



高分子材料化学循环与升级回收

刘雪辉, 王玉忠*

四川大学化学学院, 环保型高分子材料国家地方联合工程实验室, 教育部环境与火安全高分子材料协同创新中心, 先进高分子材料全国重点实验室, 成都 610064

*通讯作者, E-mail: yzwang@scu.edu.cn

收稿日期: 2026-01-02; 接受日期: 2026-01-30; 网络版发表日期: 2026-02-27

国家自然科学基金(编号: 22305165, 22575164)资助项目

摘要 本文重点探讨废弃高分子材料的化学循环与升级回收的方法与策略. 一方面, 对于现有高分子材料的废弃物, 要研究开发经济有效的化学循环与升级回收技术, 实现废弃物的闭环化学循环与高值化利用. 另一方面, 要从新设计合成的高分子材料入手, 使新设计合成的高分子材料具有其应用领域必要性能的同时, 还具有易化学循环回收性(特别是可反复化学循环): 一是设计兼具目标性能与可反复化学循环的新聚合物; 二是通过引入少量共聚单体对现有聚合物进行共聚化学改性, 在保持或增强原聚合物性能的同时更容易实现化学循环. 对一次性使用高分子制品, 在新设计高分子材料时, 还需另外考虑在其无法/不易/不宜回收环境中应具有可完全降解性能, 即设计合成兼具必要性能、易化学循环回收性和在不同环境中可完全降解性的新型高分子材料(可反复化学循环生物降解高分子材料), 以适应不同废弃处理场景的需求. 通过上述策略与其他途径协同, 推动高分子产业的绿色可持续发展.

关键词 循环, 升级回收, 可化学循环, 可反复化学循环

1 引言

高分子材料作为三大类材料之一, 其产量持续增长, 体积产量已超过金属材料, 广泛应用于国民经济和日常生活各个领域. 然而, 随着其生产与消费规模的持续扩大, 一方面消耗大量的不可再生的化石资源, 另一方面, 因缺乏经济有效的回收技术, 其废弃物也对环境造成日益严重的压力. 建立在“资源开采-产品制造-产品废弃”线性模式之上的传统发展路径, 正面临资源与环境双重约束的严峻挑战.

高分子材料的完整生命周期是一个始于资源、终

于环境的复杂系统(图1). 当前, 其原料主要依赖于石油、天然气、煤炭等化石资源, 利用生物质等可再生资源作为替代路径也开始受到关注. 这些资源经过转化形成可聚合的单体, 通过聚合得到高分子量的聚合物, 进而加工成各类高分子制品, 制品在整个服役期会经历老化、性能下降, 最终废弃. 对于非一次性使用制品, 可以通过材料设计与改性(如增强抗老化与耐环境性能)延长其使用寿命, 相当于在相同服役期减少了废弃物产生量和资源消耗. 当制品结束其使用周期转变为废弃物后, 其后续流向决定了其对环境的最终影响. 对于已收集回拣的各类高分子制品的废弃物,

引用格式: Liu X, Wang YZ. Chemical recycling and upcycling of polymeric materials. *Sci Sin Chim*, 2026, 56: 525–538, doi: 10.1360/SSC-2026-0002

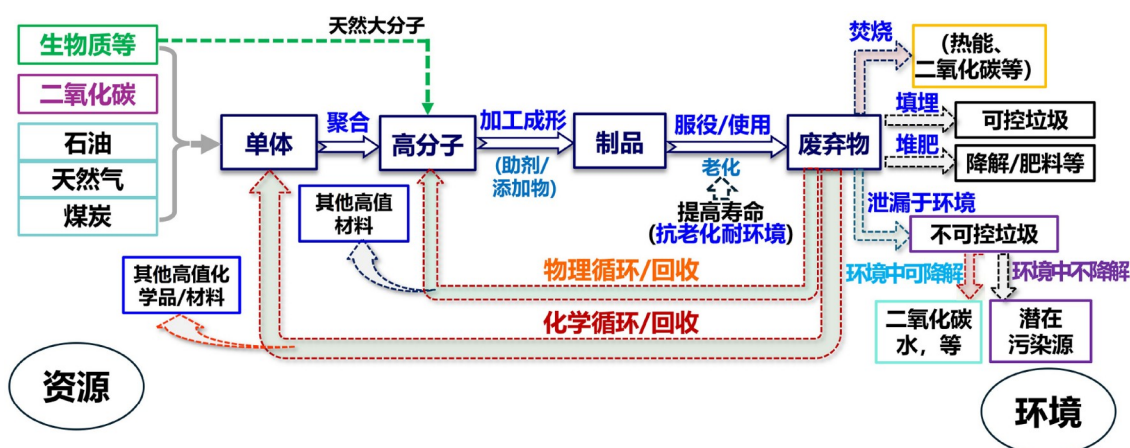


图1 (网络版彩图)典型高分子材料从生产端到废弃后的处置方式对资源与环境的影响(本图系统展示了典型高分子材料从不同资源制备单体、聚合、加工成形(包括添加各种助剂或发挥不同作用的其他添加物)、产品使用到废弃处置的全过程,重点标注了废弃物处理途径,包括循环/回收、焚烧、填埋、堆肥与泄漏于环境等场景)

Figure 1 (Color online) Impacts of typical polymeric materials on the resources and environment across their lifecycle—from production to post-disposal treatment (this diagram systematically illustrates the full life cycle of typical polymeric materials: preparing monomers from different raw materials, polymerization, and processing to products and end-of-life disposal; it highlights various waste treatment pathways, including recycling/recovery, incineration, landfilling, composting, and leakage into the environment).

其处置方式主要可通过物理或化学等途径回收/循环、焚烧、填埋、堆肥/降解等,各种处置方式所占的比例随相应技术的发展而不断地在变化。回收循环(如回收热能的焚烧)、堆肥/降解都能减少固体废弃物对环境的污染,即使填埋也能将废弃物控制在固定场所。然而,总会有泄漏到环境中的不可控废弃物,若这些高分子废弃物在所泄漏的环境中不能降解,将成为持久性污染源;若这些废弃物在所泄漏的环境中能降解成二氧化碳和水等对环境无害的物质,则对环境就不会造成污染,因此具有在自然界能完全降解特性的可降解高分子材料是解决泄漏到自然界的高分子固体废弃物产生污染问题的有效途径,具有其他方式不可替代的作用。

塑料作为高分子材料最具代表性的产品,其全球累计产量已达83亿吨,其中63亿吨成为废弃物,但回收率不足15%,其余大部分进入自然环境或垃圾填埋场,造成了环境污染^[1]。根据目前塑料产量的增长速度和塑料废弃物的比例,到2050年,全球塑料废弃物的累积量将超过120亿吨^[2],而且现在超过90%的塑料依赖于化石资源,随着人们对塑料需求的日益增加,塑料在2050年全球石油消耗中的占比将达到20%,这实际上是对宝贵的非常规碳资源的浪费。此外,在塑料的整个生命周期中(从原料提取到废弃焚烧)还会产生大

量的碳排放。

面对上述挑战,推动高分子材料走向绿色低碳的可持续发展已成为全球共识。为实现这一目标,亟需构建覆盖材料全生命周期的系统性解决方案:在资源端,积极采用可再生的生物质等原料替代不可再生的化石碳源,从源头降低碳足迹;在生产与使用端,发展自修复、抗老化与环境耐受性等先进技术,有效延长材料服役寿命,从源头上减少废弃物的产生;尤其是在废弃物管理端,在通过技术进步提升物理回收临界比例的同时,应发展经济有效的化学循环技术体系,并积极探索升级回收的创新路径。此外,应重视高分子材料的源头设计,合成兼具优良使役性能和可反复化学循环的新型材料;而针对一次性制品,还需要再增加在废弃环境中可完全生物降解特性,即研究开发高性能的可反复化学循环生物降解高分子材料,从而构建多路径协同技术体系,系统应对资源循环与环境治理的双重挑战。

2 废弃高分子材料的回收方法

高分子材料的回收早在20世纪90年代就受到关注,但进展有限。根据回收目的的不同,目前高分子材料的回收方法分为能量回收和物质回收(图2)^[3]。能量



图 2 (网络版彩图)废弃高分子材料的回收方法(本图根据回收目的,将现有回收方法分为能量回收与物质回收两大类;物质回收进一步细分为物理/机械回收、化学回收及生物回收等路径,并标注了各类回收方式典型的产物形式、适用的材料及在循环经济中的回收等级)

Figure 2 (Color online) Recycling methods for waste polymeric materials (this diagram categorizes existing recycling methods into two major classes—energy recovery and matter recovery—based on their intended purpose; matter recovery is further subdivided into pathways such as phycycling/mechcycling, chemcycling, and biocycling, with annotations indicating the typical product forms, applicable material types, and the recycling hierarchy within the circular economy for each approach).

