

· 综述 ·

废塑料升级化学回收制备金属-有机框架材料

温雪莹 冯玲玲 戴郅焜 胡桂新 牛冉 龚江*

(华中科技大学化学与化工学院 能量转换与存储材料化学教育部重点实验室 材料化学与服役失效湖北省
重点实验室 武汉 430074)

摘 要 塑料污染对生态环境与人体健康构成重大威胁, 发展高效绿色的废塑料回收利用技术迫在眉睫. 升级化学回收可将废塑料定向转化为高附加值化学品或功能材料, 被认为是实现循环经济的关键路径. 金属-有机框架(MOF)材料因具有高比表面积、可调孔径和丰富活性位点成为极具潜力的功能性材料. 以废塑料作为配体前驱体, 通过化学解聚获得有机酸并用于合成 MOF, 既能降低合成成本, 又能实现废塑料的高值化资源化利用. 本文综述了近年来废塑料升级回收为 MOF 材料的研究进展, 总结了各种合成策略, 并介绍了制备的 MOF 在吸附、界面水蒸发以及能源存储与转换领域的应用. 最后, 对当前面临的挑战及未来发展方向进行了分析与展望, 以期为废塑料资源化与高性能 MOF 材料合成的协同发展提供参考.

关键词 废塑料; 升级化学回收; 金属-有机框架材料; 太阳能界面水蒸发; 环境污染治理

引用: 温雪莹, 冯玲玲, 戴郅焜, 胡桂新, 牛冉, 龚江. 废塑料升级化学回收制备金属-有机框架材料. 高分子学报, doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.26162.

Citation: Wen, X. Y.; Feng, L. L.; Dai, Z. K.; Hu, G. X.; Niu, R.; Gong, J. Upcycling of waste plastics into metal-organic frameworks via chemical recycling. *Acta Polymerica Sinica* (in Chinese), doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.26162.

塑料是世界上使用最广泛的合成材料之一, 自上世纪初诞生以来, 因其成本低、重量轻、加工性好和耐久性高, 被广泛应用于包装、建筑、汽车、电子产品等领域^[1]. 全球每年生产约 4.3 亿吨塑料, 其中三分之二在不到一个月的时间内就变成垃圾, 被回收的仅是一小部分^[2]. 如果维持塑料使用后丢弃的传统线性经济模式, 到 2050 年, 海洋中的塑料含量将超过鱼类, 塑料生产将消耗全球石油产量的 20%, 120 亿吨塑料废物将被填埋或者堆积在自然环境中^[3,4]. 这些废塑料可以分解成微塑料, 进入海洋、鱼类和其他海洋生物^[5], 甚至人类肝脏、肾脏和胎盘中^[6], 对生态环境和人体健康构成重大威胁^[7,8]. 因此, 发展绿

色高效的废塑料回收和利用技术对于减轻全球环境问题和提高能源利用率具有重要意义

常见的废塑料回收方法包括能源回收(如焚烧)和物质回收(如机械回收、生物回收和化学回收)^[9-11]. 能源回收通常通过焚烧实现, 能够快速处理大量废塑料, 回收的热能还可用于发电. 但会产生包括多环芳烃等在内的多种有毒气体, 同时会产生大量粉尘烟雾和温室气体, 严重污染大气环境^[12]. 相较之下, 物质回收可以将废塑料回收成有价值的产品. 目前, 机械回收是将废塑料转化为再生材料的主要方法, 优点是工艺简单、成本低. 然而, 机械回收往往会导致回收材料结构性能下降, 限制其实用价值^[13]. 生物回收是利

黄葆同/冯之榴先生诞辰 105 周年纪念专辑; 2026-05-09 收稿, 2026-06-11 录用,
基金项目: 国家自然科学基金(基金号 52373099)资助项目.

* 通信联系人, E-mail: gongjiang@hust.edu.cn

doi: 10.11777/j.issn1000-3304.2026.26162; CSTR: 32057.14.GFZXB.2026.7665

网络出版.

用微生物或酶的作用,将废塑料解聚为小分子单体,优点是低能耗,环境可持续^[14,15],但由于酶催化剂的热稳定性差、成本高、寿命短、回收和重复使用困难等原因,使其难以实现废塑料大规模工业化生物回收.而化学回收旨在通过热解、加氢裂解和溶剂解等化学工艺^[16~21]将塑料转化为有价值的化学品,被认为是目前最有希望实现废塑料回收与利用,并使其走向循环经济的方法.近年来,废塑料的化学回收正逐步从“闭环回收”向“升级回收”转变,不再仅将废塑料降解为单体,而是定向转化为高附加值化学品或者功能材料^[22].

金属-有机框架(MOF)材料是一类由金属离子与有机配体通过配位键自组装形成的多孔晶态材料,具有高比表面积、可调的孔径和丰富的活性位点.过去数十年间,研究者通过选用不同有机配体与金属离子配位,合成了一系列结构多样的MOF,可实现孔径、表面形貌和比表面积等关键性能的定向调控.对苯二甲酸作为典型的二元羧酸类有机配体,被广泛用于制备MOF-5^[23]、UiO-66^[24]、MIL-88B^[25]、MIL-53^[26]和MIL-101^[27]等多种经典MOF材料.为有效降低MOF制备成本,同时实现固体废弃物的高值化利用,国内外学者逐步探索以废塑料作为有机配体前驱体的废塑料升级回收策略.Huang等^[28]率先以废聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)为配体源,制备NTHU-3-TA·H₂O、MOF-5、MIL-53和MIL-101等一系列MOF材料.PET分子链中富含85%的对苯二甲酸结构单元,可为废弃PET向高附加值MOF的转化提供充足且匹配的有机配体前体^[29].更为重要的是,该策略正逐步拓展至更广泛的聚合物体系.研究表明,PET、聚对苯二甲酸丁二醇酯(PBT)、聚对苯二甲酸-己二酸丁二醇酯(PBAT)、聚乳酸(PLA)、聚酰胺(PA)和聚酰亚胺(PI)等含可降解官能团的聚合物^[30~34],均可通过化学解聚得到相应的有机酸,例如对苯二甲酸、乳酸、均苯四甲酸和己二酸.这些有机酸与多种MOF配体的分子结构高度契合,能够直接用于构筑MOF材料,从而为废塑料的高值化、资源化利用开辟了全新路径.

另一方面,MOF凭借其丰富的多孔结构、有序的纳米通道、可设计的结构和可调的理化性质等优势,被广泛应用于吸附^[35~37]、界面水蒸发

及其集成^[38~41],以及能源存储与转换^[42~44]等领域.例如,得益于高的比表面积、丰富的多孔结构和可精准修饰的孔道表面,MOF能高选择性吸附与富集目标分子,成为水体污染物去除、稀有金属回收和气体捕获与分离的理想材料^[45,46].而MOF的亲水性表面和独特的孔道结构,能快速将水输送至蒸发表面,且其表面官能团能有效削弱水分子间氢键网络,显著降低蒸发潜热,继而使其成为极具潜力的界面水蒸发材料^[47,48].与此同时,MOF的金属簇与有机配体的协同作用,可构建高效的活性位点,提升催化性能^[30,49].有序的纳米通道与高孔隙率,还能有效调控物质传输与热量传递,助力界面水蒸发与产电集成体系的效率提升^[50].此外,MOF因多孔结构可调、组分与功能可精准设计、活性位点丰富且暴露充分等核心特性,在电极材料、电催化剂、电池隔膜等储能材料领域展现出巨大应用潜力^[51].将废塑料升级回收为功能性MOF材料,既能实现废塑料高值化资源化利用,又能降低MOF合成成本、拓宽应用前景,将其广泛应用于吸附、太阳能界面水蒸发和能源存储与转换等领域,兼具环境保护、资源循环与高性能材料制备三重优势.

本综述系统梳理了近年来废塑料升级回收为MOF材料的研究现状(图1),总结了各类制备策略,并附有相关示例(表1),综述了废塑料衍生MOF材料在吸附、界面水蒸发及其集成和能源存储与转换等领域的应用进展,并对当前面临的挑战与未来发展趋势进行了分析与展望.

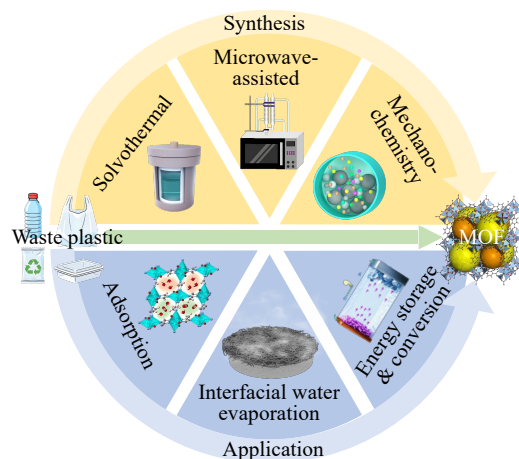


Fig. 1 Upcycling of waste plastics into MOF and their applications.

Table 1 The preparation methods of waste plastic-derived MOF materials and the corresponding specific surface area, yield, performance strengths and weaknesses.

