yin, F., Zheng, F., Wang, J., Fang, F., Liu, Q., & Kong, X. (2025). "Recycling spent LFP batteries: From resource recovery to high-value functional materials". *Molecules*, **30**, 3557. DOI: 10.3390/molecules30173557.
- [6] Tian, X., Cui, H., Zhang, X., Fan, W., Xie, Z., Feng, C., Jin, H., & Liu, Y. (2026). "From waste to catalyst: Recycling spent lithium-ion battery materials for water electrolysis and fuel cells". *Future Battery*, **10**, 100171. DOI: 10.1016/j.fub.2026.100171.
- [7] Zheng, B., Deng, Z., Luo, Z., Mao, S., Ouyang, M., Han, X., Wang, H., Li, Y., Sun, Y., Wang, D., Yuan, Y., He, L., Yang, Z., & Zhu, Y. (2025). "A comprehensive review of lithium-ion battery modelling research and prospects". *Applied Energy*, **401**, 126688. DOI: 10.1016/j.apenergy.2025.126688.
- [8] Wang, P., Guo, Y., Guan, J., & Wang, Z. (2023). "Applications of spent lithium battery electrode materials in catalytic decontamination: A review". *Catalysts*, **13**, 189. DOI: 10.3390/catal13010189.
- [9] Zanoletti, A., Carena, E., Ferrara, C., & Bontempi, E. (2024). "A review of lithium-ion battery recycling: Technologies, sustainability, and open issues". *Batteries*, **10**, 38. DOI: 10.3390/batteries10010038.
- [10] Tao, Z., Zhou, H., Cao, Y., Huang, X., Wang, W., & Zhang, H. (2026). "A review of thermal runaway gases and detection methods for lithium-ion batteries". *Thermal Science and Engineering Progress*, **69**, 104427. DOI: 10.1016/j.tsep.2025.104427.

- [11] Nahrowi, R., Aryani, M.W., Manaf, A., Handoko, A.S., Prasetyo, E., Suharto, S., Susanti, D., Amrulloh, H., & Bahfie, F. (2026). "The recovery of critical elements from waste lithium-ion batteries using deep eutectic solvent: A review". *Hydrometallurgy*, **242**, 106689. DOI: 10.1016/j.hydromet.2026.106689.
- [12] Ali, A., Afrin, S., Asif, A.H., Arafat, Y., & Azhar, M.R. (2025). "A comprehensive review on the recovery of lithium from lithium-ion batteries and spodumene". *Journal of Environmental Management*, **391**, 126512. DOI: 10.1016/j.jenvman.2025.126512.
- [13] Jose, S.A., Stoll, J.L., Smith, T., Jackson, C., Dieleman, T., Leath, E., Eastwood, N., & Menezes, P.L. (2024). "Critical review of lithium recovery methods: Advancements, challenges, and future directions". *Processes*, **12**, 2203. DOI: 10.3390/pr12102203.
- [14] Liu, Y., Zhang, X., Ma, W., Duan, H., Zhao, Q., & Liang, Z. (2024). "A comprehensive review of the recovery of spent lithium-ion batteries with molten salt method". *Journal of Energy Storage*, **99**, 113407. DOI: 10.1016/j.est.2024.113407.
- [15] Xu, L., Liang, L., Chen, C., Chen, Z.-H., Lv, Z.-B., Fu, M.-L., & Yuan, B. (2023). "Upcycling spent lithium battery cathodes into efficient PMS catalysts for organic contaminants degradation". *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **11**, 111605. DOI: 10.1016/j.jece.2023.111605.
- [16] Lv, X., Deng, F., Liu, H., Zhang, Y., Liu, Q., Liang, Y., Kong, D., Ahmad, M., & Chen, X. (2024). "Recycling different crystal forms of MnO₂ from spent Li-ion batteries cathodes for SDZ degradation". *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **12**, 111622. DOI: 10.1016/j.jece.2023.111622.
- [17] Wu, N., Li, M., Zhang, Q., Xue, G., Wang, Y., & Gong, C. (2024). "Recovery and reuse of spent lithium-ion batteries as catalysts for low-temperature NH₃-SCR". *Chemical Engineering Journal*, **481**, 148564. DOI: 10.1016/j.cej.2024.148564.
- [18] Zhang, Y., Wang, Y., Zhang, H., Li, Y., Zhang, Z., & Zhang, W. (2020). "Recycling spent lithium-ion battery as adsorbents to remove aqueous heavy metals". *Resources, Conservation and Recycling*, **156**, 104688. DOI: 10.1016/j.resconrec.2020.104688.
- [19] Premathilake, D.S., Colombi, F., Botelho Junior, A.B., Soares Tenório, J.A., Romano Espinosa, D.C., & Vaccari, M. (2024). "Recycling lithium-ion battery graphite: Synthesis of adsorbent materials". *Results in Engineering*, **22**, 102232. DOI: 10.1016/j.rineng.2024.102232.
- [20] Tang, Y., Yu, Y., Cheng, J., Cheng, S., Cheng, Q., Zhu, J., Chen, X., & Wang, X. (2025). "Recovery of cathode from spent lithium-ion batteries for PMS activation". *Journal of Water Process Engineering*, **76**, 108261. DOI: 10.1016/j.jwpe.2025.108261.
- [21] Lou, L., Lv, S., He, M., Ding, C., Xu, J., Lv, X., & Liu, W. (2026). "From failure to function: Recycling spent lithium-ion batteries for catalytic applications". *Chemical Communications*, **62**, 1335–1353. DOI: 10.1039/D5CC06411B.
- [22] Gong, M., Ren, X., Chen, J., Mo, R., & Yang, S. (2025). "Preparing multi-metal spinel oxides for PMS activation from spent lithium-ion batteries". *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **13**, 115076. DOI: 10.1016/j.jece.2024.115076.
- [23] Moura, M.N., Barrada, R.V., Almeida, J.R., Moreira, T.F.M., Schettino, M.A., Freitas, J.C.C., Ferreira, S.A.D., Lelis, M.F.F., & Freitas, M.B.J.G. (2017). "Synthesis and photocatalytic properties of CoFe₂O₄ recycled from spent LIBs". *Chemosphere*, **182**, 339–347. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2017.05.036.
- [24] Yue, X.-H., & Zhang, F.-S. (2022). "Recycling spent LiFePO₄ battery for fabricating visible-light photocatalyst". *Chemical Engineering Journal*, **450**, 138388. DOI: 10.1016/j.cej.2022.138388.
- [25] He, M., Liu, W., Gao, M., Zhang, P., Jin, X., Wu, H., & Liu, Q. (2023). "A green strategy for selective recovery of lithium and CoFe₂O₄ catalyst synthesis". *Green Chemistry*, **25**, 9969–9980. DOI: 10.1039/D3GC02987E.
- [26] Leal, V.M., Magnago, L.B., dos Santos, G.F.S., Ferreira, R.Q., Ferreira, S.A.D., Lelis, M.F.F., & Freitas, M.B.J.G. (2023). "Efficient recycling of Co₃O₄ from spent lithium-ion batteries". *Sustainable Materials and Technologies*, **37**, e00688. DOI: 10.1016/j.susmat.2023.e00688.