回收主要是针对难以清洗、分选的混杂废旧塑料,通过焚烧回收热能发电.能量回收可显著减少废塑料的堆存量,但相比于其他回收方法,回收产物价值较低,还会产生额外的碳排放,属于降级回收.物质回收主要分为物理/机械回收(phycycling/mechcycling)、化学回收(chemcycling)、物理/机械化学回收(physchemcycling/mechchemcycling)和生物回收(biocycling).

物理/机械回收是通过机械力或溶剂等物理作用/过程,将废弃高分子材料转化为原聚合物或简单物料.例如,废弃聚烯烃或聚酯经分选和去除杂质后,可通过机械再生制成树脂/塑料颗粒,用于制造新制品.该方法成本低、流程简单,适用于大规模应用,因此目前废旧高分子材料的回收主要是采用该方法.然而,多次循环后材料性能发生劣化,无法实现无限次循环,存在一个最大的极限回收比例.

化学回收是通过热或者溶剂及催化剂等作用将聚合物的高分子链断裂/降解/解聚,得到新材料、低聚物、低分子量/小分子化学品、单体的过程.与仅改变材料形态的物理回收不同,化学回收实现了分子层面的重构,具备将废弃物重新转化为原生品质聚合物以及升级回收的潜力,是目前全球产业界与学术界研究的热点.

物理/机械化学回收是一种协同利用物理场(如机

械剪切、摩擦、超声)与化学反应,以实现高分子废弃物高效降解或改性的回收方法.该过程并非物理与化学过程的简单叠加,而是通过机械能等物理作用直接诱发或强烈促进化学键的断裂与重组,从而将废弃物转化为单体、其他化学品、低聚物或者新材料.该方法反应效率高,但其规模化应用仍面临反应器设计、能量输入精确控制以及成本效益等挑战.

生物回收主要是指利用微生物、真菌或其分泌的酶等生物体系作为催化剂,将聚合物降解为单体或其他化学品的过程.因其反应条件温和、环境友好等特点,成为当前新兴的高分子材料回收方式,然而该方法目前仅适用于特定种类的聚合物,且效率有待提高.

近年来,产业界开始关注回收产物的品质、性能或价值(包括经济/环境价值).根据回收产物的价值,分为“降级回收”(downcycling)、“循环回收”(recycling)及“升级回收”(upcycling).其中,“降级回收”是废旧高分子材料转化为比其现有状态的性能和价值等更低的产物/产品的过程;“循环回收”是指高分子制品在完成其服役期后,要么通过物理/机械方式回收为其聚合物(物理循环或闭环物理循环),要么通过解聚反应回收为其聚合的单体,回收的单体又可聚合成其聚合物(化学循环或闭环化学循环);“升级回收”是指能将废旧高分子材料转化为(与其现有状态或其简单物理机械回

收产物相比)具有较高价值(经济/环境价值)、性能或品质产物/产品的过程, 既包含转化途径/方法, 又强调能提升转化产物的性价比, 体现出“回收与高值化利用”含义。

3 废弃高分子材料的化学循环

闭环化学循环不仅是将废弃高分子材料解聚为单体, 而且还须关注解聚单体与废弃高分子材料中添加剂和污染物、解聚体系所用催化剂和溶剂等物质的分离, 最终纯化出聚合级单体并通过再聚合成原聚合物以构建“闭环”循环。因此, 相比多单体聚合物, 特别是非全碳-碳主链聚合物, 单一单体聚合物在闭环化学循环中更具分离与纯化优势。在闭环化学循环方法设计时, 应优先考虑易分离的催化剂和无溶剂体系。以聚对苯二甲酸-己二酸丁二醇酯(PBAT)为例, 其催化水解或醇解反应本身易于实现, 但解聚后的物料是一个复杂的混合体系, 包含对苯二甲酸(酯)、己二酸(酯)、丁二醇、未完全转化的低聚物、副产物、废弃PBAT材料添加剂与污染物、醇或水溶剂及催化剂等, 分离纯化技术难度大、应用成本高。与之相比, 单一单体聚合物以聚乳酸(PLA)为例, 其环化解聚产物只有单一的丙交酯, 且在减压热解聚条件下, 生成的丙交酯通过蒸馏直接与反应体系中未完全转化的废弃PLA及其添加剂和污染物分离, 后续丙交酯纯化与再聚合可整合至原PLA生产线/工艺。

“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”平衡热力学是预测和评估如PLA等环酯类聚合物可闭环化学循环性的关键理论。环酯单体(常见为5~7元环小环环酯)开环聚合的焓变和熵变通常同时为负值, 因此具有可开环聚合热力学上限温度(ceiling temperature, T_c)。理论上, T_c 是常压、均相条件下环酯单体可发生开环聚合的最高温度; 根据“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”平衡, T_c 也是聚合物可完全解聚为单体的最低温度。当前, 热力学研究常用 T_c 对照以表示聚合物可闭环化学循环难易次序, 通常认为 T_c 值越低、可解聚回收性越好。然而, 由于常见5~7元环酯单体常压沸点约200~300 °C, 在实际反应温度和减压条件下, 单体从反应相不断被蒸馏出, 解聚-蒸馏促使反应相中“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”可逆反应持续向单体方向移动, 因而实践中聚合物可完全解聚为单体的最低温度相对 T_c 值大幅偏低。例如, 丙交酯理论 T_c 值超过600 °C, 但PLA实际在约200 °C即可近乎100%的解聚回收为丙交酯。此外, “ T_c 值越低、可解聚回收性越好”的次序规律也不尽准确。例如, 聚戊内酯(PVL) T_c 值高于PLA和聚己内酯(PCL) (图3a), 但实践中PVL更易于解聚回收。 T_c 值基于吉布斯自由能等于零计算所得, 仅适合作为反应相中平衡态的热力学判据。与之相比, 解聚-蒸馏在反应相中不需要将聚合物完全解聚为单体, 仅需反应相中解聚生成单体的饱和蒸汽压大于等于气相工作压力, 解聚-蒸馏这一串联化学-物理过程即可持续进行。因此, 在汽化焓/熵相近的前提下, 单体平衡浓度-温度曲线更适合作为可闭环化学循环

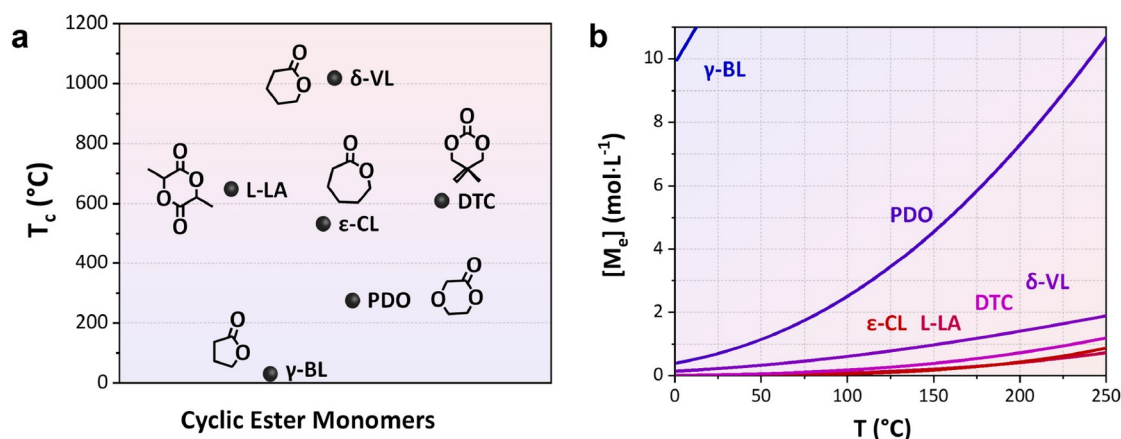


图3 (网络版彩图) (a) 环酯单体开环聚合热力学上限温度 T_c 对比; (b) 环酯单体热力学平衡浓度-温度曲线^[9-14]

Figure 3 (Color online) (a) Comparison of T_c for ring-ester monomer ring-opening polymerization; (b) thermodynamic equilibrium concentration-temperature curves for ring-ester monomers ^[9-14].