Waste plastic	MOFs	Preparation method	BET surface area ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)	Yield (%)	Performance strength and weakness	Ref.
PET	NTHU-3-TA·H ₂ O	One-step solvothermal method; 160 °C, 72 h (degradation and coordination)	–	–	Greater in size and better in luminous performance; Harsh synthesis conditions	[28]
	TP-MIL-101(Cr)	Two-step solvothermal method; 200 °C, 1 h (degradation); 180 °C, 6 h (coordination)	2591.9	63.00	High specific surface area and high-water uptake capacity; Low crystallinity	[52]
	OP-MIL-53(Al, Fe)	One-step solvothermal method; 150 °C, 12 h (degradation and coordination)	894.9	–	High specific surface area and high photocatalytic activity; Crystal size inhomogeneity	[52]
	UiO-66(Zr)	One-step solvothermal method; 120 °C, 24 h (degradation and coordination)	811.9	–	High specific surface area and high photocatalytic activity; Low crystallinity	[52]
	MIL-53(Al)	Two-step solvothermal method; 200 °C, 7 h (degradation); 140 °C, 15 h (coordination); 400 °C, 3 h (reactivation)	1112	80.50	Abundant active sites and high H ₂ S adsorption capacity; Ligands tend to block the channels	[53]
	MIL-101(Cr)	One-step solvothermal method; 210 °C, 8 h (degradation and coordination)	3055.5	70.89	High specific surface area; Poor alkali resistance	[54]
	NiCo-BDC	One-step solvothermal method; 180 °C, 16 h (degradation and coordination)	62	52.00	High charge storage capacity and high power density; Low specific surface area	[55]
	MIL-101(Fe)@PET	Two-step microwave-assisted method; 3 F, 10 min (degradation); 6 F, 30 min (coordination)	1314	–	High adsorption capacity and fast adsorption rate; Low plastic utilization	[56]
	UiO-66	One-step microwave-assisted method; 200 °C, 30 min (degradation and coordination)	1200	–	High microporosity and high adsorption capacity; Enhanced reo-topology defect	[57]
	La-MOF/Zr-MOF/ Ni-MOF/Co-MOF/ Mn-MOF/Ca-MOF	Two-step mechanical ball milling; 30 Hz, 2 h at room temperature (degradation); 30 Hz, 2 h at room temperature (coordination)	143/149.5/ 46.2/45.6/ 36.3/18.1	78/56/ 90/54/ 77/58	Large-scale upcycling of plastic; Low crystallinity and low specific surface area	[58]

Table 1 Continued.

Waste plastic	MOFs	Preparation method	BET surface area ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)	Yield (%)	Performance strength and weakness	Ref.
	MIL-53Al	Two-step trace solvents-assisted ball milling; 400 rpm, 2.5 h at room temperature (degradation); 400 rpm, 3 h at room temperature with trace solvents (coordination)	590	–	High specific surface area; Structural defect	[59]
PLA	Mg-MOF	Two-step mechanical ball milling; 30 Hz, 2 h at room temperature (degradation); Stirring at room temperature, 24 h	4.3	–	Uniform morphology; Low crystallinity and low specific surface area	[60]
	ZnBLD	One-step solvothermal method; 110 °C, 48 h (degradation and coordination)	–	–	Excellent chiral separation; Easily hydrolysable backbone	[61]
	Zn-LA/Ca-LA	One-step solvothermal method; 160 °C, 4 h and 110 °C, 12 h (degradation and coordination)	–	–	High crystallinity and hydrophilic surface; Poor heat and moisture resistance	[32]
PBT	Ni-POMOF	One-step solvothermal method; 180 °C, 72 h (degradation and coordination)	–	–	High crystallinity; Polyoxometalates block the channels	[30]
PBAT	Co/Fe-MOF	One-step solvothermal method; 180 °C, 24 h (degradation and coordination)	46.64	–	Broad-band optical absorption, high-efficiency photothermal conversion and water transport capacity; Low specific surface area	[31]
PA66	Co-ADP	Two-step solvothermal method; 200 °C, 24 h (degradation); 90 °C, 5 h (coordination); stirring at room temperature, 2 h (ion exchange)	64	–	Flexible & rigid coordination; Low specific surface area	[33]
PI	Fe-BTEC	Two-step solvothermal-solution stirring method; 180 °C, 18 h (degradation); Stirring at room temperature, 24 h (coordination)	–	–	Stronger light absorption and high-efficiency charge transfer; Low crystallinity	[34]
	Ba-BETC	One-step solvothermal method; 210 °C, 24 h (degradation and coordination)	23	–	Form stable structures with metal; Low specific surface area	[62]

1 废塑料制备 MOF

MOF 是一类由无机金属中心(金属离子或金属簇)与有机配体通过配位键自组装形成的晶态多孔材料. 在 MOF 的合成中, 金属节点与有机配体的多元配位模式使 MOF 展现出多样化的拓扑结构、孔隙特性和化学稳定性等. 通常情况下, 过渡金属、碱金属及稀土金属因其多样的配位数、氧化态和配位几何构型, 常被用作合成 MOF 的金属节点. 含有氧或者氮供体原子的有机分子, 例如羧酸类和咪唑类化合物, 被选作有机配体与金属离子配位. 然而, 传统的 MOF 合成大多依赖高纯度的有机配体, 例如对苯二甲酸、乳酸、均苯四甲酸和己二酸, 其昂贵的成本成为限制 MOF 大规模工业化应用的主要瓶颈之一. 研究表明, PET、PBT、PBAT、PLA、PA 和 PI 等含可降解官能团的聚合物, 均可通过化学解聚得到与多种 MOF 配体的分子结构高度契合的有机酸

(如, 对苯二甲酸、乳酸、均苯四甲酸和己二酸), 这为以废塑料为原料制备 MOF 提供了可能(图 2). 而废塑料在降解过程中, 除了生成目标有机配体外, 还不可避免地产生一系列可以调节 MOF 生成或诱导缺陷 MOF 的形成的降解副产物. 一方面, 降解副产物作为结构调节剂调控废塑料制备 MOF 成核与生长过程, 继而可以调控 MOF 尺寸和比表面积等性质^[33,63,64]. 另一方面, 降解副产物诱导缺陷 MOF 形成, 创造更多开放金属位点或不饱和配位位点, 还可以调节 MOF 的孔道结构和表面性质^[57]. 因此, 探索一种既高效又绿色的废塑料制备 MOF 的方法至关重要. 这不仅为废塑料的高值化升级回收提供了新思路, 同时也为低成本、大规模制备 MOF 提供了可能.

1.1 溶剂热法

溶剂热法被认为是最通用的废塑料制备 MOF 策略. 2011 年, Huang 等^[28]采用溶剂热法, 以废弃 PET 塑料为有机配体源, 合成了系列 MOFs

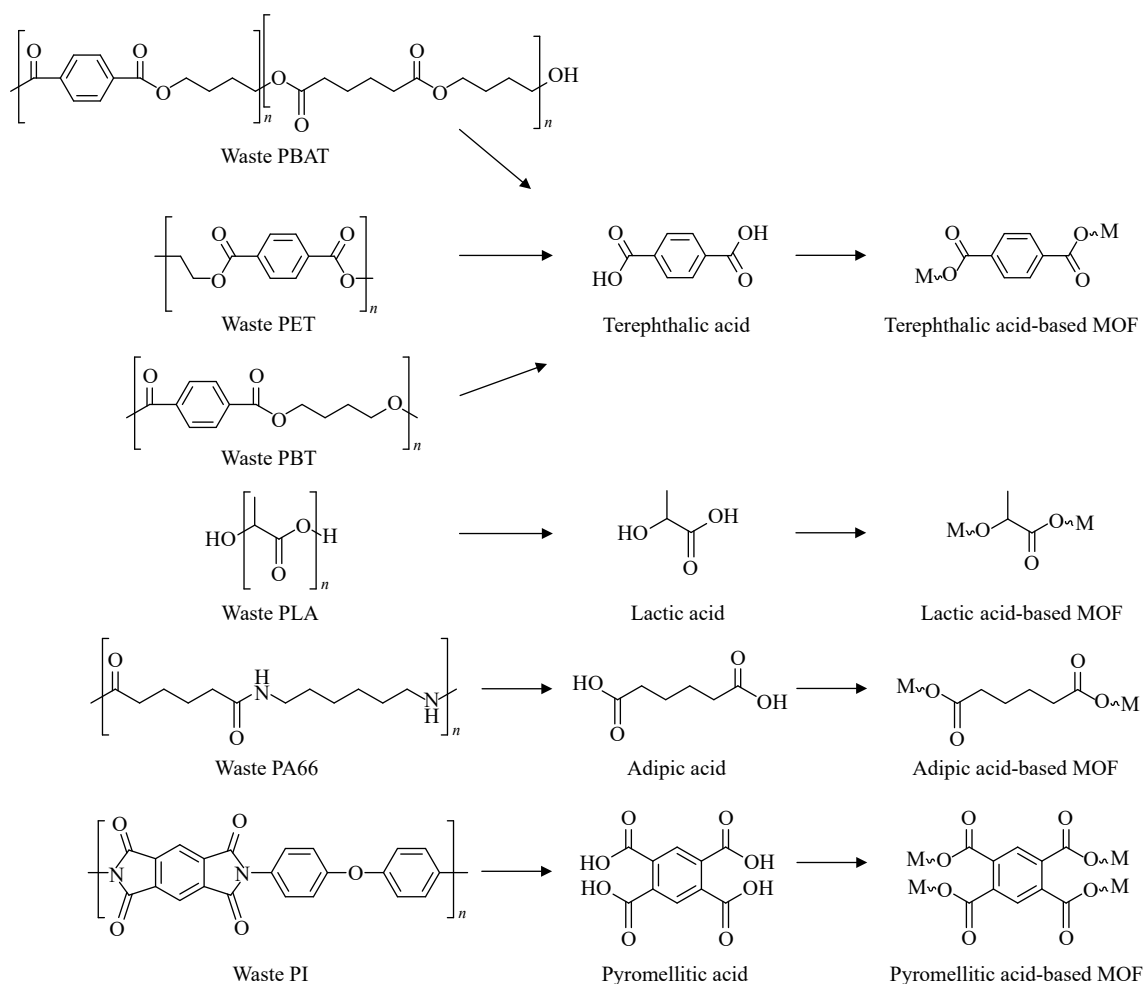


Fig. 2 Reaction pathways for the degradation of waste plastics and the synthesis of MOF.

(NTHU-3-TA·H₂O 和 (H₂tmdp) [Zn₂(HPO₄)₂(BDC)], 图3(a)). 该方法使用磷酸作调节剂, 废弃PET和三(2-氨基乙基)胺或4,4-三亚甲基二吡啶作为有机配体, 氯化锌作为金属源, 于160 °C加热3天成功合成了系列MOFs. 此外, 在同一反应体系中制备了MOF-5、MIL-53和MIL-101. 废塑料制备MOF的溶剂热方法主要可归纳为三类. 第一是两步溶剂热-溶液搅拌法, 即同样先通过酸/碱水解、醇解或者糖醇解等方式对废塑料进行解聚得到有机酸或有机酸盐单体, 接着将有机酸或有机

酸盐、金属盐和/或适量无机/有机溶剂置于常温搅拌, 从而合成MOF. 第二是两步溶剂热法, 即同样先通过溶剂解对废塑料进行解聚, 随后分离纯化得到有机酸或有机酸盐单体; 接着将有机酸或有机酸盐、金属盐和/或适量无机/有机溶剂置于高压反应釜中, 最终制得MOF. 第三是一步溶剂热法, 即直接以废塑料作为配体源, 将废塑料、金属盐和无机/有机溶剂一同加入高压反应釜, 同时实现废塑料的解聚与MOF的配位组装从而制得MOF.

