



聚酯塑料单体的电催化升级回收

顾柏宁, 孟娇龙, 姜雪峰*

华东师范大学海南研究院, 三亚 572025

*通讯作者, E-mail: xfjiang@chem.ecnu.edu.cn

收稿日期: 2025-06-17; 接受日期: 2025-07-31; 网络版发表日期: 2025-09-29

国家自然科学基金(编号: 22125103)和上海市基础研究领域项目(编号: 22JC1401000)资助

摘要 塑料污染问题日益严峻, 聚酯类塑料作为应用最广泛的高性能塑料之一, 其高效回收与高值利用是实现塑料循环经济的关键. 本文系统综述了电催化技术用于聚酯类塑料单体升级回收的最新研究进展. 聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)经碱性水解解聚为对苯二甲酸(TPA)和乙二醇(EG)后, 各种电化学催化剂在阳极通过氧化将EG高选择性转化为高附加值的C₁和C₂化学品, 并可与多种阴极反应如析氢反应(HER)、硝酸盐还原反应(NO₃RR)、二氧化碳还原反应(CO₂RR)高效耦合, 同步产出氢气、氨气或甲酸等产物, 实现废弃PET与废水/废气的协同资源化. 电催化技术凭借反应条件温和、转化路径可控、易于耦合可再生资源及产出高值化学品等优势, 为废弃PET塑料的利用与其解聚后单体EG的升级回收提供了极具前景的绿色解决方案.

关键词 塑料, 聚酯, 升级回收, 电催化

1 引言

20世纪以来, 塑料已深入人类日常生活与工业生产各个领域, 成为不可或缺的基础材料. 全球迄今已生产超过80亿吨塑料^[1]. 然而, 随着塑料产量的持续攀升, 其引发的环境问题日益严峻. 预测表明, 至2040年, 全球遗弃至自然环境中的塑料垃圾将达到年均约7.1亿吨^[2]. 而目前已生产的塑料中约79%被废弃, 并最终堆积在垃圾填埋场或进入生态系统; 这些塑料可能留存数百年, 对环境和生物多样性构成严重威胁. 此外, 约12%的废塑料通过焚烧处理, 该过程不仅资源浪费, 还会导致高碳排放及有毒气体的释放, 进而对环境造成严重负面影响^[1,3]. 因此, 塑料循环回收对于资源化利用、减少碳排放至关重要, 只有做好这项工作, 才能

契合当前的循环经济需求.

聚酯, 是一类由多元醇与多元酸通过缩聚反应制得的聚合物总称, 包括聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)、聚对苯二甲酸丁二醇酯(PBT)、聚芳酯等线型热塑性树脂, 属于性能优异、用途广泛的工程塑料. 其中, PET是消费量最大的聚酯品种之一, 年产量超过7000万吨^[4]. 得益于其优异的拉伸强度和阻隔性能, PET被广泛应用于包装和纺织领域(图1a). 然而, 其分子结构中由苯环构成的刚性单元、高度规整性以及强疏水性, 导致其自然降解周期长达百年. 目前, 大部分废弃PET塑料在使用后被填埋或丢弃到水生环境中, 亦或通过焚烧处理, 对环境和生态构成威胁, 只有不到20%的PET通过物理机械方法实现回收利用, 然而这种回收通常是降级回收(图1b)^[5]. 化学回收技术提供了一种

引用格式: Gu B, Meng J, Jiang X. Electro-catalyzed upcycling of monomers from polyester plastics. *Sci Sin Chim*, 2025, 55, doi: 10.1360/SSC-2025-0177

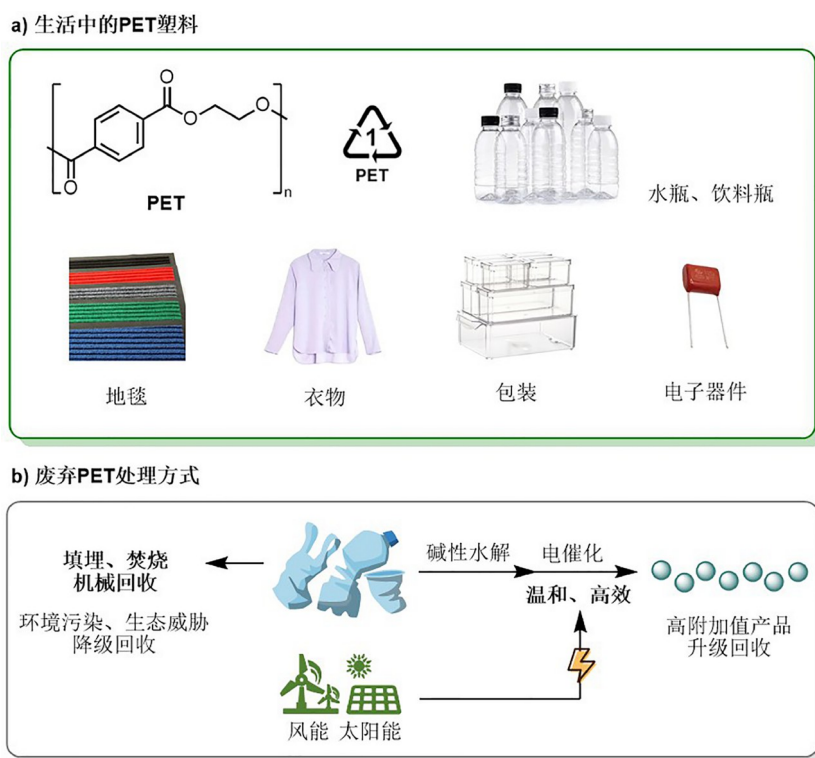


图 1 (网络版彩图) (a) 生活中的PET塑料; (b) 废弃PET的处理方式

Figure 1 (Color online) (a) PET plastics in our life; (b) treatments for waste PET plastics.

将塑料升级回收为高附加值化学品的途径。过去数十年间, 研究者探索了众多PET的化学回收方法, 如热解、水解、醇解和氨解等^[6,7]。其中, 碱性水解因能在温和条件下将PET完全解聚为单体对苯二甲酸(TPA)和乙二醇(EG), 被视为最具前景的方法之一。然而, 由于EG沸点(197 °C)较高且水溶性好, 其分离回收依然面临挑战^[8]。

近年来, 电催化技术快速发展。该技术通过施加外加电势引入电子, 以实现许多传统热条件下难以进行的化学反应。此外, 电作为一种清洁能源, 可由太阳能、风能及水能等可再生能源提供, 并且在电化学过程中直接提供电子或获取电子, 无需额外化学计量的氧化剂和还原剂^[9~11]。电化学方法包含阳极氧化和阴极还原两个半反应, 通过各种催化剂的开发和反应体系的设计, 电化学在能源燃料、有机合成等领域有着广泛的应用^[12,13]。在碱性水解将PET解聚为单体TPA和EG后, 电催化技术为将所得EG转化至高附加值化学品, 提供了一条可持续且极具吸引力的策略(图1b)。EG的电化学升级回收主要依赖于阳极发生的乙二醇