性的热力学指标. 图3可见, 采用相同基础热力学参数分别计算得分图(a)与(b), 单体平衡浓度-温度曲线在150~250 °C(解聚回收实际操作温度)区间解聚回收从难到易的排序为PCL $\approx$ PLA>PVL>>聚丁内酯(PBL), 比基于 T_c 值所得的排序(PVL>PLA>PCL>PBL)更符合实践效果.

根据平衡热力学分析, 以PLA和PCL为代表的环酯聚合物面临较低的热力学解聚倾向, 导致解聚-蒸馏温度相对高, 进而引发消旋化副反应、环状寡聚化副反应、催化剂随单体蒸馏出等问题, 造成回收单体纯度下降, 再聚合产物性能劣化, 最终导致“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”无法完全“闭环”. 针对PLA消旋化副反应等问题, 我们开发了具有自适应表面的固体锡催化剂, 催化PLA解聚-蒸馏回收率达到99.95%、回收丙交酯消旋率低于1%; 得益于固体催化剂不汽化和易分离的特点, 回收丙交酯不受催化剂溜出污染(锡含量低于1 ppm)、无纯化与再聚合劣化, 固体锡催化剂可至少循环使用30次; 且固体锡催化剂同样适用如PCL等其他环酯聚合物及其混杂制品的化学循环回收^[4]. 针对PCL环状寡聚化副反应等问题, 王庆刚团队^[5]设计了Al-Salen高单体选择性解聚催化剂, 催化PCL解聚回收率达到93%、环状寡聚体生成率低于1%.

其他类型的单一单体聚合物也可通过协同考察“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”平衡的热力学倾向和聚合-解聚反应的可逆性, 初步理论判断一种高分子材料的闭环化学循环潜力. 从热力学角度看, 同为自由基反应, 由于聚苯乙烯(PS)和聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)的热力学解聚倾向远高于聚乙烯(PE)和聚丙烯(PP), 因而PS和PMMA更易解聚回收相应单体. 从反应可逆性角度分析, 自由基反应、酰胺交换反应、酯交换反应的反应可逆性依次提高, 相应通过自由基聚合、内酰胺开环聚合、环酯开环聚合所制备聚合物可闭环化学循环潜力依次提高, 因而即使聚己内酰胺(PA6)和PLA热力学解聚倾向低, 仍可以通过催化途径和采用“解聚-蒸馏”实现较高收率单体回收. 例如, 采用混合碱催化, PA6解聚-蒸馏回收率和回收单体纯度分别可达到88%和97%, 回收单体再聚合PA6与初始PA6结构和力学性能保持一致^[6], 而且我们最近开发了一种碱金属醇盐催化剂, 在超低添加量(1.5 wt%)实现PA6化学回收为己内酰胺, 其纯度和产率分别达到98%和91%以上.

针对多单体聚合物, 如聚对苯二甲酸乙二醇

(PET), 目前其化学回收的研究热点是利用特定溶剂(如醇类、酸碱溶液、水或离子液体等)在催化剂辅助下实现聚合物分子链的选择性降解, 最终得到单体, 但其疏水性、高熔点与低导热性导致传质传热困难, 需发挥溶剂在改善反应界面、活化酯基及提高反应速率方面的物理与化学作用. 在此, 我们开发了溶剂促进PET瓶及纺织品中涤纶选择性降解回收至单体的体系, 在温和反应条件下(<60 °C)降解PET瓶1 h可回收得到高产率(98%)和高纯度(~99%)的对苯二甲酸(TPA) (图4)^[7]. 由于产物的自分离效果, 该过程可大大减少酸的消耗量; 降解液具有良好的循环性能, 在循环5次后PET的降解率仍保持100%. 针对组成复杂的涤氨混纺, 该体系也可以选择性降解PET并保留氨纶, 同时反应溶剂对染料也有出色的洗脱效果, 在回收带有染料的纺织品时也可以得到纯度较高的TPA, 这使得废旧涤纶纺织品回收(包括含染料等添加剂的纺织品)成为可能. 针对目前市面上体量最大的涤棉混纺, 我们还开发了一种基于内部水循环的协同共降解策略, 即在 γ -戊内酯(GVL)中将废旧涤棉混纺共水解回收聚合物单体TPA和平台化学品5-羟甲基糠醛(HMF)^[8]. 相较于单独的棉降解, 混纺降解得到的HMF产率提高了25%. 研究表明涤纶的加入增加了水的消耗, 促进HMF的形成; 而外加水则不利于HMF的生成, 同时水含量的增加也降低了涤纶的降解速率, 这是由于其削弱了GVL对涤纶的溶胀/溶解作用. 此外, 由于GVL对聚酯具有出色的溶胀/溶解性能, 使水解能够在低浓度酸(仅为传统方法的1/10)中发生, 并有效防止了棉的过度降解. GVL在反应中表现出优异的稳定性, 为涤棉混纺的协同降解奠定了基础. 该方法适用于不同酯与棉混合物的共水解, 同时也适用于各种PET混合塑料, 均实现了PET的完全降解和高TPA产率.

4 废弃高分子材料的化学升级回收

4.1 热塑性高分子材料的升级回收

对于化学结构稳定而难以解聚的大宗聚合物(如聚烯烃), 上述化学解聚方法并不适用. 因此, 发展升级回收策略成为实现其资源化利用的关键补充路径. 传统上, 聚烯烃类废弃物主要通过热解技术转化为液体燃料或小分子产物, 该工艺虽适用于混合塑料废料, 却普遍面临能耗高、产物组成复杂及选择性低等挑

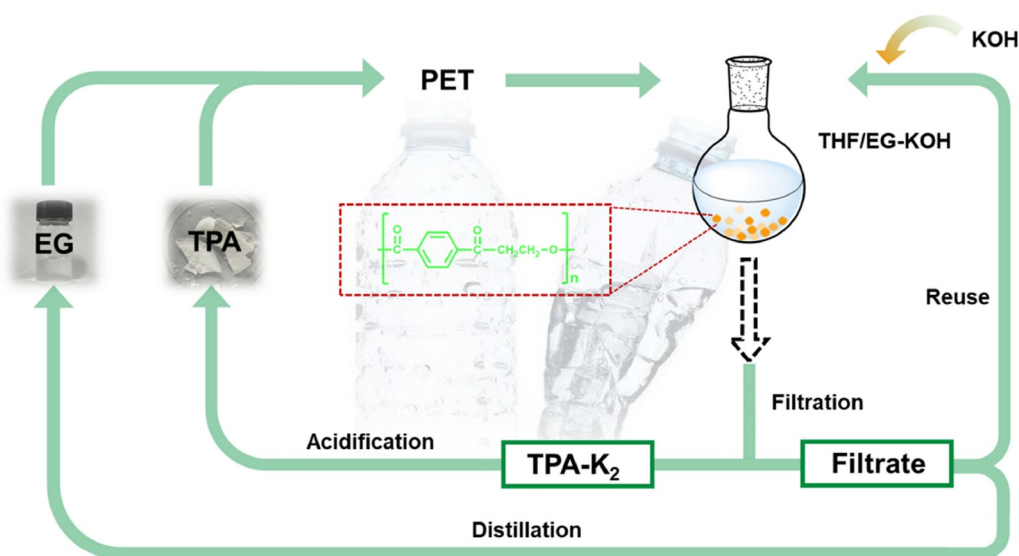


图 4 (网络版彩图) PET的低温选择性化学回收示意图^[7]

Figure 4 (Color online) Schematic diagram of the low-temperature selective chemical recycling of PET [7].