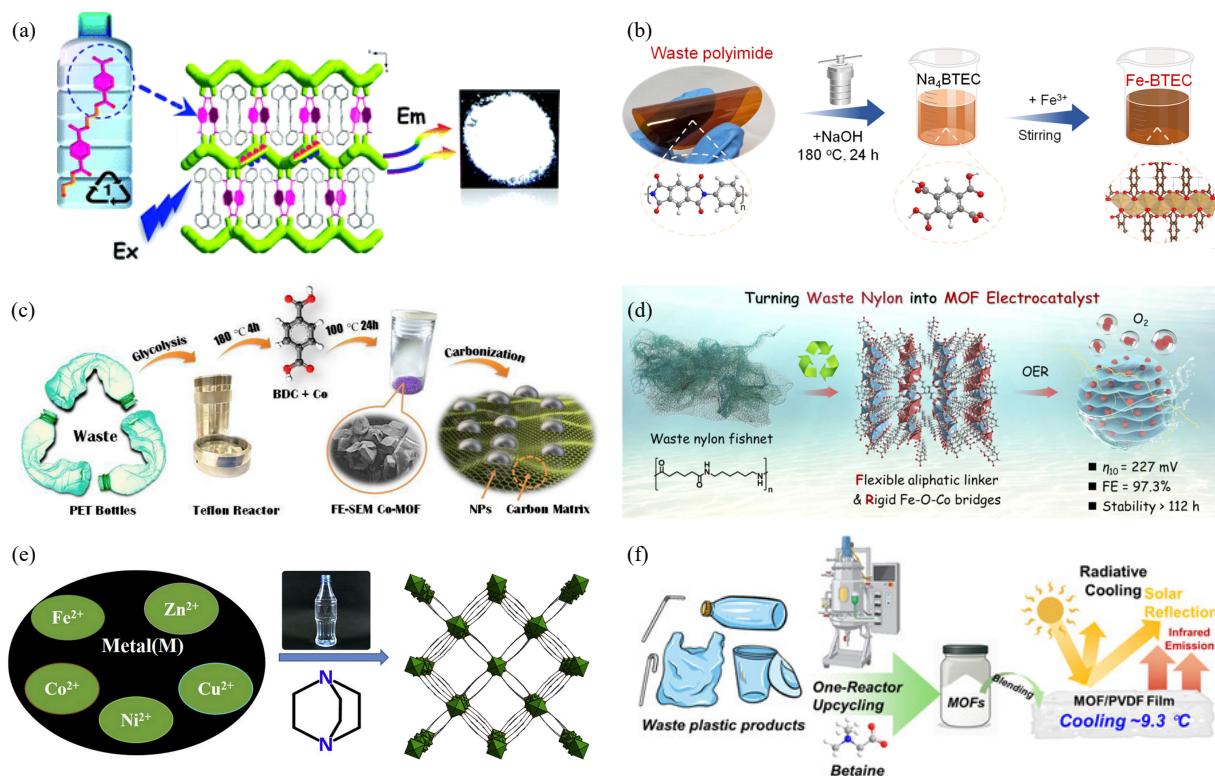


Fig. 3 (a) Upcycling of PET into a series of MOFs via a solvothermal method (Reprinted with permission from Ref. [28]; Copyright (2011), the Royal Society of Chemistry); (b) Upcycling of PI into Fe-BTEC via a two-step solvothermal-solution stirring method (Reprinted with permission from Ref. [34]; Copyright (2025), John Wiley & Sons, Inc. Open Access); (c) Upcycling of PET into Co-MOF via a two-step solvothermal method (Reprinted with permission from Ref. [42]; Copyright (2020) Elsevier); (d) Upcycling of PA66 into Co-ADP via a two-step solvothermal method (Reprinted with permission from Ref. [33]; Copyright (2026), Elsevier); (e) Upcycling of PET into a series of MOFs via a one-step solvothermal method (Reprinted with permission from Ref. [70]; Copyright (2016), Elsevier); (f) Upcycling of PET and PLA into a series of MOFs via a one-step solvothermal method (Reprinted with permission from Ref. [32]; Copyright (2026), John Wiley & Sons, Inc.).

Liu 等^[34]采用两步溶剂热-溶液搅拌法将废弃PI升级回收为Fe-BTEC (图3(b)). 即先将PI在高压反应釜中通过碱性水解在180 °C反应18 h获得均苯四甲酸钠溶液. 接着, 将九水合硝酸铁加入均苯四甲酸钠溶液中常温搅拌24 h获得Fe-BTEC. 此外, 在同一反应体系中还成功制备了Ba-BTEC. 但两步溶剂热-溶液搅拌法合成的

MOF结晶性较差, 且金属离子对废塑料降解的有机配体亲和力要求高, 难以普适化应用.

两步溶剂热法通过持续且可控的能量输入, 为废塑料降解与MOF配位组装过程提供了充足的能量, 最终获得的MOF材料表现出高结晶度和高比表面积. 目前, 通过两步溶剂热法以PET为前驱体制备了多种金属基MOF材料, 如

Ni-MOF^[65]、Ca-MOF^[66]、MIL-101(Cr)^[52,67]、Zn-MOF^[68]、UiO-66^[69]和MIL-53(Al)^[53]等。其中, MIL-101(Cr)、UiO-66和MIL-53(Al)的比表面积最高分别为2591.9、1255和1112 m²·g⁻¹。Al-Enizi等^[42]采用两步溶剂热法将PET升级回收为MOF-5和Co-MOF(图3(c)). 即先将PET在高压反应釜中通过糖酵解在160 °C反应4 h获得高纯度对苯二甲酸。接着, 以*N,N*-二甲基甲酰胺(DMF)为溶剂, 使硝酸锌或者硝酸钴和对苯二甲酸在DMF中发生配位反应, 于100 °C反应24 h成功合成了MOF-5和Co-MOF。另外, 两步溶剂热法还可以拓展到更多废塑料体系, 例如废弃尼龙66(PA66)。Zhang等^[33]将废弃尼龙渔网在高压反应釜中通过碱性水解在200 °C反应24 h制得PA66降解液, 其中主要成分为己二酸二钠和1,6-己二胺。接着在PA66降解液中加入六水合硝酸钴, 其中钴离子和己二酸根离子发生配位反应, 于90 °C反应5 h生成Co-ADP, 后加入铁离子搅拌2 h生成Co/Fe-ADP(图3(d)). 采用两步溶剂热法合成的MOF通常具有结晶度高、晶型完整且物相较纯的优点。然而, 该方法的局限性在于PET解聚及后续纯化过程涉及复杂后处理, 包括酸碱中和、产物分离和盐废料的去除, 流程繁琐且耗时。

为了简化操作流程并提升原子经济性, 研究者开始探索通过一步溶剂热法直接驱动PET降解并同步配位组装为高附加值的MOF材料。Raja等^[70]报道了以废弃PET塑料为直接配体源, 通过一步溶剂热法合成了一系列MOFs, 命名为[M₂(BDC)₂(DABCO)], 其中M为Fe、Co、Ni、Cu和Zn(图3(e)). 由于PET的高化学稳定性, 常规的MOF合成条件难以使其解聚。为此, 研究人员在反应体系中引入微量盐酸或氢氧化钠作为解聚促进剂, 利用酸或碱催化PET酯键的水解, 释放出对苯二甲酸配体, 进而与金属离子配位组装制成MOF。除此之外, 甲酸^[71]和冰醋酸^[72]等弱酸也可作为废塑料一步溶剂热合成MOF的调节剂。例如, Chen等^[54]以甲酸为调节剂, 采用一步溶剂热实现废弃PET升级化学回收为MIL-101(Cr), 比表面积高达3055.5 m²·g⁻¹。尽管上述酸碱辅助的一步溶剂热法简化了废塑料升级回收为MOF的流程, 但外加酸碱可能带来设备腐蚀、后处理负担等问题。此外, 酸碱环境可能干扰特定金属离

子的配位平衡, 影响MOF的成核与晶体生长过程, 导致产物结构缺陷或纯度下降。因此, 在追求流程简化的同时, 如何规避外加助剂带来的负面影响, 开发更加温和、普适性更强的一步法转化策略, 成为该领域亟待突破的关键方向。Yun等^[52]采用超微ZnO纳米粒子水分散液显著加速PET的中性水解过程, 无需消耗高能耗或酸碱辅助。通过一步溶剂热法将PET水解浆料直接作为配体与溶剂, 实现多种具有优异比表面积的MOFs(包括MIL-101(Cr)、UiO-66(Zr)、UiO-66(Ce)、MIL-53(Al)和MIL-53(Al,Fe))的一步合成。其中, MIL-101(Cr)、UiO-66(Zr)、MIL-53(Al)和MIL-53(Al, Fe)比表面积分别最高为1809.5、921.6、963.3和1413 m²·g⁻¹。Wu等^[32]采用环境友好且高效的甜菜碱有机催化剂, 证实一步溶剂热法可以在不同聚酯基材(例如, PET和PLA)及金属前驱体(Zn²⁺、Ni²⁺、Co²⁺和Ca²⁺)中具有广泛适用性, 可制备出相纯度高、结晶度优异、形态可控且结构特性可调的MOFs(Zn-BDC、Ca-BDC、Ni-BDC、Co-BDC、Zn-LA和Ca-LA, 图3(f)). 另外, 一步溶剂热法还可以拓展到更多废塑料体系(如PLA^[61]、PBAT^[31]和PBT^[30]), 制备了MOF-1201、MOF-1203、ZnBLD、Ca-LA、Co-MOF和Ni-POMOF等。一步溶剂热法突破了传统多步工艺中解聚与合成分离的局限, 在同一反应体系内实现了废塑料的原位降解与MOF的配位组装, 简化了操作流程, 并提升了原子经济性, 具有后处理简单、产率高和处理成本低等优势。