氧化反应(EGOR)^[14]。在EGOR过程中, 存在两条主要转化路径: (1) 发生C—C键断裂生成甲酸(FA, 约0.85美元/千克)等C₁产物; (2) 保持C—C键生成乙醇酸(GA, 约20美元/千克)等C₂产物。本文将分别针对这两类产物的电化学生成策略与研究进展, 聚焦电催化技术在废弃PET水解物升级回收领域的最新研究进展, 为推动废弃塑料的资源化与高值化循环利用提供理论依据和技术参考。

2 电催化PET至C₁产物的升级回收

PET电化学升级回收的主要C₁产物是甲酸FA。FA因其安全无毒、易储存, 以及在制药和食品工业中的重要用途而备受关注。通过精准调控特定中间体的形成和选择性断裂C—C键, 可以有效控制反应路径, 从而提升FA的合成效率。其中, 关键中间体羟基自由基物种(OH·)在促进EG的C—C键断裂及后续级联脱氢过程起着至关重要的作用, 因此必须有效地吸附在催化剂表面。近年来, 通过开发新型催化剂、优化反应条件,

多项研究已成功应用于PET电化学高效高选择性地转化生成FA. 与此同时, 阴极可同步进行多种还原反应, 例如通过析氢反应(HER)生产绿氢、硝酸盐还原反应(NO_3RR)、二氧化碳还原反应(CO_2RR)等.

2.1 析氢反应

氢气(H_2), 因其零碳排和高热值, 被视为最清洁的能源之一, 广泛应用于金属冶炼、氨合成及燃料电池等领域^[15]. 相较于传统的煤炭气化和蒸汽甲烷重整工艺, 电化学分解水技术凭借可持续的原料来源、高纯氢产物以及可再生电力驱动等优势, 被认为是最具前景的制氢途径^[16]. 该过程包含两个基本反应: 析氧反应(OER)和析氢反应. 其中, OER涉及复杂的四电子/四质子转移过程, 需要更高的过电位驱动氧气生成^[17]. 研究者提出利用PET塑料衍生的EGOR过程替代传统的OER过程. 该策略不仅能实现废弃塑料的资源化与能源化回收, 还能同步生产具有高附加值的阳极和阴极产物(图2).

2021年, Duan团队^[18]报道了一种电化学升级回收PET塑料水解物的创新策略. 通过碱性水解将PET分解为TPA和EG, 进而使用开发的镍改性的磷化钴($\text{CoNi}_{0.25}\text{P}$)作为双功能电催化剂, 在反应中原位形成低结晶金属氧(氢氧)化物结构. 在膜电极组件反应器中, 催化剂在高电流密度($500 \text{ mA}/\text{cm}^2$)下选择性氧化EG为甲酸盐(法拉第效率和反应选择性均大于80%), 同时阴极产生氢气. 反应后的电解液经甲酸酸化析出

高纯度TPA, 滤液浓缩结晶制得高值化学品二甲酸钾盐(KDF).

光电催化(PEC)技术利用太阳能驱动, 通过半导体光吸收材料产生的光生电荷载流子驱动氧化还原反应的发生, 具有可持续和环境友好等独特优势. 该技术被广泛应用于水分解析氢^[19], 并延伸应用到生物质废物的回收等领域^[19-21], 为PET塑料废弃物的资源回收提供了广阔的应用前景. 同年, Lin等^[22]通过简便的电沉积方法合成镍磷合金纳米球(nanoNi-P), 展示了其在PET塑料光电催化回收中的高效应用. nanoNi-P 在碱性条件下表现出优异的HER活性. 其与碳纳米管(CNT)复合($\text{CNT}/\text{nanoNi-P}$)后, 仅需约180 mV过电位即可驱动 $-100 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 的HER电流. 经循环伏安活化后的 $\text{nanoNi-P}_{(\text{CV})}$ 能够以近100%的法拉第效率高选择性地将EG升级回收为甲酸盐. 基于此, 作者构建了 $\text{nanoNi-P}_{(\text{CV})}$ 修饰的 TiO_2 纳米棒光阳极和 $\text{CNT}/\text{nanoNi-P}$ 阴极的光电协同体系, 在环境条件下实现了PET塑料衍生的EG升级回收与高效产氢(法拉第效率分别为57.1%和76.8%).

随后, Chen团队^[23]将PET塑料水解为对苯二甲酸盐和EG后, 利用钯修饰的泡沫镍(Pd/NF)作为电催化剂, 通过电化学重整策略将EG升级转化为高附加值化学品碳酸盐, 并同时联产氢气燃料. 该体系在0.7 V (vs. RHE)下表现出优异的催化活性(电流密度达 $400 \text{ mA}/\text{cm}^2$), 对产物碳酸盐具有高选择性(95%)和高法拉第效率(93%), PET转化率达100%, 对苯二甲酸盐产率达99%.

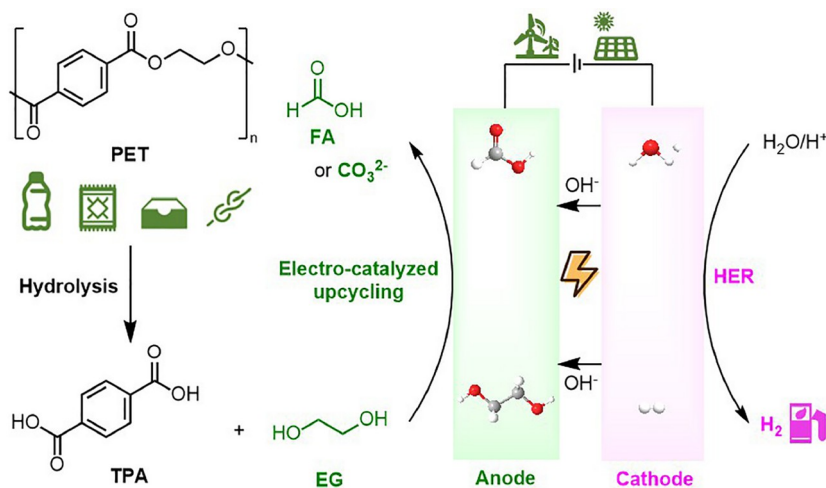


图2 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG生成 C_1 化学品与氢燃料

Figure 2 (Color online) Electro-catalyzed upcycling of PET-derived EG to produce C_1 chemicals and H_2 fuel.

优化制备的催化剂Pd/NF-10因其网状结构呈现更多活性位点从而达到最佳的催化性能. 研究还构建了双电极电解池(Pd/NF阳极, NF阴极), 以真实PET瓶为原料得到成功验证, 在1.01 V槽电压下实现高效转化(碳酸盐选择性91%, 法拉第效率91%, 对苯二甲酸盐产率96%, 阴极98%法拉第效率)及氢气产出.