战. 为优化反应过程, 后续发展了催化裂解与加氢裂解等改进技术, 在一定程度上降低了反应温度并提升了产物选择性. 然而, 这些方法所得产物仍局限于碳氢化合物, 主要作为燃油或基础化工原料使用, 整体附加值有限. 近年来, 通过氧化热解的方法向废弃聚烯烃中引入氧元素, 可大大提升产物的附加值. 例如, 将聚烯烃氧化制备脂肪酸, 但在多数情况下, 聚烯烃会被深度氧化成复杂的短链脂肪酸(C1~C7), 其碳摩尔收率通常低于40%^[15~17]. 在此, 我们则发展了一种由PE直接氧化降解制备长链(C10~C20)二元酸的新策略, 即通过使用Co-MCM-41催化剂, 在较为温和的条件下(125 °C和1 MPa氧气压力)氧化降解PE, 高选择性地得到了长链二元酸(图5)^[18]. 二酸的总碳收率达85.9%, 其中长链二元酸为58.9% (46.2%在C11~C15范围内). 催化剂中钴为催化活性位点, 钴的负载量和分子筛的孔道结构对二元酸的形成与分布起决定作用. 低钴负载量、较大孔道以及高的聚乙烯分子量则有助于生成长链二元酸, 通过参数的改变可实现PE氧化降解产物分布从短链二元酸到长链二元酸的调节. 该方法不需要使用溶剂和贵金属催化剂, 操作简单, 且对商业PE制品有很好的适用性, 受其中添加剂影响较小. 此外, 我们还开发了一种聚烯烃高适应性氧化升级回收方法, 将聚烯烃用硝酸氧化回收得到高值含硝基长链多元羧酸^[19]. 该方法对于常见聚烯烃材料如低密度聚乙烯、

高密度聚乙烯、线性低密度聚乙烯、聚烯烃弹性体均有很好的适用性. 降解过程中聚烯烃支化拓扑结构中的长支链发生氧化断裂, 同时支化点保留, 从而得到了多元羧酸. 特别是对于混杂聚烯烃PP/PE, 在任意比例混合下, 降解产物出现“同质化”现象, 即分子量和官能团数相近. 产物可直接利用, 无需额外的分离步骤. 多元羧酸是一种高价值的精细化学, 很难通过化学合成来制备, 这项工作为多元羧酸的制备提供了一种新的途径.

在聚酯类热塑性高分子材料中, 半芳香族聚酯的单体化学回收途径较为成熟, 可以通过水解或醇解等得到单体, 再通过回收单体的聚合制备再生聚酯, 但仍然存在整个过程耗时长且能耗大的问题, 因此需要发展更加节能且产品高值化的升级回收循环途径. 本团队^[20]提出了一种废旧聚酯C-O键可控断裂制备抗紫外功能材料的无溶剂升级回收新方法, 通过设计的二苯乙炔功能单体与PET分子链的酯基发生原位酯交换反应, 将功能单体原位引入PET链中, 再通过增黏得到高分子量的抗紫外共聚酯. 该升级回收策略得到的抗紫外共聚酯不仅具有优异的力学性能和加工性, 而且表现出“反向增强”的抗紫外线能力和拉伸强度, 突破了传统高分子材料在长时间紫外线照射下不可避免地发生光降解和性能下降的难题. 同时该升级回收策略避免了大量有机溶剂的使用和功能助剂的迁移析出问

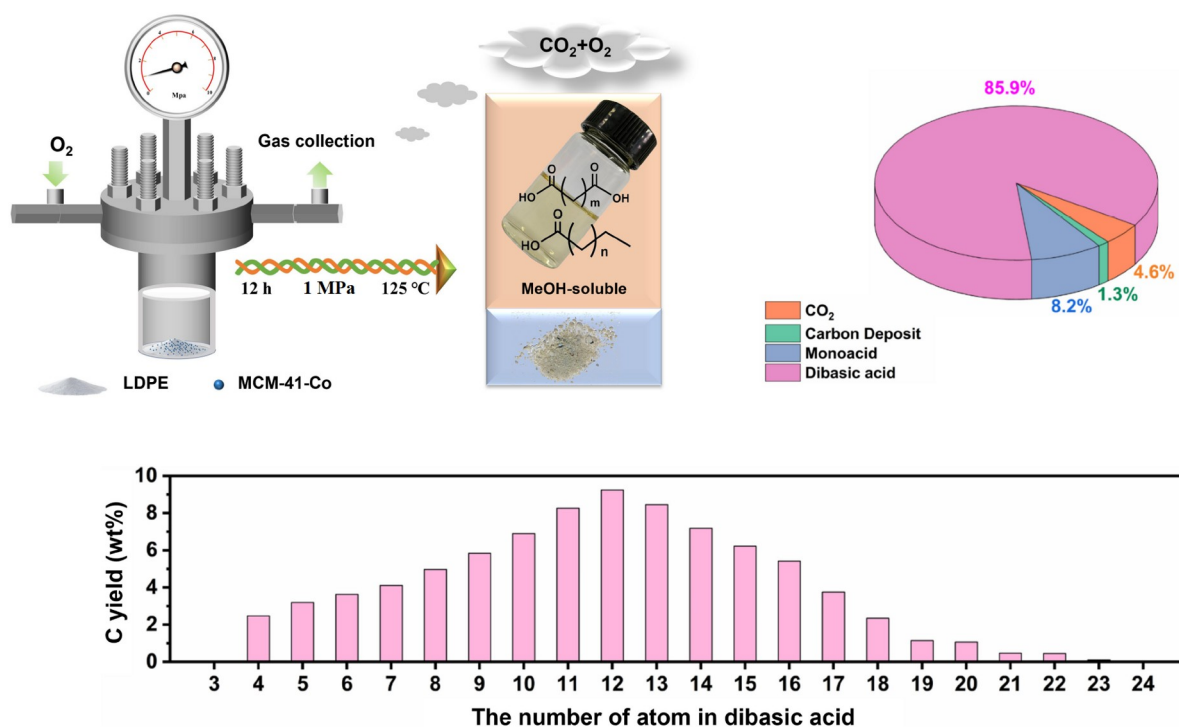


图 5 (网络版彩图) PE氧化降解制备长链二元酸^[18]

Figure 5 (Color online) Preparation of long-chain dicarboxylic acids via oxidative degradation of PE [18].

题,显著降低了回收过程中的能耗和污染,为废旧PET的高值化再利用提供了新思路.此外,我们同样致力于聚酰胺材料的升级回收探索.以PA6为例,其酰胺基团虽可作为降解反应位点,但固有的化学稳定性使得回收过程常需高温高压等苛刻条件^[21,22],且将聚酰胺回收为可用于再聚合的单体或寡聚体(后续聚合物合成的重要原料),其经济性仍有待系统验证.基于此,我们提出了一种将PA6升级再造为高性能聚酰胺衍生物的创新方法^[23].通过醇解将PA6降解为具有活性端基的寡聚体,其无需进一步降解至单体,便可作为关键中间体,与柔性聚乙二醇寡聚体直接熔融聚合制备热塑性聚酰胺弹性体(TPAE).通过精确调控反应时间与催化剂浓度,可实现PA6醇解产物分子量的有效控制,进而精准调节最终TPAE产品的力学性能.该研究思路将PA6降解过程与TPAE合成路径无缝衔接,实现了PA6向TPAE的高效升级转化.

4.2 热固性高分子材料的升级回收

与热塑性高分子材料不同,热固性高分子材料既

不能溶解也不能熔融,其化学回收比热塑性高分子材料难度更大.目前主要通过热解和溶剂解进行,然而由于其致密的三维网络结构阻碍了热固性高分子降解过程中的传质和传热,有效降解所需温度通常较高,且回收的低聚物多为复杂混合物,再利用领域有限、再利用率及价值也有待进一步的提高.近期,我们提出了一种基于超分子重构的升级回收策略,在环氧树脂高效降解的同时进行产物的原位重构,实现混杂降解产物的单独、直接、全部、高值化利用^[24].降解产物可用作热熔胶或者溶剂辅助黏合剂,对各种基材均表现出优异的黏结性能,最大黏结强度达到 4.34 MPa,高于目前已经报道的小分子基超分子黏合剂,甚至高于市售黏合剂.降解产物还可以用作水下黏合剂,显示出超高的水下黏结强度(5.88 MPa)和良好的长期使用稳定性,为解决水下黏附的重大挑战提供了新的途径.将该回收策略拓展至目前耐温等级高的热固性聚酰亚胺,实现了反应试剂、增强材料、基体树脂的全回收^[25].此外,为降低降解产物的复杂性,通过选择性断裂环氧树脂中C—O键并高效回收双酚A (BPA),也是