1.2 微波辅助法

传统的溶剂热法升级回收废塑料为MOF通常存在高能耗与苛刻的反应条件(通常需要高温100~260 °C和高压)、反应耗时(通常12~48 h)、产率低等缺点。微波辅助法作为一种简单、绿色且高效的合成方法, 已被应用于废塑料升级回收为MOF。与传统溶剂热依赖热传导的加热机制不同, 微波加热通过电磁场与反应体系中极性分子(如DMF和水)或者离子间的相互作用, 通过分子快速偶极振动实现原位产热, 使反应体系快速且均匀升温, 有效缓解了传统加热中存在的温度梯度与局部过热问题。这种快速升温模式能够在短时间内达到反应所需的临界温度, 有利于大量晶核同步均匀生成, 从而抑制晶粒异常长大。与此同时, 微波场提供的能量还可显著促进金属离

子与有机配体之间的配位组装过程, 加快晶体生长与结构成型, 进一步缩短整体反应周期. 因此, 微波辅助法在废塑料升级回收为 MOF 的过程中展现出反应时间显著缩短、产物结晶度高、晶粒尺寸均一以及合成效率大幅提升等多重优势. Wang 等^[56]采用了两步微波辅助法实现在废弃 PET 塑料上原位生长了 MIL-101(Fe) (图 4(a)). 首先将废弃 PET 塑料片置于乙二醇和氢氧化钠的混合体系中, 通过微波辅助加热 10 min 快速完成解聚反应, 生成对苯二甲酸二钠中间体. 随后, 向反应体系中加入硝酸调节 pH, 使对苯二甲酸配体原位析出. 最终, 在微波辐照作用下 30 min, 释放出的对苯二甲酸配体与铁离子发生配位组装, 在 PET 基底上直接生长出 MIL-101(Fe) 晶体. 为了简化操作流程、提升合成效率, Waribam 等^[57]采用一步微波辅助法以 PET 为前驱体合成了 UiO-66. 即将八水合氧氯化锆溶解于盐酸、乙酸和去离子水的混合溶液, 放入 500 瓦功率的微波反应器在 200 °C 反应 30 min, 生成 UiO-66 (图 4(b)). Jery 等^[73]采用相似的方法将氯化锆或四水合氯化镧溶解于 DMF、乙酸和去离子水的混合溶液中, 在微波反应器中 160 °C 反应 45 min,

成功制成了 Zr-MOF 和 La-MOF. 一步微波辅助法还可以将废塑料生成功能化的 MOF. 例如, Wang 等^[74]将 PET 和 2-氨基对苯二甲酸加入 DMF 和乙酸的混合溶液中, 以 650 瓦功率反应 30 min 成功制备 UiO-66-NH₂ (图 4(c)). 另外, 微波辅助法凭借其独特的体相加热机制与快速成核动力学, 在 MOF 晶体形貌调控方面也展现出显著优势. 由于微波能够实现对反应体系的整体均匀加热, 避免了传统加热方式中存在的温度梯度, 促使大量晶核在短时间内同步竞争生长, 抑制了晶体的过度生长与团聚现象. 因此, 微波辅助法更易获得尺寸均匀、形貌规整且结晶度高的 MOF 晶体. 例如, 前述通过微波辅助法制备的 MIL-101(Fe)^[56]、UiO-66^[57]和 UiO-66-NH₂^[74], 均呈现出尺寸均匀的正八面体晶体形貌, 验证了该方法在晶体生长控制方面的独特优势.

1.3 机械化学法

在废塑料向高附加值 MOF 材料转化的技术路线中, 微波辅助合成法已展现出超越传统溶剂热的显著优势, 成为推动该领域绿色化、高效化的重要技术方案. 如前所述, 微波加热凭借其内加热、均匀升温、极速升温的独特机制, 打破了

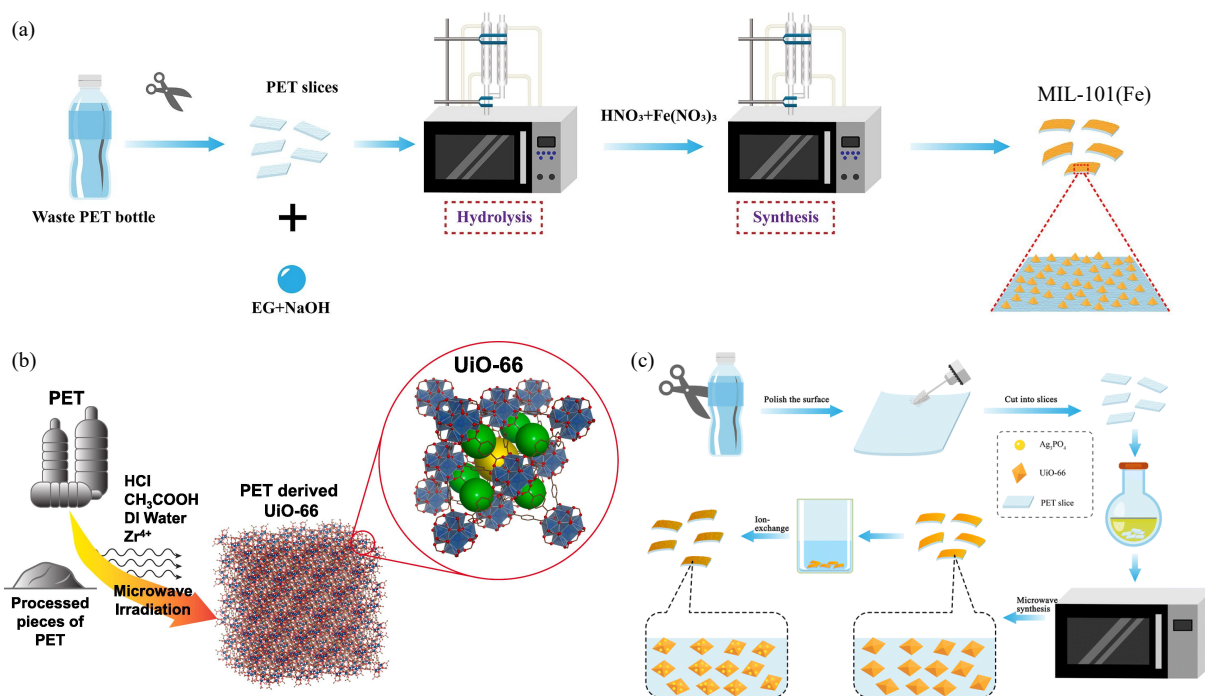


Fig. 4 (a) Upcycling of PET into MIL-101(Fe) *via* a two-step microwave-assisted method (Reprinted with permission from Ref. [56]; Copyright (2024), Elsevier); (b) Upcycling of PET into UiO-66 *via* a one-step microwave-assisted method (Reprinted with permission from Ref. [57]; Copyright (2023), Elsevier); (c) Upcycling of PET into UiO-66-NH₂ *via* a one-step microwave-assisted method (Reprinted with permission from Ref. [74]; Copyright (2023), the Royal Society of Chemistry).

传统热传导加热的物理局限。一方面，它通过电磁场与极性分子(如DMF和水)及离子的相互作用，实现原位产热，消除了传统加热中难以避免的温度梯度和局部过热问题，确保了反应体系中晶核的同步、均匀生成，抑制了晶体团聚与晶型缺陷，从而提升了MOF产物的结晶度与孔隙结构规整度；另一方面，微波场能够加速PET等废弃塑料的原位解聚动力学，快速断裂酯键生成高纯度有机配体，并同步强化金属离子与配体的配位组装效率，缩短了整体反应周期，实现了节能、减排与高纯度产物的多重目标。然而，微波辅助法的核心仍依赖于大量极性有机溶剂作为传热介质与反应介质，这在一定程度上仍未能完全规避挥发性有机废液排放与溶剂回收成本高的问题。此外，微波反应设备在高功率、连续化放大生产中面临工程挑战，难以实现废塑料升级回收为MOF的规模化应用。因此，亟需开发一种无溶剂/少溶剂、常温、常压、易于放大的废塑料升级回收为MOF的技术。在此背景下，机械化学法通过研磨介质(如钢球和氧化锆球)的高速碰撞、剪切与摩擦，将机械能直接转化为化学反应所需的活化能，在无溶剂、常温常压下实现废塑料解聚与MOF合成反应，为废塑料的绿色升级回收提供了极具前景的解决方案。

自20世纪80年代以来，机械化学法在合成金属配合物领域日益受到关注，广泛应用于MOF、共晶化、无机材料及超分子等研究^[75-79]。现有研究不仅证实了机械化学合成的高效性与便捷性，初步揭示了固相反应物间的力学作用机制，还实现了从单核配合物、配位笼到一维至三维多孔有序MOF等各类金属配合物的快速可控制备^[75,76]。该方法因室温无/少溶剂的绿色属性、高效高产的优势，以及可兼容难溶性金属前驱体、副产物清洁、原料廉价易得的特点，有效突破了传统液相合成的诸多局限，现已成为环保、经济合成MOF的主流替代策略。然而，现有机化学MOF合成研究多依赖石油基小分子配体，不仅原料成本高，还加剧了石油资源消耗，不符合循环经济与双碳目标的发展要求。与此同时，PET、PLA等废弃聚酯塑料中含有可通过解聚转化为MOF配体的结构单元，是制备MOF有机配体的理想可再生原料。2021年，Štrukil团队^[80]开发的PET力化学降解技术，验证了机械力可在室