2022年, Zhao团队^[24]利用原位生长的氧化铜纳米线(CuO NWs)催化剂, 在碱性条件下电催化氧化PET水解液中的EG, 高选择性地将其转化为甲酸盐(选择性达86.5%, 法拉第效率达88%), 同时在阴极产生氢气. 实验和理论计算表明, EG在CuO表面通过乙二醛中间体发生C-C键断裂生成甲酸是主要的反应路径. 同年, 该团队^[25]再次报道了利用Fe₂O₃/Ni(OH)_x复合光阳极实现PET塑料水解物高效光电协同转化的创新策略. 研究通过调控光生空穴的氧化能力, 实现了PET水解产物的选择性氧化, 以接近100%的法拉第效率将EG转化为高附加值甲酸/甲酸盐, 并同时阴极产氢. Ni(OH)_x助催化剂通过Ni²⁺/Ni³⁺氧化还原电对介导的机制, 既提供丰富活性位点, 又精准调节空穴氧化强度, 避免了底物的过度氧化, 显著提升了反应选择性与效率.

2023年, Chen团队^[26]利用双功能镍钴氮化物(Co-Ni₃N)纳米片催化剂, 在碱性条件下将PET塑料水解为TPA和EG, 并通过电催化实现EG升级回收与节能制氢. 该催化剂负载于碳布(CC)上, 通过钴掺杂显著提升了镍的氧化还原行为, 使EGOR能在超低电位1.15 V (vs. RHE)下进行, 突破了传统镍基催化剂的高电位限制. 在双电极系统中, 以Co-Ni₃N/CC同时作为阳极和阴极, 仅需1.46 V槽电压即可达到50 mA/cm²电流密度, 较传统水电解降低370 mV能耗, 且甲酸法拉第效率达92%.

2024年, Li团队^[27]通过水热-磷化两步法制备了超薄多孔铁掺杂磷化镍(Fe-Ni₂P/NF)纳米片催化剂, 用于电化学升级回收PET塑料水解液中的EG并同步产氢. 该催化剂多孔纳米片结构提供的丰富活性位点、高电化学表面积以及铁掺杂优化的电子结构, 使其在碱性电解质中表现出优异的HER和EGOR双功能活性. Fe-Ni₂P/NF||Fe-Ni₂P/NF的双电极电解槽仅需1.39 V的低电解电压即可驱动10 mA/cm²的电流密度, 显著低于传统水分解电压(1.55 V).

2025年, Huang团队^[28]开发了一种具有非晶/晶相

界面的CoNiOOH-Ni₃S₂/NF催化剂, 用于高效电化学升级回收PET水解液中的EG. 该催化剂晶相与非晶相之间的界面相互作用可以调节电子结构, 使d带中心向上移动, 显著增强了关键中间体OH⁻和EG的吸附能力, 从而促进C-C键断裂和脱氢过程. 该催化剂在1.45 V (vs. RHE)下实现了500 mA/cm²的工业级电流密度, 在1.70 V时FA法拉第效率达96.6%, 效率达3.14 mmol h⁻¹ cm⁻², 并同时实现节能的析氢反应.

同年, Huang团队^[29]利用钴钒层状双氢氧化物(CoV-LDH)作为阳极和CoV-LDH经磷化衍生的VP-CoP作为阴极的电化学策略, 实现PET塑料衍生物EG的升级回收与高效制氢. 该策略通过碱性水解将PET降解为TPA和EG, 其中CoV-LDH在1.47 V下达到350 mA/cm²的工业级电流密度, 将EG选择性氧化为FA, 选择性达86.6%; 同时, VP-CoP异质结阴极在HER中表现出优异性能和超长稳定性. 通过构建双电极耦合系统(CoV-LDH||VP-CoP), 在1.63 V下实现50 mA/cm²的电流密度, 能耗显著低于传统水分解体系.

Qian团队^[30]随后报道了一种通过简单的阴极电沉积法制备高效稳定的金属镍双功能电催化剂, 用于同时实现PET塑料水解产物EG的电催化升级回收和制氢. 该催化剂在泡沫镍基底上沉积, 在阳极可将EG选择性氧化为FA, 法拉第效率高达90%, 并在100 mA/cm²电流密度下仅需1.4 V (vs. RHE); 在阴极则高效催化HER, 过电位仅为250 mV (100 mA/cm²), 法拉第效率接近100%. 机理研究表明, 反应中金属镍发生表面重构形成非晶态羟基氧化镍(NiOOH)作为EG氧化的活性位点.

2.2 硝酸盐还原反应

随着全球工业生产的持续发展, 大量化石燃料燃烧、工业废水不当排放及过度施肥的氮氧化物(NO_x)持续释放, 加剧了地表水和地下水中的硝酸盐污染^[31]. 不仅如此, 硝酸盐(NO₃⁻)广泛存在于居家、工业和农业废水中^[32]. 这些硝酸盐污染物会破坏生态系统中氮循环平衡, 还可能在自然条件下转化为致癌物亚硝酸盐威胁人类健康. 电化学NO₃RR能够在常温常压下, 高效且高选择性地废水中的硝酸盐还原为氨(NH₃)^[33], 而氨作为重要的化学原料, 广泛应用于肥料、药品、炸药及无碳能源载体^[34,35]. 通过将EGOR与NO₃RR耦合, 多项研究构建了硝酸盐废水/PET水解

产物电催化共转化系统, 实现硝酸盐废水与PET塑料废弃物的同步升级回收(图3).

2023年, Xu团队^[36]利用超低钌含量的钴基金属有机框架(CoRu-MOF)作为双功能预催化剂, 构建了硝酸盐废水与PET水解物共电解的新策略. 该预催化剂在电催化环境下, 阴极原位重构为Ru-Co(OH)₂, 阳极原位重构为Ru-CoOOH, 分别作为NO₃RR和PET水解物氧化的高效活性催化剂. 在双电极系统中仅需1.53 V的低槽电压即可实现50 mA/cm²的电流密度, 同步在阴极高效还原硝酸盐制氨(效率0.244 mmol h⁻¹ cm⁻², 法拉第效率94.3%, 选择性98.6%), 并在阳极将PET水解物中的EG氧化为高附加值甲酸盐(法拉第效率96.53%).

2025年, Qin团队^[37]开发了一种钌掺杂的钴氧化物(Ru-Co₃O₄)双功能电催化剂, 通过电化学-酶耦合技术实现PET废弃物高效转化为FA, 同时实现NO₃⁻还原生产NH₃. 该催化剂中原子级分散的Ru位点与Co中心协同增强OH⁻和EG的吸附与活化, 在碱性条件下实现99%的FA选择性(效率11.2 mmol h⁻¹ cm⁻²)和98.5%的NH₃法拉第效率(效率3.54 mmol h⁻¹ cm⁻²), 性能显著优于未掺杂Co₃O₄. 研究结合酶降解PET与电催化, 构建了膜电极组件(MEA)反应器, 利用太阳能驱动实现PET衍生的EG选择性氧化为甲酸, 同时阴极将NO₃⁻(如核废水来源)还原为NH₃.