比较理想的环氧树脂化学回收方式之一。Ahrens等^[26]开发了钌催化选择性断裂 $C(sp^3)-O$ 键的方法, 环氧树脂在160 °C降解24 h, 可回收得到56%的BPA; 之后其团队提出使用NaOH与甲苯不相容的错位溶剂碱体系, 在190 °C反应24 h, 可将BPA产率提高到86%^[27]。Liao等^[28]则使用较廉价的镍催化剂在1 atm (1 atm=101325 Pa) 的 H_2 气氛下200 °C加热36 h回收到了66%的BPA。Nguyen等^[29]在环境温度下通过基于光催化的两步法从巯基环氧树脂中回收得到74%的BPA。以上方法为环氧树脂的升级回收提供了新思路, 但存在催化剂复杂昂贵难以大规模应用、树脂降解效率低、产物分离困难等问题。我们则开发了使用市售的路易斯酸在温和条件下对环氧树脂中的 $C(sp^3)-O$ 键进行选择性地断裂高效回收BPA, 同时通过 $C(sp^3)-N$ 键的重构及羟基环化将树脂中BPA之外的部分回收为多官能度环氧树脂单体的全回收策略^[30]。通过质量衡算, 环氧树脂的质量回收率高达90%以上, 其中BPA产率最高为96%, 纯度为99%; 多官能度环氧树脂单体的产率最高为96%, 环氧值为0.43。该回收方法不仅适用于不同胺类、酸酐固化的纯环氧树脂, 还可推广至废弃的风电叶片用玻璃/碳纤维增强环氧树脂复合材料与高压互感器用灌注树脂, 在高效回收BPA的同时, 还可无损回收复合材料中的玻璃纤维、碳纤维、硅微粉等材料。

实际上, 对于含增强材料(玻璃纤维、碳纤维等)及添加剂(如增塑剂、阻燃剂等)的混杂高分子体系回收则更为复杂, 须结合基体结构与添加物性质建立定向升级回收途径。我们提出了一种原位协同升级回收

策略, 在氧气和仅4 wt%钌催化剂的作用下, 选择性断裂环氧树脂中的 $C-O$ 键, 生成富含羟基的降解产物, 同时增强纤维被原位氧化改性(图6)^[31]。原位整合降解产物与改性纤维可制备兼具高强度与高韧性的黏合剂, 其在木材基材上的黏接强度与断裂位移分别达到5.3 MPa和1.44 mm, 较纯树脂降解产物黏合剂提升逾一倍。值得注意的是, 该黏合剂的黏接性能显著优于纯树脂降解产物与原始纤维简单混合制备的复合材料。此外, 该黏合剂对金属、塑料、玻璃等多种基材均展现出强黏接能力, 最高黏接强度可达10.93 MPa。这种简单高效的回收方法不仅为风电叶片退役后的处置提供了可行方案, 也为其他混杂高分子体系的升级回收提供了重要借鉴。

尽管高分子材料的化学回收研究已取得一定进展, 不同的策略可以产生价值不同的产物, 但仍面临诸多挑战, 特别是真实的高分子废弃物体系更为复杂, 各种因素相互影响, 导致有些化学回收策略不具有实际可行性, 这也导致了化学回收方式在各类回收方式中占比不足1%。由于物理回收方式解决高分子材料废弃物的回收比例达到一定值后很难提升, 因此要彻底解决废弃物的回收利用问题, 必须开发有效的化学回收新方法和策略。不同的高分子材料废弃物应根据其特点而采用与之适应的回收策略与方法。对某种高分子废弃物的理想回收方法应尽可能全面地满足以下条件: (1) 废弃物的回收产物/产品性能/价值不低于废弃物原组成材料(高分子/其他辅材), 即实现闭环循环的“循环回收”(同级再利用)或“升级回收”(高值化利用),

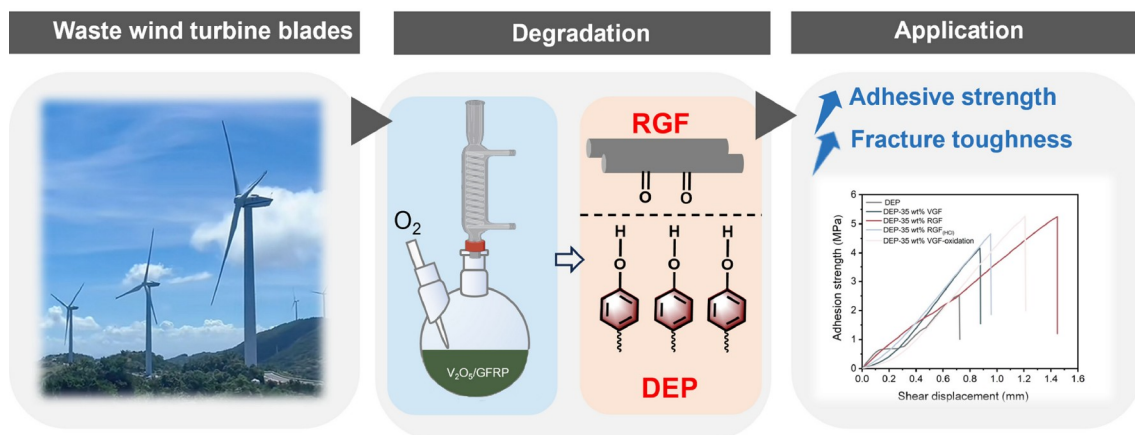


图6 (网络版彩图)协同升级回收风电叶片中的环氧树脂-玻璃纤维制备强韧黏合剂^[31]

Figure 6 (Color online) Manufacturing of robust adhesive through synergistic co-upcycling of epoxy-glass fiber components from wind turbine blades [31].

并且其市场容量总是能与被回收废弃物的量相匹配; (2) 在整个回收过程中, 能实现回收产品的高产率/转化率、易分离、全利用, 并且回收过程绿色低碳; (3) 具有经济效益, 即使没有政策激励(如补贴、税收优惠或溢价等), 回收产品也能具有市场竞争力, 确保内在盈利能力。

这样, 才能有效解决废弃高分子材料产生的巨大资源浪费, 提升其循环利用价值, 并消除其对生态环境的负面影响, 助力高分子材料产业的可持续发展。

5 源头设计可化学循环高分子材料

现在使用的各种合成高分子材料, 在其诞生或设计合成时主要考虑的是其具有能满足特定需要的使用性能, 并没有考虑其制品废弃后是否具有易循环回收性。若能在未来新型聚合物设计之初即同步考虑性能目标与循环潜力, 尤其是发展可实现易“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”之间高效可逆转换(即“聚合-解聚-再聚合”)的化学闭环循环高分子体系、基于非共价相互作用和动态共价键的可逆交联高分子聚合物, 将有望从源头推动碳资源的循环利用, 对实现高分子材料的可持续发展具有重大意义。

“可化学循环高分子(chemically-recyclable polymer)”是指高分子材料在完成其服役期后易回收利用, 可化学解聚为其聚合的单体, 回收的单体可实现再聚合形成原聚合物分子, 即能实现化学循环或闭环化学循环; “可反复化学循环高分子(repeatably chemically-recyclable polymer)”是指可以完全解聚为聚合单体的高分子, 即不仅可以实现闭环化学循环, 而且具有解聚的聚合单体回收率高(如接近100%)的特点, 只有达到近100%的单体回收率, 才能实现无限循环——可反复化学循环。

对于生产一次性使用制品的高分子材料, 除了需要考虑以上提到的具有必要的使役性能、可反复化学循环性外, 还要考虑其废弃后处于不易/不宜回收环境的可完全降解性。因此, 王玉忠^[32,33]在国际上首次提出“可化学循环生物降解高分子”(chemically-recyclable biodegradable polymer)概念, 并提出短期使用的一次性高分子材料制品应采用“可反复化学循环生物降解高分子”(repeatably chemically-recyclable biodegradable polymer)制造的理念, 即生产一次性高分子制品的理