温无溶剂条件下，将废弃PET高效转化为对苯二甲酸配体前驱体，为机械化学MOF合成的原料拓展提供了可能。受此启发，本课题组于2022年提出了将废弃PET定向转化为MOF材料的两步机械球磨法^[58](图5(a))。该方法全程无需使用有毒有机溶剂，反应可在室温常压条件下完成，不仅整体制备周期短、操作流程简便，还具备优异的工业化规模化放大潜力。采用该方法制备的MOF产物(如La-MOF、Zr-MOF、Ni-MOF、Co-MOF、Mn-MOF和Ca-MOF)均具有与理论结构匹配的晶型，呈现出纳米颗粒堆叠形成的多孔形貌，兼具微孔-介孔分级结构。研究表明，在机械力作用下，PET首先经机械力和氢氧化钠驱动固相碱性解聚生成对苯二甲酸根，随后与La³⁺、Zr⁴⁺、Ni²⁺、Co²⁺、Mn²⁺和Ca²⁺等金属离子配位，形成短程有序的结构“碎片”；随着球磨时间延长，这些结构单元逐步自组装成长程有序的MOF晶体，揭示了机械力作用下“解聚—配位—结晶”的分步反应路径。在放大实验中，实现了单批次60.1 g Ni-MOF的放大制备，产率达93%，展示了机械球磨法规模化升级回收废弃PET为MOF的潜力。接着，通过两步机械球磨法以PET为前驱体制备了多种金属基MOF，例如Ba-BDC^[81]、Fe-BDC^[64]、La-MOF^[82]和Ca-BDC^[83]。另外，双螺杆挤出机被用于固态条件下的机械化学合成，Li等^[84,85]使用双螺杆挤出机将废弃PET升级回收为对苯二甲酸钙(CaTP)，为废塑料基MOF的工业化连续化合成提供了新的可行路径。

两步机械球磨法的提出实现了室温无溶剂条件下废弃PET向MOF的转化，为废塑料的绿色高值化利用开辟了全新路径。但受限于固相反应的分子扩散壁垒，并且体系中存在铁屑和降解不完全的PET粉末等大量不溶性杂质，导致该方法存在MOF结晶度不足、比表面积偏低、形貌调控难度大等固有瓶颈，难以制备满足实际应用需求的高性能MOF材料。针对此问题，本课题组提出了球磨-溶液共混策略，旨在综合2种方法的优势：以球磨步骤实现废塑料的绿色高效降解，以溶液共混搅拌步骤促进MOF晶体的有序生长。Fan等^[86]以废弃PET为原料，先通过室温球磨实现PET固相解聚得到对苯二甲酸根，再在DMF溶液中与金属盐反应完成MOF可控晶化，通过

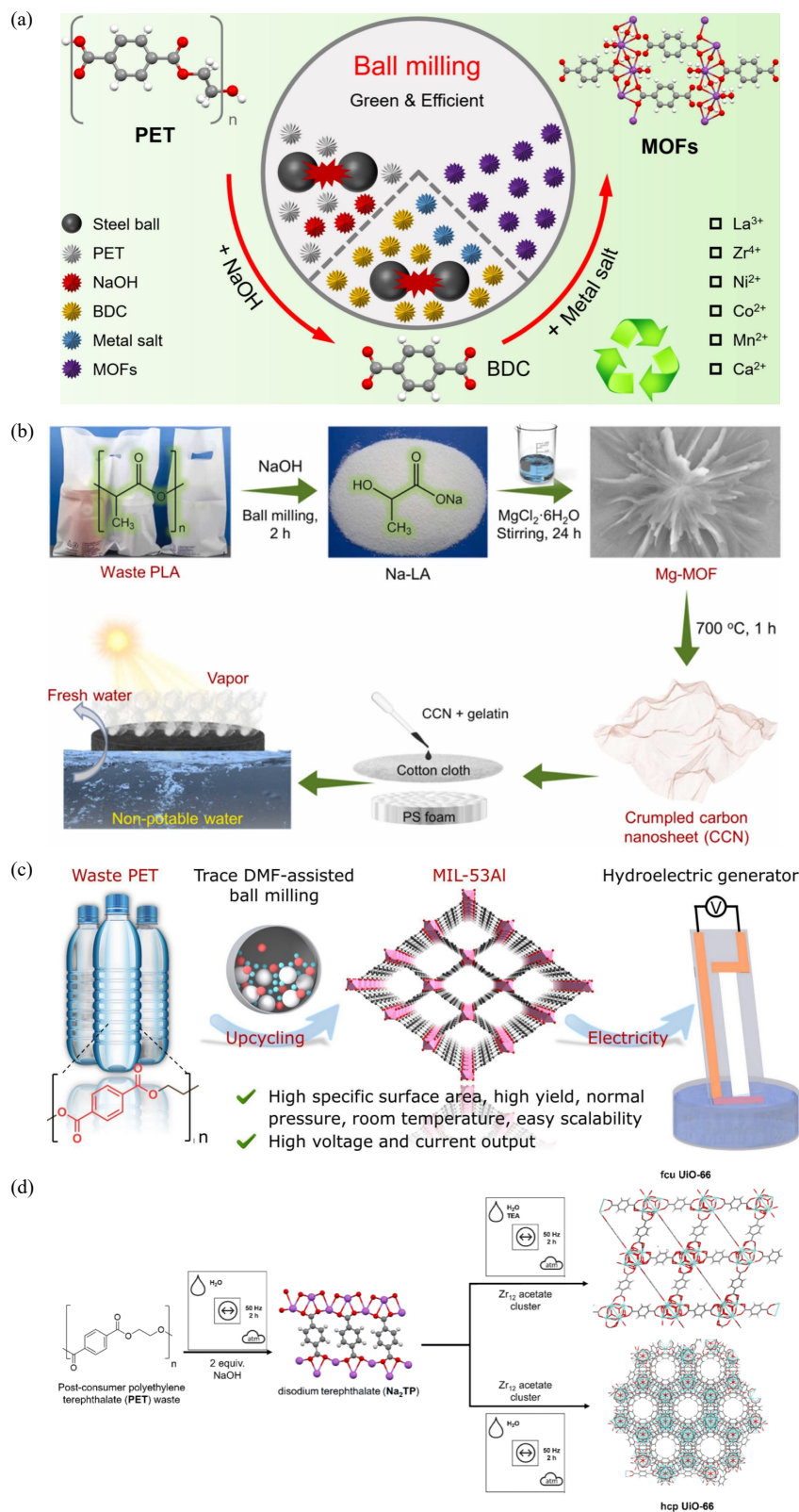


Fig. 5 (a) Upcycling of PET into a series of MOFs *via* a two-step mechanical ball milling method (Reprinted with permission from Ref. [58]; Copyright (2023), John Wiley & Sons, Inc.); (b) Upcycling of PLA into Mg-MOF *via* a ball milling-solution mixing method (Reprinted with permission from Ref. [60]; Copyright (2024) Elsevier); (c) Upcycling of PET into MIL-53Al *via* a trace solvent-assisted two-step ball milling method (Reprinted with permission from Ref. [59]; Copyright (2025) Elsevier); (d) Upcycling of PET into fcu/hcp UiO-66 *via* a trace solvent-assisted two-step ball milling method (Reprinted with permission from Ref. [87]; Copyright (2026), the Royal Society of Chemistry, Open Access).

球磨-溶液共混法制备形貌均一的Bi-MOF微米棒. Bi-MOF的轴向长度为350~650 nm, 径向宽度约260 nm. 与传统两步机械球磨法相比, 该方法合成的MOF具有更完善的晶体结构、更窄的尺寸分布与更均匀的形貌, 验证了球磨-溶液共混策略在高性能废塑料基MOF制备中的显著优势. Liu等^[60]拓展了该方法的适用边界, 以废弃PLA为原料, 制备出雏菊状Mg-MOF, 验证了该方法对生物基聚酯废塑料的普适性(图5(b)).

遗憾的是, 两步机械球磨法由于研磨过程中物料的持续高强度碰撞, 所合成的MOF往往结晶度不足、比表面积较低; 而球磨-溶液搅拌法则因常温溶液搅拌条件下成核驱动力较弱, 同样难以获得高质量的MOF晶体. 因此, 上述2种方法所制备的MOF比表面积通常低于 $150 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 且晶体结构有序性较差, 这制约了其在吸附、催化等实际应用场景中的性能表现. 基于此, 迫切需要开发一种绿色环保、反应条件温和、且在不使用或者仅使用微量有机溶剂的条件下, 将废弃PET转化为高比表面积MOF的新方法. 因此, 本课题组提出了将废弃PET定向转化为MOF的微量溶剂辅助两步球磨法^[59](图5(c)). 首先, 避免了传统溶剂热法和微波辅助合成法所固有的高能耗、高温及高压等问题, 整个反应可在室温常压下完成. 其次, 相较于传统溶剂热法, 该方法显著降低了有机溶剂的消耗量(减少超过了90%). 第三, 由于在第二步球磨过程中引入了微量有机溶剂(如DMF), 与先前的无溶剂两步球磨法相比, 所制备MOF的结晶度和比表面积均得到显著提升, 以MIL-53Al为例, 比表面积可达 $590 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 远高于先前的 $150 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$. Stolar等^[87]证实微量溶剂辅助两步球磨法可实现高品质MOF的制备(图5(d)). 他们以废弃PET、有色聚酯纺织废料为原料, 仅以微量水和三乙醇胺作为添加剂, 通过两步球磨工艺不仅首次通过机械化学法合成了hcp拓扑结构UiO-66, 还实现了fcu与hcp双相UiO-66的可控合成, 所得产物均具有高结晶度与优异的孔隙性能, 比表面积最高可达 $808 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 与商用配体溶剂热法合成的UiO-66性能相当. 因此, 微量溶剂辅助两步球磨法可突破无溶剂体系的局限, 制备出满足实际应用需求的高品质MOF, 为废塑料升级回收高性能MOF提供了可行且极具前景的技术路径.

2 废弃塑料衍生MOF材料的应用

废弃塑料衍生的MOF材料, 核心是通过化学解聚废弃塑料获得有机配体, 进而合成与常规原料性能相当的MOF材料, 代表了一种将环境污染物转化为高附加值功能材料实现“变废为宝”新策略. 这为塑料废弃物的高值化循环利用和绿色可持续发展提供了创新解决方案, 制备的MOF在吸附^[68,88], 界面水蒸发与光催化降解有机污染物集成^[89,90], 界面水蒸发与产电集成^[59], 以及能源存储与转换^[91,92]等领域展现出广阔的应用前景.