随后, Chen团队^[38]利用自发电子调控策略合成钴

掺杂镍基电催化剂(Ni_{0.3}Co_{0.7}/IF), 用于协同升级回收废弃PET塑料物水解液中的EG和硝酸盐废水. 该催化剂通过自发原电池置换法(GRR)在泡沫铁(IF)基底上制备, 钴掺杂诱导镍位点发生电子重分布, 显著加速了活性物种Ni³⁺的形成, 从而高效催化EG氧化. 该阳极反应在仅需1.28 V (vs. RHE)的低电位下即可实现100 mA/cm²的电流密度, 并以高达90%的法拉第效率将EG选择性氧化为FA, 有效抑制了矿化副反应和竞争性OER. 同时, 利用GRR制备的铜基阴极(Cu/IF)可将硝酸盐高效还原为NH₃, 法拉第效率达91%. 进一步构建的MEA电解系统耦合PET水解液氧化与NO₃RR, 在仅1.54 V的低槽电压下实现了100 mA/cm²的电流密度, EGOR、NO₃RR的法拉第效率分别约为90%和84%, 且展现出优异的稳定性.

2.3 二氧化碳还原反应

工业化学品的生产通常依赖于石油化工和精细化工行业, 这些行业不仅加速了化石燃料的消耗, 还产生了大量碳排放和有毒气体, 导致环境污染并加剧全球变暖, 引发了一系列环境问题^[39]. 而二氧化碳还原反应作为一种重要的阴极反应, 已被广泛研究用于生产可储存燃料和有价值的化学原料^[40]. 将源自PET塑料水解产物EG的阳极氧化反应与阴极CO₂RR相结合, 在单一电解反应系统中同时于阴阳两极生成FA产物. 这一方法能够同时实现两种含碳废弃资源的升级回收,

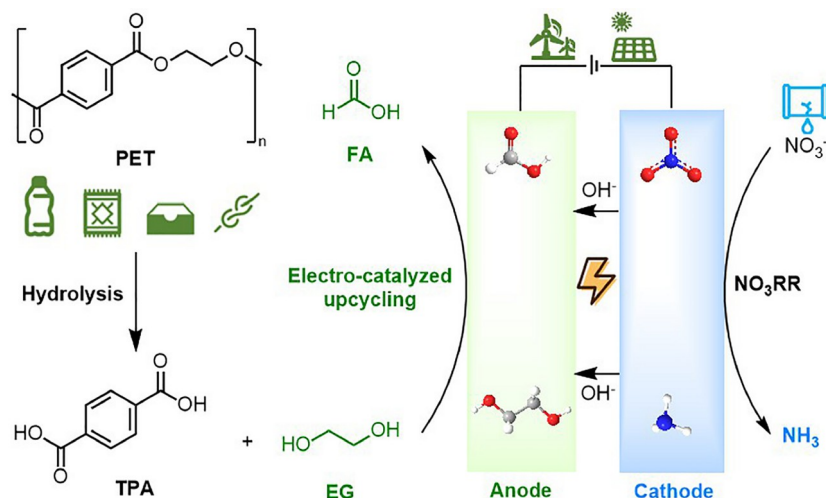


图3 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG与硝酸盐废物为C₁化学品与氨气

Figure 3 (Color online) Electrocatalytic upcycling of PET-derived EG and nitrate wastes to C₁ chemicals and NH₃.

展现出巨大的应用潜力(图4)。

2022年, Ma团队^[41]通过电催化将PET塑料废弃物和CO₂同时高效转化为FA的方法, 开发的尖晶石结构镍钴氧化物(NiCo₂O₄)作为阳极催化剂, 用于电催化氧化PET水解液, 实现了约90%的FA法拉第效率。同时, 采用二氧化锡(SnO₂)纳米片作为阴极催化剂, 用于电催化还原CO₂生成FA。通过耦合这两个半反应(阳极PET水解物氧化和阴极CO₂还原), 构建的双电极电解池仅需1.55 V的低槽电压即可驱动反应, 比传统水氧化反应节能约200 mV。在1.90 V槽电压下, 系统阴阳两极总FA法拉第效率高达155% (阳极约85%, 阴极约70%)。

2025年, Wang团队^[42]通过水热合成-硫化-退火结合电化学活化制备了具有超低配位Ni物种的NiCoS_x/NF催化剂。该催化剂显著加速了PET水解液电氧化制甲酸盐过程中质子脱嵌和高活性高价镍物种的形成, 以及中间体OH⁻的生成。NiCoS_x/NF在反应中实现了优异的性能: 在约600 mA/cm²电流密度下甲酸盐效率达7.4 mmol h⁻¹ cm⁻², 法拉第效率大于93%, 并在2 A电流下稳定运行100 h (法拉第效率约90%)。进一步构建的配对电解系统, 将NiCoS_x/NF阳极(PET水解液电氧化制甲酸盐)与富含氧空位的Vo-BiSnO阴极(CO₂还原制甲酸盐)耦合, 在一个双电极流通池中实现了阴阳两极同步高效产甲酸盐, 在500 mA/cm²下甲酸盐总法拉第效率达172.7%, 并在100 mA/cm²下稳定运行90 h。

3 电催化PET至C₂产物的升级回收

相较于完全氧化, 将PET衍生的EG选择性氧化为特定高价值C₂产物更具吸引力, 且在技术与经济上均更可行。例如, GA作为一种部分氧化的C₂化合物, 是重要的化学品, 尤其广泛用作可生物降解塑料聚乙醇酸(PGA)的单体^[43]。自2023年以来, 研究聚焦于利用电催化在阳极实现EG向高附加值GA的选择性氧化, 并在阴极同步耦合HER、NO₃RR或CO₂RR等过程。

3.1 析氢反应

近年来, 多种新型电催化体系成功将废弃PET衍生的EG转化为高价值C₂化学品, 同时通过阴极HER产氢。这种集成电池系统有望降低成本、提高电子经济性, 并适用于多种应用场景(图5)。

2023年, Chen团队^[44]报道了一种在泡沫镍上原位生长的Pd-Ni(OH)₂协同催化剂Pd-Ni(OH)₂/NF, 用于将PET衍生的EG高选择性地电氧化为GA, 同时耦合产氢。该催化剂在工业级电流密度600 mA/cm², 1.15 V (vs. RHE)下表现出优异的性能, 法拉第效率大于85%, GA选择性大于90%, 并能稳定运行超过200 h。随后, 通过构建的双电极流动电解槽, 成功将100 g PET原料转化为83.3 g TPA、23.2 g GA和20.6 L 氢气(法拉第效率98%), 电池电压仅1.2 V, 制氢能耗仅为常规水分解的1/2。