想高分子材料应集可循环、易回收和可降解特性于一体, 以应对不同的废弃后场景。具体应具备以下5点: (1) 可以在温和的条件下以高回收率(如100%)解聚回收其无需分离的聚合单体, 并可直接用于再聚合, 实现化学闭环循环; (2) 可以在泄漏的自然环境中(如土壤、水/海水等)完全降解成二氧化碳和水或对人体/环境无害的物质; (3) 综合性能(如成形加工性、力学性能等)和成本上, 与同类用途的常规高分子材料相当; (4) 降解速率在特定应用领域(如农地膜等)具有可控性; (5) 其聚合单体尽可能来源于可再生的资源, 以减少对不可再生的化学资源依赖性。遗憾的是, 自2011年提出“可化学循环生物降解高分子”概念后, 很长时间未引起国际同行的重视, 直到2016年, Chen团队^[9,34]陆续开展了“可化学循环”高分子合成, 并取得了一系列的进展。令人欣慰的是, 中国在国际上率先将上述理念转化为实际应用, 在概念提出10年后的2021年, 将“可反复化学循环生物降解高分子材料”列入国家重点研发计划, 对特定可反复化学循环生物降解高分子品种进行技术攻关, 目前已取得重要进展。

如果仅考虑“循环”因素, “可反复化学循环”是最理想的回收方式, 但实际上还需考虑与过程的经济性和环境友好性等有关的其他因素。因此, 在设计合成新型的可化学循环高分子材料时, 除确保其具有必要的使用性能外, 还要考虑其可反复化学循环性、经济性和环境友好性。

为了实现这一目标, 我们提出了两种策略: 一种是设计合成全新的聚合物, 使其既具有必要的性能, 又易于可完全解聚为其聚合单体, 实现“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”闭环循环; 另一种是在已有聚合物的大分子链中引入少量共聚单体结构, 该结构不仅不破坏原有性能, 甚至可以提升性能或增加新的功能, 还能促进聚合物完全解聚为聚合单体, 实现闭环化学循环; 后一策略赋予了对原有聚合物进行“化学改性”的特点, 只是关注点聚焦在(因引入量少)能保持聚合物固有特性的基础上改善其易解聚性以实现可反复化学循环。此外, 对于交联聚合物, 通过引入具有功能性的动态共价键实现其可逆交联和增加热固性高分子材料的特定功能。

5.1 可反复化学循环的聚合物设计与化学改性

近年来, 根据我们提出的两种策略, 一方面, 本课题组^[33,35-40]设计合成了一系列潜在的可反复化学循环

高分子材料. 从最初的脂肪族醚内酯-对二氧环己酮逐渐拓展到芳香族醚内酯、硫醚内酯、硫内酯、桥环内酯等系列不同化学结构的环酯单体, 对应聚合物热学、力学等性能多样化. 相同之处在于, 这些环酯聚合物都可以通过环化解聚高收率回收为对应环酯单体.

另一方面, 针对现有量大面广的PET、聚碳酸酯(PC)等传统高分子材料, 我们针对性地设计合成了不同的新型功能性共聚单体, 通过将其少量地共聚引入PET大分子链中制备了易回收的功能PET共聚物. 这些功能性共聚单体不仅赋予了高分子材料使用阶段的抗菌性、阻燃性、抗紫外等多功能, 而且可以显著降低废弃后化学回收的解聚反应能垒和催化高分子快速解聚为单体小分子. 共聚PET可以实现自催化乙二醇解、甲醇解或水解, 解聚率高达100%且单体产率大于95% (相同条件下, PET的解聚率低于5%), 并高效分离回收得到高纯度的可聚合单体原料, 为设计可闭环化学循环的功能聚合物新材料提供了新思路. 例如, 在PET分子链中引入少量磺酸胍功能单体, 通过源头化学结构设计可以同时赋予材料服役阶段优异的抗菌性能以及使用寿命结束后的自催化化学回收^[41]. 磺酸胍单元中的双环胍阳离子可以与细菌表面的阴离子结合, 从而有效破坏细菌结构, 使得聚酯对大肠杆菌和金黄葡萄球菌的抗菌率均超99.9%. 无需外加催化剂, 磺酸胍单元能够通过氢键催化聚酯与亲核试剂的酯交换反应, 在废弃混合塑料中实现抗菌聚酯的精确自识别解聚为原料单体, 而其他塑料则保持不变. 解聚产物经分离提纯即可得到高回收率和高纯度(99.2%)的聚酯单体, 且再次聚合这些单体可得到与原材料相当的再生抗菌聚酯材料, 成功实现了“单体 $\leftrightarrow$ 聚合物”闭环化学循环. 在PC分子链设计上, 基于“键解离能调控”策略, 通过共聚引入具有高键解离能(499.7 kJ/mol)的4,4'-二羟基联苯(DHP)替换部分BPA (键解离能为293.5 kJ/mol)来抑制烟生成, 同时共聚引入聚二甲基硅氧烷改善共聚PC的加工性^[42]. 共聚PC表现出较高的拉伸强度及较高缺口冲击强度, 还兼具优异的耐热性及阻燃性, 并且与纯PC相比, 共聚PC介电常数随频率增加显著下降, 在5G通信领域具有应用的潜力. 更重要的是, 共聚PC可通过温和的方式在乙醇胺及二甲基亚砷催化下降解, 得到与投料比例一致的BPA及DHP单体, 较纯PC更容易循环回收. 重新聚合制备得

到的共聚PC阻燃性能与原共聚PC相比无明显下降.

在基于动态共价键的可逆交联高分子聚合物方面, 本课题组^[43]提出了低旋转能垒(Er)磷酸酯间隔基驱动Diels-Alder (DA)反应策略, 制备了具有优异热/力学性能、高火安全性和回收处理效率的环氧树脂及其碳纤维复合材料. 研究表明, 低Er的磷酸酯可以提高链段运动能力和DA反应速率. 因此, 树脂基体和复材展现出了出色的重塑效率(约95.0%)和修复效率(约97.0%). 复合材料可以在乙二醇溶剂中快速醇解, 实现碳纤维的无损回收. 此外, 引入含磷结构还赋予了树脂基体优异的火安全性, 优于目前已报道的大多数含磷本征阻燃环氧树脂. 重要的是, 树脂基体和复合材料均表现出了优异的热性能和力学性能. 该策略为可持续高性能热固性树脂基碳纤维复合材料的分子结构设计和性能定制提供了一种有效的研究思路.

5.2 可自然界降解的可反复化学循环高分子材料

为了应对使用后去向不明或明确去向但无法/难以收捡或无法回收/无回收价值的一次性使用塑料制品难回收的问题, 生物降解塑料应运而生. 目前已规模化生产和使用的生物降解塑料品种比较多, 但产量最大的合成生物降解高分子制品主要是PLA和PBAT. 然而, 废弃在城市生活垃圾中的这类生物降解塑料制品, 由于降解速度慢, 甚至有的需要在堆肥条件下才能降解, 因此不可能等待其自然降解, 而是要进行回拣和收集起来进行处理(如焚烧、堆肥、填埋等), 以减少其固体废弃物污染. 如果使用的这些生物降解塑料又易于实现闭环化学循环回收, 特别是可反复化学循环, 那么回收利用就成为处理这些一次性高分子制品废弃物的重要途径. 因此, 对于一次性使用制品, 应研究开发和使用可反复化学循环生物降解高分子材料, 特别是既可在其废弃自然界环境中完全降解, 又可实现反复化学循环的高分子材料.

这是因为同时具备可反复化学循环和可降解特点的一次性使用高分子制品, 其废弃后, 只要能够收集回捡, 就可利用其易回收循环特性, 实现其循环利用; 即使泄漏在环境中无法收集回捡, 因可降解为二氧化碳和水等也不会对环境产生污染. 因此, 可自然界降解的可反复化学循环高分子材料是治理因一次性塑料制品引起的全球塑料污染问题的有效技术途径.