2.1 吸附

废弃塑料衍生的MOF材料凭借其吸附容量高、去除速度快及选择性好等特性, 在去除有机污染物方面展现出了经济高效的潜力^[93]. 为了推动其实际应用, 研究人员从2个维度对材料进行了优化: 一是通过引入缺陷工程, 增加MOF的活性位点并调控其孔径结构; 二是利用废弃塑料本身作为配体源, 直接合成负载型MOF, 从而提升吸附剂的分离便捷性和在水处理环境中的运行稳定性. Ko等^[37]以废弃PET织物为原料, 通过碱水解将其解聚获得对苯二甲酸钠(Na_2BDC)配体前驱体, 进而在水/乙醇混合溶剂中合成了UiO-66(图6(a)). 该材料对亚甲基蓝(MB)展现出优异的吸附性能, 最大吸附容量为 $70.8 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 且经过5次吸附-脱附循环后仍保持稳定的染料去除效率(图6(b)和6(c)). 该工作不仅验证了废弃PET作为MOF配体源的可行性, 更表明废弃塑料衍生的UiO-66在染料废水处理中具有优异的循环稳定性及实际应用潜力. Heng等^[94]以废弃塑料瓶为原料, 在 200°C 碱解6 h后得到 Na_2BDC , 随后与金属盐混合通过溶剂热法制备出缺陷D-MIL-68(Al)(图6(d)). D-MIL-68(Al)这种缺陷MOF材料对硝基咪唑(DMZ)表现出 $555.6 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 的吸附量(图6(e)), 远远高于MIL-68(Al)($181.8 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$). 并且D-MIL-68(Al)在前10 s内可去除近97%的DMZ, 吸附平衡后去除效率达到99%(图6(f)). D-MIL-68(Al)对DMZ表现出的高吸附性能归因于2个方面: 一是缺陷结构创造的更多的不饱和和活性位点, 另一方面是MOF与DMZ的 π - π 堆积和氢键相互作用.

除了处理MB和DMZ等有机污染物外,

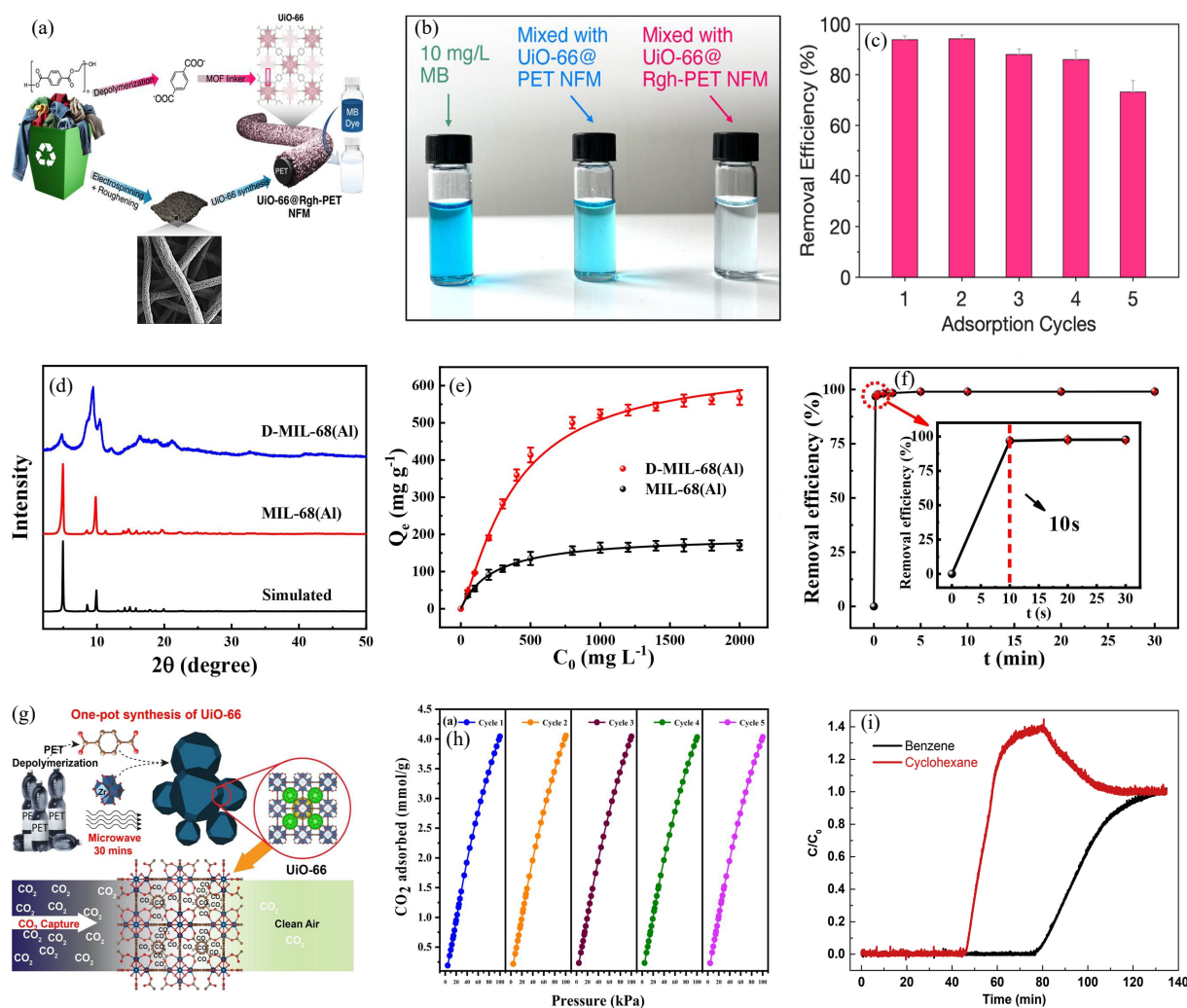


Fig. 6 (a) Schematic illustration of UiO-66@Rgh-PET NFM preparation; (b) Visual comparison of MB adsorption by UiO-66@PET NFM and UiO-66@Rgh-PET NFM; (c) Removal efficiency of UiO-66@Rgh-PET NFM during five consecutive adsorption-desorption cycles (Reprinted with permission from Ref. [37]; Copyright (2025), American Chemical Society). (d) XRD patterns, (e) adsorption isotherms, and (f) adsorption kinetics of defect-type D-MIL-68(Al) and MIL-68(Al) (Reprinted with permission from Ref. [94]; Copyright (2023), Elsevier). (g) Schematic illustration of the mechanism for preparing UiO-66 via the microwave-assisted degradation of waste PET and its CO₂ adsorption process (Reprinted with permission from Ref. [57]; Copyright (2023), Elsevier). (h) Five-cycle adsorption curve of CO₂ on MIL-53(Al) (CFA-PET) (Reprinted with permission from Ref. [35]; Copyright (2025), Elsevier). (i) Breakthrough curve of benzene/cyclohexane mixture on hcp UiO-66 at room temperature (Reprinted with permission from Ref. [71]; Copyright (2019), Elsevier).

MOF 对于治理金属离子污染也极具潜力. 随着工业活动的不断扩展, 电镀、采矿、电池制造和印染等行业产生的大量含重金属(如 Pb^{2+} 、 Hg^{2+} 、 Cd^{2+} 和 Cr^{6+}) 的废水被排放到环境中, 极易渗入地下水或者流入农田, 威胁饮用水安全与农产品质量. Chen 等^[36]通过水热法将废弃塑料瓶碱解为 Na_2BDC 后通过溶液搅拌法制备出低毒性、富含缺陷的 D-MIL-88A(Fe), 用于快速高效地吸附甲基汞(CH_3Hg^+), 吸附过程主要由物理相互作用控制, 并与 Langmuir 等温模型相符, 伴随着超快

吸附动力学($k_1=0.0076 \text{ min}^{-1}$), D-MIL-88A(Fe) 对 CH_3Hg^+ 表现出卓越的吸附能力, 在平衡时实现 93.4% 的去除效率, 最大吸附能力达到 $4.91 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 连续 5 次再生后仍保持超过 82% 的去除效率. D-MIL-88A(Fe) 卓越的吸附性能归因于经过缺陷工程改造, 使其在 0.6 nm 处具有增强的微孔, 并在 1.95 nm 处具有额外的中孔, 从而促进了质量传递并提供了丰富的吸附位点. El Sharkawy 等^[95]通过酸解降解废弃塑料瓶为对苯二甲酸后, 采用溶剂热法合成 MIL-101(Fe) 后

用于 Pb^{2+} 的吸附, 吸附速率为 $31.41 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 进一步将 MIL-101(Fe) 与稻壳制备的介孔性二氧化硅 MCM-41 复合成 MCM-41@MIL-101(Fe) 材料, 用于 Pb^{2+} 的吸附后速率为 $231 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$, 且在重复吸附 5 个循环后仍然保留较高的吸附率. D-MIL-88A(Fe) 和 MCM-41@MIL-101(Fe) 优异的重金属吸附速率和高的循环稳定性表明废弃塑料瓶制备的衍生 MOF 材料具有实际应用潜力.

MOF 具有极高的比表面积、可调孔径和可功能化的孔道结构, 这些特性使其能够高效识别、吸附和分离不同气体分子, 如二氧化碳 (CO_2) 捕获、甲烷 (CH_4) 纯化、氢气 (H_2) 储存与分离, 以及烯烃/烷烃分离等领域也展现出重要的应用潜力. Ren 等^[96] 采用水热法将废弃 PET 转换成 MIL-101(Cr). 在合成过程中, 除了采用 PET 充当有机配体对苯二甲酸, 还加入甲酸作为调节剂, 使得 MIL-101(Cr) 呈现出规则的八面体结构, 与使用商业对苯二甲酸合成的 MIL-101(Cr) 相似. 氮气和 H_2 吸附测试结果表明, 基于废弃 PET 衍生的 MOF 在气体吸附性能方面优于由商业配体所制备的材料. Waribam 等^[57] 通过微波辅助法, 以盐酸 (HCl) 为辅助剂快速将废弃 PET 解聚并同时生成 UiO-66 缺陷型 MOF, PET 衍生的缺陷型 UiO-66 与使用商业 BDC 单体制备的 UiO-66 相比, 具有更高的表面积和孔体积 (图 6(g)). 因此, PET 衍生的 UiO-66 表现出丰富的开放位点和较大的孔, 孔内具有未配位的 $-\text{COOH}$, 表现出优异的再生稳定性和出色的可回收性, CO_2 吸附量为 $2.06 \text{ mmol} \cdot \text{g}^{-1}$, 在 5 个循环中持续吸收 99% 的 CO_2 , 在环境温度和大气压下显示出比 N_2 高约 25 倍的 CO_2 选择性, 使其成为有效捕获 CO_2 的多孔材料. Wang 等^[35] 通过两步溶剂热法将废弃 PET 转变为 MIL-53(Al) (CFA-PET), CO_2 吸附量为 $4.23 \text{ mmol} \cdot \text{g}^{-1}$, 在 5 个循环内保持超过 99% 的 CO_2 吸附性能 (图 6(h)). Lin 等^[71] 利用废弃 PET 成功制备出具有 hcp 结构的 UiO-66, 用于苯与环己烷的分离. 由于结构中存在缺陷, 所得 hcp UiO-66 展现出高达 $995 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ 的比表面积 (图 6(i)), 并且不仅在空气中具有较高的热稳定性, 还具有出色的水热稳定性. 在竞争吸附体系中, hcp UiO-66 对环己烷和苯的吸附容量分别为 4.96 和 $2.19 \text{ mmol} \cdot \text{g}^{-1}$.