同年, Duan团队^[45]利用镍羟基化合物负载金催化

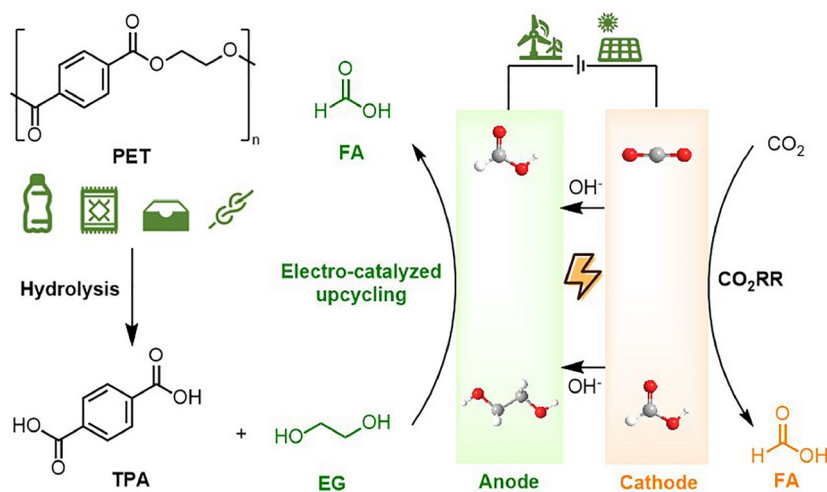


图4 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG与CO₂还原制C₁化学品

Figure 4 (Color online) Electrocatalytic upcycling of PET-derived EG and reduction of CO₂ to produce C₁ chemicals.

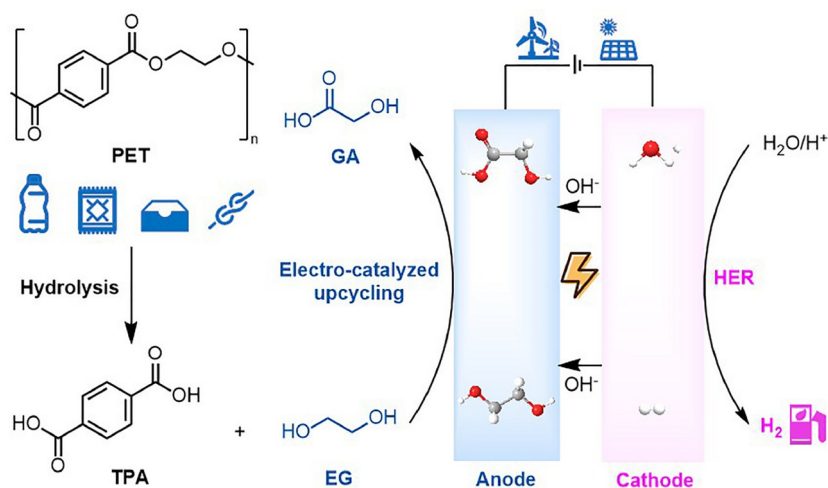


图5 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG生成GA与氢燃料

Figure 5 (Color online) Electrocatalyzed upcycling of PET-derived EG to produce GA and H₂ fuel.

剂Au/Ni(OH)₂，高效电催化升级回收PET塑料衍生的EG，将其转化为GA，并耦合阴极产氢。该催化剂通过界面协同作用(金与醇盐的 σ 键结合及镍羟基化合物与相邻羟基的氢键作用)显著富集反应物分子，在1.15 V (vs. RHE)的中等电位下实现了326.2 mA/cm²的高电流密度和91%的GA高选择性。研究进一步设计无膜流动电解槽，在实际废PET瓶转化中获得13.7 g GA和9.4 L 氢气，且制氢能耗低于水电解技术。值得一提的是，该策略同样适用于将生物柴油的副产物甘油选择性氧化为聚乳酸(PLA)的单体乳酸(LA)。

随后，Qiu团队^[46]开发了一种新型催化剂Pt/ γ -NiOOH/NF (泡沫镍负载的铂纳米颗粒与 γ -NiOOH纳米片复合物)，用于高效电催化升级回收废弃PET塑料衍生的EG。该催化剂在0.55 V的低电压下，能将PET水解液中的EG选择性氧化为高附加值的乙醇酸盐，法拉第效率和选择性均超过90%，同时阴极析氢，实现乙醇酸盐和绿氢的联产。

Chen团队^[47]利用一种无偏析的Pd₁Ag₁合金纳米颗粒催化剂，通过电氧化将废弃PET水解产物EG高效转化为高附加值C₂化合物乙醇酸(盐)。该催化剂在0.75 V (vs. RHE)下实现了97%的乙醇酸选择性，并在流动电解池中稳定运行超过500 h。真实废PET瓶水解液在双电极流动池中电解，GA选择性达91%，阴极联产高纯氢气(法拉第效率>99%)。

2024年，Chen团队^[48]报道了一种利用Pt-Ni(OH)₂/NF

复合电极将PET塑料水解液中的EG升级回收为高价值C₂化学品GA的创新电化学策略。该电极在碱性条件下实现了高效的EGOR反应，仅需0.69 V (vs. RHE) 即可达到100 mA/cm²的电流密度，GA的法拉第效率高达93%。研究进一步设计了集成膜电极流动池系统：白天耦合HER，利用太阳能将PET水解液中的EG转化为GA并同步产氢；夜间耦合氧还原反应(ORR)，构建直接EG燃料电池发电，实现了PET废弃物的全天候资源化和能源化高效利用。

同年，Chen团队^[49]开发了Pd-CuCo₂O₄协同催化剂，利用PET水解产生的EG替代传统OER，在碱性海水环境下实现了高效HER和EGOR。该系统仅需1.15 V (vs. RHE)超低电压即可达到600 mA/cm²的工业级电流密度，制氢能耗较传统海水电解显著降低，并能在1.6 A 电流下稳定运行超过100 h，避免了海水电解的高能耗、氯腐蚀难题。

近期，Chen团队^[50]再次报道了一种将PET塑料衍生的EG高效升级回收为PGA塑料的创新策略。研究开发了基于Pd-CoCr₂O₄催化剂的界面酸碱微环境调控技术，在流动电解系统中实现了EG的高效氧化，仅需1.25 V电压即可达到约290 mA/cm²的电流密度。该技术通过强化电极表面OH⁻富集和OH⁻活性物种生成，解决了高电流密度下局部碱度不足的瓶颈，同时结合无需中和的绿色分离工艺获得纯度99%的GA。中试规模(20 kg PET, 324 cm² × 5电堆)验证了其工业可行性：

在280 mA/cm²电流下GA选择性达93%，生产效率0.32 kg/h，聚合后的PGA收率达87%，且全流程碳排放显著低于传统回收方法，为大规模、工业级的塑料污染治理和可生物降解塑料规模化生产提供了环保且经济的解决方案。

2025年，Liu团队^[51]利用层状介孔钯铜催化剂(LM-PdCu)结合脉冲电催化技术，在常温常压下高效升级回收PET塑料衍生的EG，生产高附加值GA，并在阴极析氢。该研究合成了具有独特层状堆叠结构的LM-PdCu催化剂，其介孔通道加速了反应物/产物的传质。与传统恒电位模式相比，脉冲电催化模式可动态清除催化剂表面的毒化中间体和产物，从而显著提升性能：在宽电位窗口内实现>92%的GA法拉第效率、0.475 mmol h⁻¹ cm⁻²的产率以及超过20次循环的稳定性。该方法成功应用于真实废塑料瓶的规模化转化，GA产率达64%，为废塑料资源化提供了高效、可持续的新途径。