然而, 目前已大规模生产和供应市场的高分子材

料, 没有一种能同时满足前文提到的生产一次性高分子制品的理想高分子材料应满足的几个条件, 即使同时满足其中三条的(1~3)也没有, 要么难实现可反复化学循环, 要么在其泄漏的环境中(如海水中)降解效果差(甚至不降解), 再者是性价比差导致市场不接受等。因此, 设计合成能满足上述条件的可自然界降解的可反复化学循环高分子材料对解决一次性塑料污染和减少资源消耗以实现高分子材料的可持续发展至关重要。

可开环聚合的环酯单体在开环聚合过程中无小分子副产物产生, 合成的聚合物具有完全解聚回收为单体的潜力, 并且往往可以获得单一的聚合单体, 易于分离纯化。另一方面, 因环酯开环聚合的聚合物主链含有脂肪族酯键, 容易生物降解。因此, 环酯化合物是设计合成可化学循环生物降解高分子的潜在单体。由对二氧环己酮(PDO)开环聚合合成的聚对二氧环己酮(PPDO), 因主链上同时含有脂肪族酯键和醚键, PPDO在水体环境中具有更好的降解性, 特别是在海水中的降解性远优于PLA和PCL等开环聚合的高分子, 并且PPDO较PLA和PCL更容易解聚为其聚合单体。另一方面, 容易解聚和在水体中更容易降解的高分子, 往往在聚合/成形加工过程和使用过程中存在热稳定性和服役稳定性问题。

源头设计可反复化学循环生物降解高分子材料时, 既希望材料有良好的可闭环化学循环性, 又要材料具有足够的加工和服役稳定性。因此, 热力学解聚倾向过高或过低分别存在各自的缺陷。最理想的热力学特征是具有中等 T_c 值; 基于单体平衡浓度-温度曲线, 在

服役温度下(如 $<100\text{ }^{\circ}\text{C}$), 单体平衡浓度低、聚合物热力学稳定性高; 在回收条件下(如 $150\sim 250\text{ }^{\circ}\text{C}$), 随温度升高, 单体平衡浓度与聚合物热力学解聚倾向快速提升。我们近年研究发现, 环醚-酯、环草酸酯、偕二取代环碳酸酯等环酯单体的聚合物具有比较理想降解稳定性和可闭环循环性。例如, PPDO和偕二取代的脂肪族聚碳酸酯(PDTC)就具有上述热力学特征, T_c 值分别为 271 和 $604\text{ }^{\circ}\text{C}$ (图3)。当催化剂、单体、溶剂等残留得到控制时, PPDO在常温下具有足够的服役稳定性; 在 $160\text{ }^{\circ}\text{C}$ 催化解聚-减压蒸馏下, PPDO仅 8 min 即可近乎完全解聚回收为对二氧环己酮单体, 且回收单体纯度可达到 99.9% [44]。相似地, 开环聚合合成的PDTC是一种具有良好常压热稳定性、力学强度和服役稳定性的结晶性聚合物; 在 $170\text{ }^{\circ}\text{C}$ 催化解聚-减压蒸馏下, PDTC解聚单体回收率和回收单体纯度均可达到 99% 以上(图7) [12]。

6 总结与展望

为了高分子材料产业的可持续发展, 需构建覆盖原料、生产、使用及废弃后处理的全生命周期技术体系。利用可再生的生物质资源、废弃高分子材料回收循环产物等可减少对不可再生的化石资源依赖, 有利于高分子材料可持续发展。可以预见, 未来采用废弃物回收循环的产物作为原料生产高分子材料的比例会越来越大, 在更远的将来甚至会超过化石资源。因此, 发展经济和有效的废弃高分子材料循环与升级回收技术越来越重要。对现有高分子材料, 其废弃物的处置应

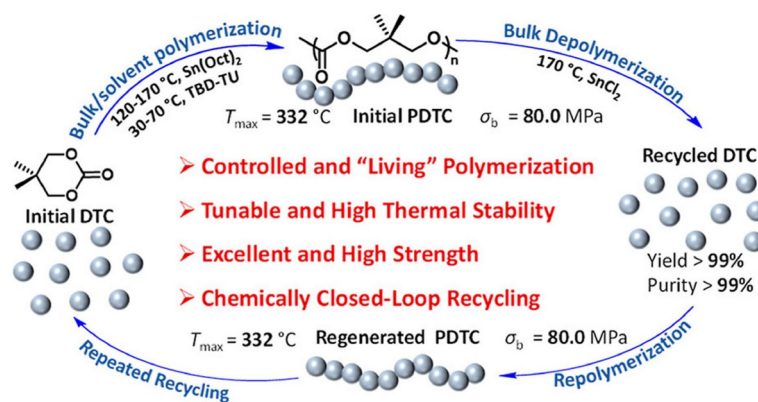


图 7 (网络版彩图)偕二取代的脂肪族聚碳酸酯的开环聚合制备与闭环化学循环 [12]

Figure 7 (Color online) Preparation and closed-loop chemical recycling of aliphatic polycarbonates via diacetyl substitution-mediated ring-opening polymerization [12].

从“减少废物污染”转向“废物价值重塑”, 研究能实现“同级”和/或“升级”回收的新原理和新方法, 发展回收产物性价比具有市场竞争力的绿色低碳回收循环技术, 既可减少化石能源消耗, 又可减少废弃物对环境污染, 符合绿色低碳的可持续发展需求. 对于新设计合成的高分子材料, 除了考虑其性能外, 还应考虑其可循环和易回收性: 一是设计合成全新的聚合物分子, 兼具必要性能和易化学循环/可反复化学循环性; 二是对现有聚合物分子进行易化学循环/可反复化学循环性化学改性(如引入共聚单体或可逆交联键), 在赋予易化学循环性的同时, 保持聚合物原有性能甚至提升性能或增加新的功能. 对于一次使用高分子材料制品, 还应考虑其在废弃环境中的可完全降解性, 设计合成的聚合物分子应兼具必要性能、易化学循环/可反复化学循环性和在自然界的完全生物降解性-可反复化学循环生物降解高分子材料, 以应对其废弃后可能面临的所有场景, 确保其废弃后要么被循环利用, 要么被自然界消纳, 这是一次性高分子制品的发展方向. 此外, 对于非一次性制品, 延长其使用寿命或服役期的任何

方法(如自修复、提升抗老化/环境耐受性等)都可以相对减少其废弃物的量, 即减少在一定时间内废弃物的积累量.

然而, 将上述循环/回收策略与理想材料设计推向产业实践, 必须直面现实中的核心挑战与多重目标间的艰难“权衡”. 首先, 技术可行性与经济竞争力之间存在根本矛盾. 例如, 追求极高的单体回收率或纯粹的闭环循环, 有可能伴随高能耗与复杂的分离纯化工艺, 导致成本攀升. 其次, 材料的高性能化与高效的解聚/降解能力常常相互制约, 赋予材料优异力学、热学性能的化学结构, 可能同时使其更稳定、更难降解回收. 此外, 实验室的“理想条件”与产业中复杂、混合的废弃物流以及波动的市场需求难以匹配. 因此, 未来的研究不能仅停留在验证循环的“可能性”, 更需致力于在这些关键的“权衡”中寻找最优解, 开发兼具循环性、实用性、经济性与环境效益的系统性方案. 以上途径和策略与物理机械回收等各种方法和途径彼此互补、统筹推进, 可望实现高分子材料产业的绿色低碳可持续发展.

致谢 本工作得到了中国石油天然气集团有限公司科技项目“石油基高分子材料绿色低碳发展战略研究”(编号: 2023DQ0709)的资助; 本实验室的徐世美、汪秀丽、陈琳、田国强等多位同事对本文的撰写也做出了贡献, 特此致谢.

参考文献

- 1 Qin B, Zhang X. *CCS Chem*, 2024, 6: 297–312
- 2 Scott S. *Nature*, 2021, 590: 363–364
- 3 Liu XH, Xu SM, Zhang F, Wang XL, Wang YZ. *Acta Polym Sin*, 2022, 53: 1005–1022 (in Chinese) [刘雪辉, 徐世美, 张帆, 汪秀丽, 王玉忠. 分子学报, 2022, 53: 1005–1022]
- 4 Wu YJ, Tian GQ, Zhang YY, Li H, Chen SC, Wu G, Wang YZ. *Chem Eng J*, 2025, 514: 163179
- 5 Yang R, Wei W, Xu G, Guo X, Wang Q. *Angew Chem Int Ed*, 2025, 64: e202504819
- 6 Chen XH, Wu G, Chen SC, Wang YZ. *Polymer*, 2023, 283: 126201
- 7 Zhang S, Xu W, Du R, Zhou X, Liu X, Xu S, Wang YZ. *Green Chem*, 2022, 24: 3284–3292
- 8 Zhang S, Xu W, Du R, Yan L, Liu X, Xu S, Wang YZ. *Nat Commun*, 2024, 15: 4498
- 9 Hong M, Chen EYX. *Nat Chem*, 2016, 8: 42–49
- 10 Nishida H, Yamashita M, Endo T, Tokiwa Y. *Macromolecules*, 2000, 33: 6982–6986
- 11 Duda A, Penczek S. *Macromolecules*, 1990, 23: 1636–1639
- 12 Dai J, Li H, Liu X, Zhang R, Chen SC, Tian G, Wu G, Wang YZ. *Macromolecules*, 2025, 58: 7924–7934
- 13 Save M, Soum A. *Macro Chem Phys*, 2002, 203: 2591–2603
- 14 Duda A, Kowalski A. Thermodynamics and Kinetics of Ring-Opening Polymerization. In: Dubois P, Coulembier O, Raques JM, Eds. *Handbook of Ring-Opening Polymerization*. Weinheim: Wiley-VCH, 2009
- 15 Elmanovich IV, Stakhanov AI, Zefirov VV, Pavlov AA, Lokshin BV, Gallyamov MO. *J SuperCrit Fluids*, 2020, 158: 104744
- 16 Bäckström E, Odelius K, Hakkarainen M. *Ind Eng Chem Res*, 2017, 56: 14814–14821