2.2 界面水蒸发及其集成

界面太阳能水蒸发是一种新兴的水处理与能

量利用技术, 通过利用高效光热材料将太阳能直接转化为热能, 将热量局限限制在固-液界面区域, 在界面定域加热实现水体净化^[97~99]. MOF 凭借其可设计的框架结构、可调控的纳米孔道及可工程化的表面电荷特性, 在蒸发驱动离子选择性迁移与电荷分离过程中展现出独特优势, 为水处理与能源耦合提供了高效材料平台. 然而, 大多数 MOF 对太阳光的吸收能力有限, 这导致其直接将光能转换为热能的效果不佳, 无法为水蒸发和后续发电提供高的光热转换效率. 将 MOF 作为前驱体在惰性气体中高温碳化后转化为 MOF 衍生物碳材料, 既保留了 MOF 的高比表面积和孔道, 又大幅提升了光吸收能力和导电性.

2.2.1 界面水蒸发与光催化降解有机污染物集成

MOF 作为一类新型的多孔材料, 其开放的孔道结构, 有助于反应底物在 MOF 体相内的扩散, 提高催化活性位. 另外, 得益于均一孔结构, MOF 可以被用于分子尺寸的有效筛分, 提高催化反应的选择性. 将光催化降解有机污染物技术集成到界面太阳能蒸发系统是目前最有希望同时实现淡水生产和有机污染物降解的方法^[100,101]. Bai 等^[63] 以废弃 PET 为有机配体前驱体制备 Co-MOF 纳米棒, 并将其与碳纳米管 (CNT) 复合涂覆于棉布上, 构建了 Co-MOF/CNT-棉布复合蒸发器 (图 7(a)). Co-MOF/CNT 复合蒸发器不仅具有良好的机械性能、柔性、长期稳定性和扩展性, 而且表现出超亲水性、高光吸收和低导热系数. 在 $1 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ 的光照条件下, 其水蒸发速率达到 $2.25 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ (图 7(b)). 这主要归因于太阳能界面蒸发产生的局部热效应, 以及 Co-MOF 表面丰富的钴位点对过氧单硫酸盐 (PMS) 的高效活化, 生成 $\cdot\text{OH}$ 、 $\text{SO}_4^{\cdot-}$ 和 $\cdot\text{O}_2^-$ 等活性氧 (ROS), 可同步降解四环素 (TC), 去除率达 99.8%, 反应速率常数为 0.189 min^{-1} . Chen 等^[102] 通过一步溶剂热法解聚废弃 PET 为单体并同步制备 Cr-MOF, 继而将 Cr-MOF 与 CNT 复合涂覆于棉布上, 构建了 Cr-MOF/CNT-棉布复合蒸发器 (图 7(c)). 在 1 个太阳光辐照下, 其水蒸发速率达到 $2.47 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$. 值得注意的是, Cr-MOF/CNT 的导热系数仅为 $0.087 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, 是一种优异的光热材料, 98% 的光吸收率使其充分利用可见光提升界面水温, 进一步活化 PMS 产生大量 ROS, 快速降解 TC,

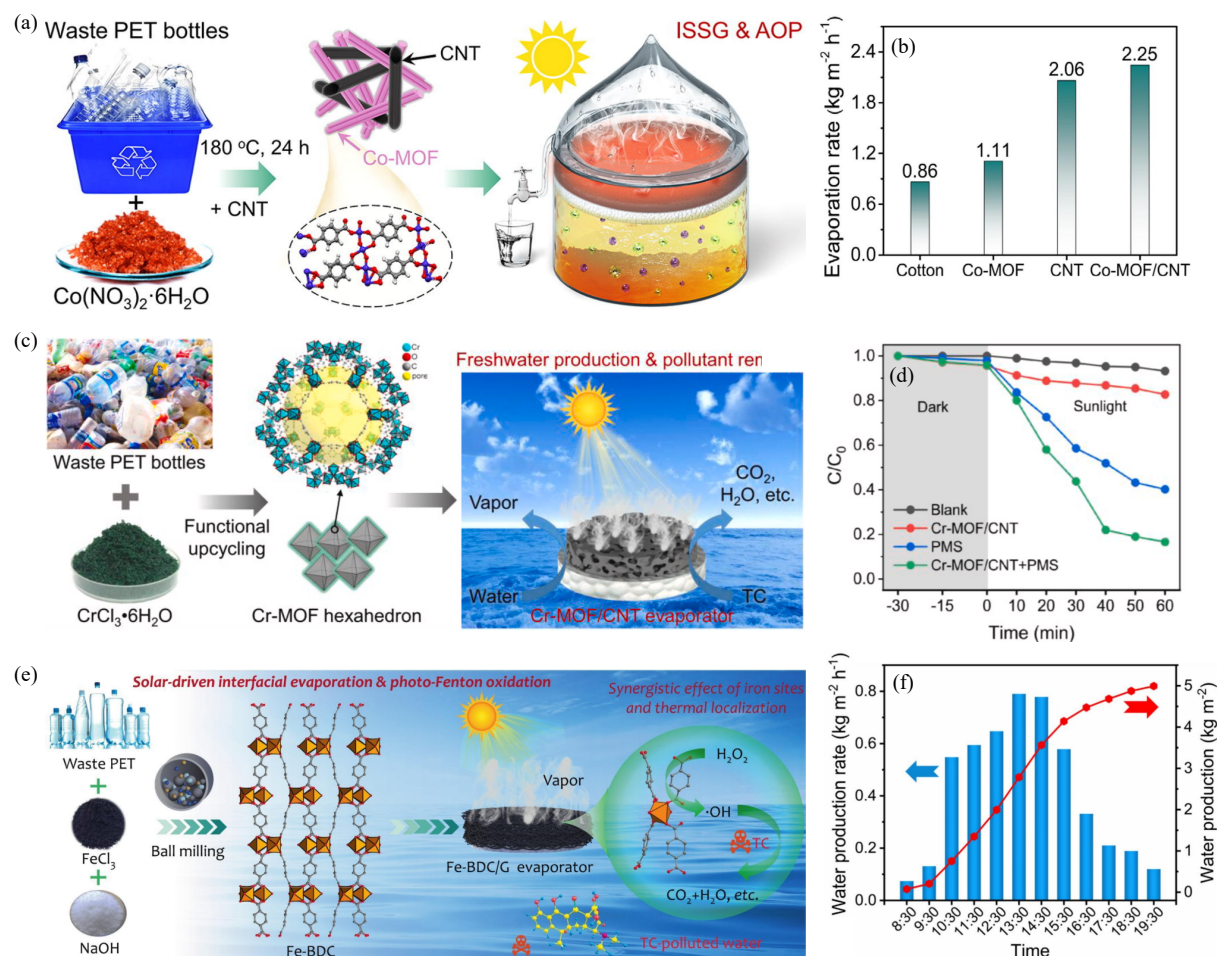


Fig. 7 Schematic of the Co-MOF/CNT evaporator (a) for interfacial solar evaporation and photocatalytic degradation of tetracycline and (b) evaporation rate of TC solution (Reprinted with permission from Ref. [63]; Copyright (2022), American Chemical Society). Cr-MOF/CNT evaporator (c) preparation process and schematic for the photocatalytic degradation of tetracycline and (d) the catalytic degradation curves of TC under different conditions (Reprinted with permission from Ref. [102]; Copyright (2023), Elsevier). (e) The preparation process Fe-BDC/G evaporator for photocatalytic degradation of tetracycline, and (f) evolution of TC solution evaporation rate over time and cumulative water yield under natural light illumination within 12 h (Reprinted with permission from Ref. [64]; Copyright (2025), Elsevier).

去除率达 92.4% (图 7(d)). Fan 等^[49]以同样的方法制备的 Ni-MOF 在界面水蒸发与光催化降解 TC 集成中表现出优异的性能. Liu 等^[34]以废弃 PI 为原料制备出 Fe-BTEC, 随后将其与石墨烯(GPE)复合构建出 Fe-BTEC/GPE 复合蒸发器, 该复合蒸发器在 1 个太阳辐射条件下实现四环素溶液 $2.72 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 的高蒸发速率和 99.6% 的 TC 降解率, 在自然阳光(辐照强度 $0.73 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$, 环境温度 38.8°C)辐射条件下淡水产水量达 $5.46 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$. Liu 等^[64]以废弃 PET 为原料, 采用两步球磨法制备出 Fe-BDC, 随后与 GPE 复合构建出 Fe-BDC/G 复合蒸发器(图 7(e)). 该复合蒸发器在四环素溶液中同时实现了 $3.15 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 的高蒸发速率和 99.8% 的四环素降解率. 更重要的是, 该器件在

实际环境中展现了良好的应用前景, 在辐照强度为 $0.89 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ 、环境温度为 42.8°C 的自然阳光下, 其单日(12 h)单位面积产水量达到 5.0 kg , 能够满足两名成年人全天的淡水需求(图 7(f)).