3.2 硝酸盐还原反应

通过结合硝酸盐废水处理与PET塑料单体EG的升级回收，构建一个集成耦合电解系统，将低价值废物转化为高附加值化学品GA和NH₃同样是可行的(图6)。

2023年，Xu团队^[52]报道了一种通过耦合硝酸盐废水还原与废弃PET塑料水解液中EG氧化，实现电化学生产NH₃和GA的创新策略。在泡沫钴上原位生长的低

结晶度CoOOH (LC-CoOOH/CF)作为阴极催化剂，其丰富的非晶区域增强了硝酸盐吸附并提供了大量活性位点，在-0.25 V (vs. RHE)下实现了约97%的NH₃法拉第效率和0.246 mmol h⁻¹ cm⁻²的NH₃生产效率；在泡沫镍上合成的钯纳米刺(Pd NTs/NF)作为阳极催化剂，其独特的高曲率尖端结构引发尖端效应，促进OH⁻富集，从而在0.774 V (vs. RHE)下高效高选择性(法拉第效率约88%)地将EG氧化为GA，而非甲酸盐。将这两个电极集成到双电极共电解体系中，仅需0.5 V的起始电压即可同时转化硝酸盐污染物和EG，分别生成高附加值的NH₃和GA，能耗显著低于传统硝酸盐电解工艺。

2025年，Chen团队^[53]报道了一种自支撑的CuPd合金纳米片双功能电催化剂(CuPd/NF)，用于同时实现PET塑料水解液中EG的升级回收和含硝酸盐废水的资源化处理。该催化剂能高效催化PET碱性水解产物EG在阳极选择性氧化为高附加值GA(法拉第效率约93%)，并在阴极催化硝酸盐还原为铵盐(NH₄⁺，法拉第效率约92%)。研究进一步设计了一种创新的切换式电解架构：白天耦合EGOR与NO₃RR，同步生产GA和NH₄⁺；夜间则耦合EGOR与ORR反应，构成直接EG燃料电池发电。

Qiu团队^[54]在此之后报道了一种配对电化体系，利用Cu/Co合金阴极和Pd/Cu合金阳极，同时将含硝酸盐废水还原为NH₃，并将PET塑料水解产物EG氧化为乙醇酸GA。该系统通过Cu/Co阴极中Cu位点高效催化NO₃⁻还原为NO₂⁻、Co位点促进水解提供活性氢，协

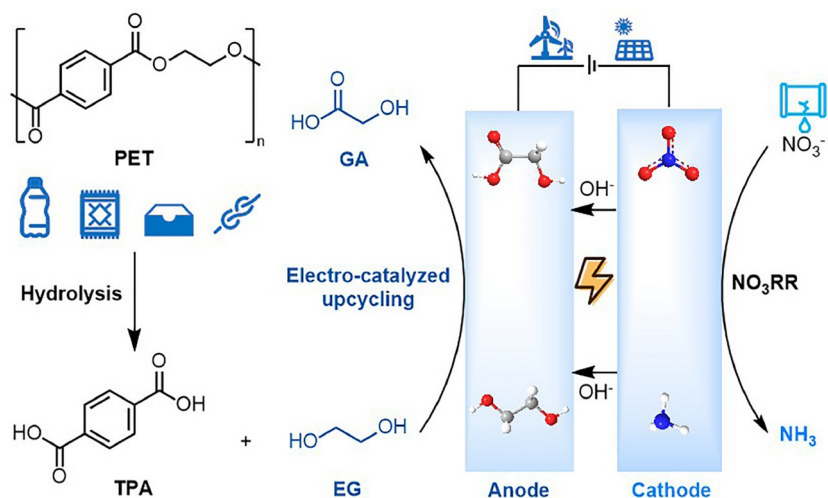


图6 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG与硝酸盐废物为GA和氨

Figure 6 (Color online) Electrocatalytic upcycling of PET-derived EG and nitrate wastes to GA and NH₃.

同实现高选择性 NH_3 合成(法拉第效率98%, 效率 $3.26 \text{ mmol h}^{-1} \text{ cm}^{-2}$); Pd/Cu阳极则高效催化EG氧化生成GA (法拉第效率99%, 效率 $3.53 \text{ mmol h}^{-1} \text{ cm}^{-2}$). 在 250 mA/cm^2 电流密度下, 配对电解槽电压较传统 $\text{NO}_3\text{RR/OER}$ 体系降低1.1 V, 实现了塑料(100 g PET)与真实废水(2.1 L)的克级升级回收(51.2 g 乙醇酸盐和9.1 g NH_4Cl).

3.3 二氧化碳还原反应

通过结合阳极EGOR和阴极 CO_2RR , 同样可以实现将PET和 CO_2 等废弃碳资源同时转化为高价值化学品(如GA和FA) (图7).

2022年, Reisner团队^[55]开发了一种新型光电催化系统, 利用单一钙钛矿光吸收体在零外加电压下, 通过双极膜分隔的pH梯度提供内部化学偏压, 同时实现 CO_2 还原为高附加值燃料(包括一氧化碳、合成气或甲酸盐)和PET塑料衍生的EG回收为乙醇酸盐. 该系统集成了三种可替换的 CO_2 还原催化剂(钴卟啉分子催化剂、铜铟合金和甲酸脱氢酶生物催化剂)于光阴极, 以及铜钼合金阳极选择性氧化塑料水解产物EG. 实验表明, 该系统的产物选择性高(钴卟啉产CO法拉第效率达90%, 酶催化产甲酸盐法拉第效率大于95%), 且产率比传统光催化悬浮工艺高10~100倍.

2024年, Yang团队^[56]报道了一种新型的 $\text{Pd}_{67}\text{Ag}_{33}$ 合金气凝胶电催化剂, 用于在常温常压下高效、选择性地回收PET塑料水解液中的EG升级回收为高价值的

GA. 该催化剂通过独特的盐析-交联策略合成, 具有多孔互连纳米线结构和丰富的缺陷位点, 具有卓越的性能(9.7 A/mg 的质量活性和92.7%的GA法拉第效率). 此外, 该催化剂还展现出优异的 CO_2 还原制FA性能(91.2%法拉第效率). 研究进一步构建了双功能集成电解槽(EGOR/ CO_2RR), 利用 $\text{Pd}_{67}\text{Ag}_{33}$ 同时催化阳极PET衍生的EG氧化生成GA和阴极 CO_2 还原生成FA, 在0.4 V低槽电压下实现了双电极大于80%的法拉第效率.

4 结论

聚酯塑料的资源利用与升级回收是实现塑料循环经济、缓解环境污染的关键. 本文系统综述了近年来通过电化学技术实现PET塑料升级回收的最新研究进展. 通过碱性水解结合电催化氧化, PET可被定向转化为高值化学品, 包括通过 C_1 路线将EG选择性氧化为FA等 C_1 化学品, 以及通过 C_2 路线将EG选择性氧化为GA等 C_2 化学品, 研究已证明该技术在工业级电流密度下可实现高法拉第效率与长时稳定性. 阳极的塑料氧化反应可与多种高价值阴极还原反应高效耦合, 如HER、 NO_3RR 和 CO_2RR , 以替代高能耗的OER, 大幅降低能耗并提升整体经济性. 电催化凭借其反应条件温和、路径可控、易于耦合可再生能源与高值化产物的核心优势, 为废弃PET塑料单体的升级回收提供了极具前景的“变废为宝”解决方案.