- 17 Pifer A, Sen A. *Angew Chem Int Ed*, 1998, 37: 3306–3308
- 18 Zhang Q, He J, Wei X, Shen C, Ye P, An W, Liu X, Li H, Xu S, Su Z, Wang YZ. *Angew Chem Int Ed*, 2024, 63: e202407510
- 19 Wei X, Shen C, Ye P, Liu X, Xu S, Wang YZ. *Mater Horiz*, 2025, 12: 4388–4395
- 20 Fan LX, Chen L, Zhang HY, Xu WH, Wang XL, Xu S, Wang YZ. *Angew Chem Int Ed*, 2023, 62: e202314448
- 21 Kamimura A, Ikeda K, Suzuki S, Kato K, Akinari Y, Sugimoto T, Kashiwagi K, Kaiso K, Matsumoto H, Yoshimoto M. *ChemSusChem*, 2014, 7: 2473–2477
- 22 Kumar A, von Wolff N, Rauch M, Zou YQ, Shmul G, Ben-David Y, Leitun G, Avram L, Milstein D. *J Am Chem Soc*, 2020, 142: 14267–14275
- 23 Lan J, Deng C, Zhao ZY, Wang YZ. *Green Chem*, 2024, 27: 1183–1193
- 24 Liu X, Zhao X, An W, Du R, Wu G, Xu S, Zhang F, Wang YZ. *Mater Horiz*, 2022, 9: 2993–3001
- 25 Chen H, Liu X, He Q, Zhang S, Xu S, Wang YZ. *Adv Mater*, 2024, 36: 2310779
- 26 Ahrens A, Bonde A, Sun H, Wittig NK, Hammershøj HCD, Batista GMF, Sommerfeldt A, Frølich S, Birkedal H, Skrydstrup T. *Nature*, 2023, 617: 730–737
- 27 Sun H, Ahrens A, Batista GMF, Donslund BS, Ravn AK, Schwibinger EV, Nova A, Skrydstrup T. *Green Chem*, 2023, 26: 815–824
- 28 Liao Y, Takahashi K, Nozaki K. *J Am Chem Soc*, 2024, 146: 2419–2425
- 29 Nguyen ST, Fries LR, Cox JH, Ma Y, Fors BP, Knowles RR. *J Am Chem Soc*, 2023, 145: 11151–11160
- 30 Li X, Liu L, Yu J, Liu X, Xu S, Wu G, Wang YZ. *Angew Chem Int Ed*, 2025, 64: e202422472
- 31 Zhao C, Liu X, Chang X, Xu S, Wang YZ. *Chem Eng J*, 2025, 523: 168313
- 32 Wang YZ. A recyclable and biodegradable polymer. In: *19th Bio-Environmental Polymer Society Annual Meeting*. Vienna, 2011
- 33 Yang K, Wang YZ. *Mater China*, 2011, 30: 25–34 (in Chinese) [杨科珂, 王玉忠. 中国材料进展, 2011, 30: 25–34]
- 34 Zhu JB, Watson EM, Tang J, Chen EYX. *Science*, 2018, 360: 398–403
- 35 Wang MY, Tu YM, Zeng QQ, Li K, Xiong W, Cai Z, Zhu JB. *Nat Chem*, 2025, 17: 1119–1128
- 36 Huang HY, Xie M, Wang SQ, Huang YT, Luo YH, Yu DG, Cai Z, Zhu JB. *J Am Chem Soc*, 2025, 147: 7788–7798
- 37 Cao Q, Tu YM, Fan HZ, Shan SY, Cai Z, Zhu JB. *Angew Chem Int Ed*, 2024, 63: e202400196
- 38 Li MQ, Luo ZX, Yu XY, Tian GQ, Wu G, Chen SC, Wang YZ. *Macromolecules*, 2023, 56: 2465–2475
- 39 Tu YM, Gong FL, Wu YC, Cai Z, Zhu JB. *Nat Commun*, 2023, 14: 3198
- 40 Fan HZ, Yang X, Chen JH, Tu YM, Cai Z, Zhu JB. *Angew Chem Int Ed*, 2022, 61: e202117639
- 41 Fan LX, Chen L, Zhang BB, Wang F, Xu S, Wang XL, Wang YZ. *Small*, 2025, 21: e05240
- 42 Xiao XX, Zhang Q, Bai TY, Chen ZX, Wang ZN, Bai JH, Chen L, Liu BW, Wang YZ. *Small*, 2024, 20: 2401429
- 43 Gu S, Xiao YF, Tan SH, Liu BW, Guo DM, Wang YZ, Chen L. *Angew Chem Int Ed*, 2023, 62: e202312638
- 44 Zhang W, Tian GQ, Wu G, Chen SC, Wang YZ. *Green Chem*, 2023, 25: 5517–5525

Chemical recycling and upcycling of polymeric materials

Xuehui Liu, Yu-Zhong Wang^{*}

National Engineering Laboratory of Eco-Friendly Polymeric Materials (Sichuan), The Collaborative Innovation Center for Eco-Friendly and Fire-Safety Polymeric Materials (MoE), State Key Laboratory of Advanced Polymer Materials, College of Chemistry, Sichuan University, Chengdu 610064, China

**Corresponding author (email: yzwang@scu.edu.cn)*

Abstract: Advancing the sustainable development of the polymer industry requires establishing a comprehensive life-cycle technological framework encompassing raw material sourcing, production, utilization, and end-of-life management. This paper highlights the importance of developing cost-effective recycling and upcycling technologies for polymer waste, which can reduce reliance on non-renewable fossil resources and mitigate associated environmental pollution. Particular emphasis is placed on discussing current methods and strategic approaches for the chemical recycling and upcycling of waste polymeric materials. For existing polymeric materials, waste management strategies must shift from merely focusing on “reducing waste pollution” to a paradigm of “recreating value from waste”. Research should prioritize novel principles and methodologies that enable “closed-loop” and/or “upcycled” recovery (i.e., “Recycling” and/or “Upcycling”), fostering the development of green, low-carbon recycling technologies capable of producing output with competitive market value. This not only reduces fossil energy consumption but also minimizes environmental pollution from waste. For newly designed and synthesized polymer materials, recyclability must be considered alongside material performance. There are two primary pathways proposed. The first involves designing and synthesizing entirely new polymers that offer both targeted performance and inherent chemical recyclability, preferably repeatable chemical recyclability—“Repeatably Chemically-Recyclable Polymers”. The second focuses on chemically modifying existing polymers by introducing features such as comonomers or reversible crosslinks to facilitate chemical recycling/repeatable chemical recyclability, while maintaining or even enhancing their original performance or adding new functionalities. For single-use polymeric products, complete environmental degradability should also be integrated into material design. The designed polymer molecules should integrate necessary performance, ease of chemical recycling/repeatable chemical recyclability, and complete biodegradability in nature (“Repeatably Chemically-Recyclable Biodegradable Polymers”). This can address all potential scenarios after disposal, ensuring that waste is either recycled or assimilated by the natural environment—a key direction for single-use polymer products. Through the complementary and coordinated implementation of these strategies alongside other recycling approaches, the polymer industry can progress toward a sustainable, green, and low-carbon future.

Keywords: recycling, upcycling, chemically-recyclable, repeatably chemically-recyclable

doi: [10.1360/SSC-2026-0002](https://doi.org/10.1360/SSC-2026-0002)