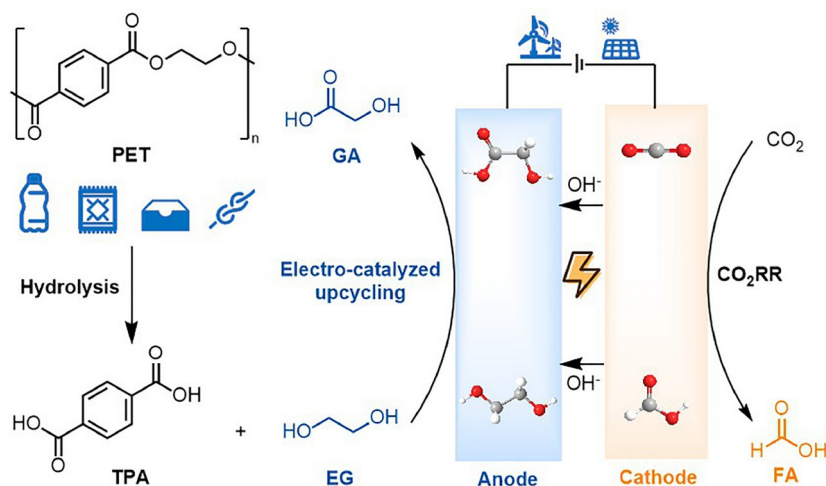


图7 (网络版彩图)电催化升级回收PET衍生的EG与 CO_2 为GA和FA

Figure 7 (Color online) Electrocatalytic upcycling of PET-derived EG and CO_2 to GA and FA.

电催化PET水解物的升级回收技术展现出了向工业化、产业化迈进的巨大潜力, 然而考虑到催化剂的高成本(如含Pd、Pt、Ru、Au的体系)和稳定性、系统高能耗与高成本, 多数研究仍然处于实验室规模(克级), 少数达到千克级, 未来通过催化剂的进一步开发和创新反应器的设计, 该策略有望向更多塑料体系拓

展, 并突破工业化、产业化瓶颈。除此之外, 目前这些工作都基于“碱性水解+电催化氧化”两步法升级回收PET衍生的EG, 直接电催化升级回收PET的研究仍然较少, 开发能够直接通过电催化途径实现PET解聚的方法是突破当前技术瓶颈、进一步降低成本的另一可取的方向。

参考文献

- Geyer R, Jambeck JR, Law KL. *Sci Adv*, 2017, 3: e1700782
- Lau WWY, Shiran Y, Bailey RM, Cook E, Stuchtey MR, Koskella J, Velis CA, Godfrey L, Boucher J, Murphy MB, Thompson RC, Jankowska E, Castillo Castillo A, Pilditch TD, Dixon B, Koerselman L, Kosior E, Favoino E, Gutberlet J, Baulch S, Atreya ME, Fischer D, He KK, Petit MM, Sumaila UR, Neil E, Bernhofen MV, Lawrence K, Palardy JE. *Science*, 2020, 369: 1455–1461
- Jambeck JR, Geyer R, Wilcox C, Siegler TR, Perryman M, Andrady A, Narayan R, Law KL. *Science*, 2015, 347: 768–771
- Tournier V, Topham CM, Gilles A, David B, Folgoas C, Moya-Leclair E, Kamionka E, Desrousseaux ML, Texier H, Gavalda S, Cot M, Guémard E, Dalibey M, Nomme J, Cioci G, Barbe S, Chateau M, André I, Duquesne S, Marty A. *Nature*, 2020, 580: 216–219
- Rahimi AR, García JM. *Nat Rev Chem*, 2017, 1: 0046
- Li Y, Wang M, Liu X, Hu C, Xiao D, Ma D. *Angew Chem Int Ed*, 2022, 61: e202117205
- Ji L, Meng J, Li C, Wang M, Jiang X. *Adv Sci*, 2024, 11: 2403002
- Yue H, Zhao Y, Ma X, Gong J. *Chem Soc Rev*, 2012, 41: 4218–4244
- Novaes LFT, Liu J, Shen Y, Lu L, Meinhardt JM, Lin S. *Chem Soc Rev*, 2021, 50: 7941–8002
- Tay NES, Lehnher D, Rovis T. *Chem Rev*, 2022, 122: 2487–2649
- Sherbo RS, Delima RS, Chiykowski VA, MacLeod BP, Berlinguette CP. *Nat Catal*, 2018, 1: 501–507
- Wang Y, Fan Y, Chen YZ. *J Mater Chem A*, 2025, 13: 10892–10898
- Chen Y, Fan Y, Wang Y, Li Z. *Small*, 2024, 20: 2401226
- Hong W, Shang C, Wang J, Wang E. *Energy Environ Sci*, 2015, 8: 2910–2915
- Quan L, Jiang H, Mei G, Sun Y, You B. *Chem Rev*, 2024, 124: 3694–3812
- Khalafallah D, Zhi M, Hong Z. *Top Curr Chem (Z)*, 2019, 377: 29
- Liang X, Shi L, Liu Y, Chen H, Si R, Yan W, Zhang Q, Li G, Yang L, Zou X. *Angew Chem Int Ed*, 2019, 58: 7631–7635
- Zhou H, Ren Y, Li Z, Xu M, Wang Y, Ge R, Kong X, Zheng L, Duan H. *Nat Commun*, 2021, 12: 4679
- Kang D, Kim TW, Kubota SR, Cardiel AC, Cha HG, Choi KS. *Chem Rev*, 2015, 115: 12839–12887
- Mesa CA, Kafizas A, Francàs L, Pendlebury SR, Pastor E, Ma Y, Le Formal F, Mayer MT, Grätzel M, Durrant JR. *J Am Chem Soc*, 2017, 139: 11537–11543
- Bender MT, Yuan X, Choi KS. *Nat Commun*, 2020, 11: 4594
- Lin CY, Huang SC, Lin YG, Hsu LC, Yi CT. *Appl Catal B-Environ*, 2021, 296: 120351
- Shi R, Liu KS, Liu F, Yang X, Hou CC, Chen Y. *Chem Commun*, 2021, 57: 12595–12598
- Wang J, Li X, Zhang T, Chen Y, Wang T, Zhao Y. *J Phys Chem Lett*, 2022, 13: 622–627
- Li X, Wang J, Zhang T, Wang T, Zhao Y. *ACS Sustain Chem Eng*, 2022, 10: 9546–9552
- Liu X, Fang Z, Xiong D, Gong S, Niu Y, Chen W, Chen Z. *Nano Res*, 2023, 16: 4625–4633
- Li Y, Liu L, Wang XH, Chen C, Li M, Wang JY, Li SN. *Int J Hydrogen Energy*, 2024, 96: 794–802
- Sun J, Shi B, Dai S, Chu L, Wang H, Huang M. *ACS Catal*, 2025, 15: 529–542
- Lu X, Guo Y, Fu H, Song J, Liang C, Jiang H, Wang Z, Liu Y, Cheng H, Zheng Z, Wu Y, Wang P, Huang B. *Chem Eng J*, 2025, 506: 159810
- Li X, Sun J, Ma H, Long X, Li T, Shimoyama Y, Naito T, Sato K, Yamada H, Nagaoka K, Zhao Y, Qian X. *Appl Catal B-Environ Energy*, 2025, 371: 125211
- Chen GF, Yuan Y, Jiang H, Ren SY, Ding LX, Ma L, Wu T, Lu J, Wang H. *Nat Energy*, 2020, 5: 605–613

- 32 Gao P, Xue Z, Zhang S, Xu D, Zhai G, Li Q, Chen J, Li X. *Angew Chem Int Ed*, 2021, 60: 20711–20716
- 33 Xu YT, Xie MY, Zhong H, Cao Y. *ACS Catal*, 2022, 12: 8698–8706
- 34 Liu H, Lang X, Zhu C, Timoshenko J, Rüschler M, Bai L, Guijarro N, Yin H, Peng Y, Li J, Liu Z, Wang W, Cuenya BR, Luo J. *Angew Chem Int Ed*, 2022, 61: e202202556
- 35 Shen H, Choi C, Masa J, Li X, Qiu J, Jung Y, Sun Z. *Chem*, 2021, 7: 1708–1754
- 36 Ren T, Yu Z, Yu H, Deng K, Wang Z, Li X, Wang H, Wang L, Xu Y. *ACS Nano*, 2023, 17: 12422–12432
- 37 Jiang J, Zhang L, Wu G, Zhang J, Yang Y, He W, Zhu J, Zhang J, Qin Q. *Angew Chem Int Ed*, 2025, 64: e202421240
- 38 Wang W, He X, Tu Z, Xiong D, Dong S, Zhang T, Wu D, Wang J, Chen Z. *ACS Catal*, 2025, 15: 9574–9583
- 39 Hepburn C, Adlen E, Beddington J, Carter EA, Fuss S, Mac Dowell N, Minx JC, Smith P, Williams CK. *Nature*, 2019, 575: 87–97
- 40 Wang G, Chen J, Ding Y, Cai P, Yi L, Li Y, Tu C, Hou Y, Wen Z, Dai L. *Chem Soc Rev*, 2021, 50: 4993–5061
- 41 Wang J, Li X, Wang M, Zhang T, Chai X, Lu J, Wang T, Zhao Y, Ma D. *ACS Catal*, 2022, 12: 6722–6728
- 42 Chen T, Hu Q, Wu C, Sun M, Fu P, Liu X, Li Y, Zhou Y, Xi S, Wang J. *J Energy Chem*, 2025, 107: 285–295
- 43 Budak K, Sogut O, Aydemir Sezer U. *J Polym Res*, 2020, 27: 208
- 44 Liu F, Gao X, Shi R, Guo Z, Tse ECM, Chen Y. *Angew Chem Int Ed*, 2023, 62: e202300094
- 45 Yan Y, Zhou H, Xu SM, Yang J, Hao P, Cai X, Ren Y, Xu M, Kong X, Shao M, Li Z, Duan H. *J Am Chem Soc*, 2023, 145: 6144–6155
- 46 Du M, Zhang Y, Kang S, Xu C, Ma Y, Cai L, Zhu Y, Chai Y, Qiu B. *Small*, 2023, 19: 2303693
- 47 Wang Y, Liu K, Liu F, Liu C, Shi R, Chen Y. *Green Chem*, 2023, 25: 5872–5877
- 48 Liu X, He X, Xiong D, Wang G, Tu Z, Wu D, Wang J, Gu J, Chen Z. *ACS Catal*, 2024, 14: 5366–5376
- 49 Liu K, Gao X, Liu C, Shi R, Tse ECM, Liu F, Chen Y. *Adv Energy Mater*, 2024, 14: 2304065
- 50 Wang Y, Liu F, Chen J, Tse ECM, Shi R, Chen Y. *Nat Commun*, 2025, 16: 4440
- 51 Han S, Sun L, Fan D, Liu B. *Nat Commun*, 2025, 16: 3426
- 52 Ren T, Duan Z, Wang H, Yu H, Deng K, Wang Z, Wang H, Wang L, Xu Y. *ACS Catal*, 2023, 13: 10394–10404
- 53 Tu Z, He X, Liu X, Xiong D, Xue S, Wu D, Wang J, Chen Z. *Chem Mater*, 2025, 37: 1195–1204
- 54 Ma Y, Guo X, Yuan W, Yang P, Zhang Y, Chen W, Cai L, Nicolosi V, Wang W, Chai Y, Qiu B. *Chem Catal*, 2025, 5: 101336
- 55 Bhattacharjee S, Rahaman M, Andrei V, Miller M, Rodríguez-Jiménez S, Lam E, Pornrungrroj C, Reisner E. *Nat Synth*, 2022, 2: 182–192
- 56 Chen J, Zhang F, Kuang M, Wang L, Wang H, Li W, Yang J. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2024, 121: e2318853121

Electro-catalyzed upcycling of monomers from polyester plastics

Boning Gu, Jiaolong Meng, Xuefeng Jiang^{*}

Hainan Institute of East China Normal University, Sanya 572025, China

**Corresponding author (email: xfjiang@chem.ecnu.edu.cn)*

Abstract: Plastic pollution poses an increasingly severe global challenge. As a widely used high-performance material, polyester plastic requires efficient recycling and value-added utilization, which are key strategies for realizing a circular plastic economy. This review systematically summarizes recent research progress in the electrocatalytic upcycling of monomers from waste polyester plastics. After alkaline hydrolysis depolymerizes waste polyethylene terephthalate (PET) into terephthalic acid (TPA) and ethylene glycol (EG), EG can be selectively converted into value-added C₁ or C₂ chemicals via anodic electrocatalytic oxidation using various efficient catalysts. This process can be effectively coupled with diverse high-value cathodic reactions, such as the hydrogen evolution reaction (HER), nitrate reduction reaction (NO₃RR), and CO₂ reduction reaction (CO₂RR). This enables the simultaneous production of valuable products such as hydrogen, ammonia, or formic acid, thereby achieving synergistic resource recovery from waste PET and associated wastewater or gaseous waste streams. Electrocatalytic technology, with its mild conditions, controllable reaction pathways, compatibility with renewable electricity, and ability to generate high-value chemicals, represents a highly promising and sustainable approach for upcycling of EG from waste PET plastics.

Keywords: waste plastics, polyester plastics, upcycling, electrocatalysis

doi: [10.1360/SSC-2025-0177](https://doi.org/10.1360/SSC-2025-0177)