2.2.2 界面水蒸发与热电技术集成

界面水蒸发与热电技术集成, 是当前太阳能驱动的水-电联产领域的前沿方向. 其核心策略是在利用太阳能产生清洁水的同时, 回收界面蒸发过程中的废热或利用蒸发产生的温差来发电, 从而提高太阳能的利用率. Zhu 等^[103]设计了一种集成三维有机海绵与热电模块的混合装置(图 8(a)). 其工作原理基于温差发电: 顶层的光热材料吸收光能产生高温, 中间的热电模块上端被加热, 下端则通过与底层本体水的接触保持冷却, 从而形

成稳定的温度梯度. 在温差的作用下, 根据塞贝克效应, 热电模块内部的载流子(电子或空穴)会从热端往冷端扩散, 从而在回路中产生电压和电流. 不同于传统块体材料, MOF的晶内纳米孔道可作为理想的“纳米反应器”与“分子筛”, 不仅能够实现对水流速的精确门控, 其丰富的配体跃迁特性更为高效的光热转换提供了可能. Chen等^[39]通过溶剂热法以废弃PET为原料制备Ca-MOF, 随后以Ca-MOF为前驱体碳化制备多孔碳立方体(PCC), 用于界面太阳能驱动的水热电联产(图8(b)). 在1个太阳光下, PCC的水蒸发速率为 $2.49 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 染料和抗生素的去除率为99.9%, 重金属离子浓度减少近2个数量级. 此外, 将PCC作为热电装置中的光热材料时, 开路电压达到201 mV, 且随着温度从29.2 °C升到32.1 和35.4 °C时, 开路电压从201 mV增加到345 和442 mV (图8(c)). Fan等^[104]通过溶剂热法以废弃PET为原料制备Mn-MOF, 随后以Mn-MOF为前驱体在不同温度下碳化制备MnO/C纳米颗粒. 伴随着温度的变化, MnO/C的形态也从立方体(MnO/C-400)变为球体(MnO/C-500)、八面体(MnO/C-600)或者多面体(MnO/C-700). MnO/C-600具有高光吸收率、低导热系数以及快速的热转换效率使其具有优异的界面蒸发性能(图8(d)), 在1个太阳光照下与热电模块集成后展现出高效的水蒸发性能(蒸发速率达 $2.38 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$)和可观的热电输出(开路电压为177 mV), 进一步将1个太阳辐照升至3个太阳, 输出电压达到330 mV. 在户外热电发电实验中, 基于MnO/C-600的双功能蒸发器的热电装置可作为小型光热发电机、带动电风扇、计时器和计算器的运行. 以废弃PET为原料制备出的MOF衍生材料, 柔韧耐用太阳能蒸发器不仅推动了城市和工业废弃塑料的再利用, 还为可持续太阳能的淡水和电力联产提供了新的平台.

2.2.3 界面水蒸发与水蒸发发电集成

在水蒸发驱动离子定向迁移的过程中, 流动电势随之产生^[105,106]. MOF凭借其金属节点与有机配体构建的有序孔道, 可作为理想的离子传输通道: 其不仅通过物理限域效应引导离子的定向迁移, 更依托孔道表面丰富的官能团在水环境中形成的双电层, 实现对离子的选择性筛分. 这种“限域传导+电荷筛选”的双重机制, 增强了体

系的流动电势输出. 将MOF低温碳化后形成孔结构和亲水性官能团丰富的碳材料, 可同时实现高效光热转换和离子梯度驱动发电, 从而构建界面水蒸发-水蒸发发电集成体系^[107]. Wang等^[83]采用两步球磨法将废弃PET转化为Ca-BDC, 最后通过高温碳化将其转化为多孔碳纳米颗粒(PCN-x). 该材料继承了MOF前驱体的多孔结构与形貌特征, 具有发达的纳米孔道、丰富的含氧官能团以及优异的亲水性能. 在1个太阳光照下, PCN-700实现了 $2.32 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ 的水蒸发速率和98%的光热转换效率. 同时, PCN-700表面丰富的官能团与纳米限域通道协同诱导蒸发驱动离子选择性迁移, 产生稳定的电输出, 短路电流为7 μA , 开路电压为330 mV, 可稳定运行3600 s (图8(e)~8(g)). Liu等^[81]采用两步球磨法将废弃PET转化为Ba-BDC, 随后将Ba-BDC碳化制备多孔碳多面体(PCP), 用作光热材料制备太阳能蒸发器. 在1个太阳光的照射下, PCP蒸发速率为 $2.74 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 光热转换效率为98.2%, 表现出优异的光吸收能力和光热转换能力. PCP在水蒸发发电测试中, 可实现212 mV的开路电压, 并具有良好的循环稳定性. Liu等^[62]利用一步溶剂热法将废弃PI升级化学回收制备Ba-BTEC, 随后通过可控碳化将Ba-BTEC转化为多孔碳纤维(PCF), 构建了基于PCF的双功能蒸发器PCF-x, 用于界面水蒸发与产电集成(图8(h-j)). 在1个太阳光下, PCF-x蒸发器水蒸发速率可达 $2.93 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, 并在海水中实现320 mV的开路电压(图8(i)). 高的蒸发速率和开路电压归因于双功能蒸发器PCF-x中含有丰富的含氧官能团, 而含氧官能团与水分子之间的高度亲和力, 海水中 Na^+ 倾向于在PCF的纳米多孔通道内快速迁移, 使通道入口和出口产生离子浓度差, 产生连续流势进而表现出高的开路电压. 以上研究表明, MOF衍生碳材料凭借其保留的多孔结构、丰富的含氧官能团及优异的光吸收能力, 在界面蒸发与产电集成系统中展现出广阔前景, 不仅实现了废弃塑料的高值化转化, 也为淡水与能源协同供给提供了可行的技术路径.

3.3 能源存储与转换

能源存储需求增长与环保重视促使高效可持续能源存储技术发展. MOF衍生材料具有高孔隙率、低密度、高比表面积、孔道规则且孔径可

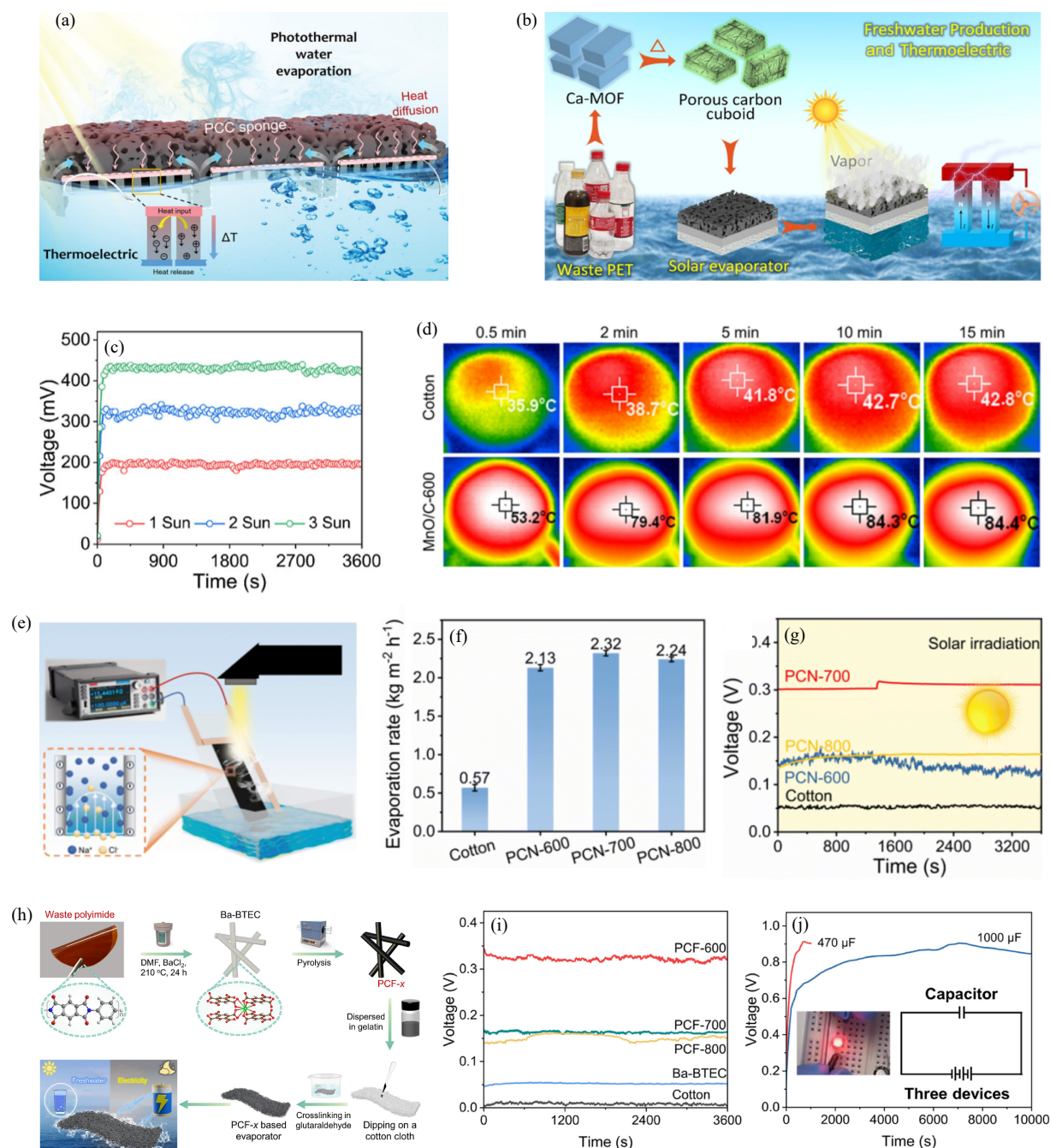


Fig. 8 (a) Schematic illustration of the synergistic photothermal evaporation and thermoelectric power generation process based on organic sponge interfaces (Reprinted with permission from Ref. [103]; Copyright (2019), John Wiley & Sons, Inc.). (b) Schematic of the Ca-MOF preparation process and its PCC composite evaporator for the integrated solar-driven interfacial water evaporation and thermoelectric power generation; (c) Open-circuit voltage curves of the PCC-800 evaporator thermoelectric device under 1, 2, or 3 sun illumination at 20 °C (Reprinted with permission from Ref. [39]; Copyright (2022), American Chemical Society). (d) Thermal imaging of cotton fabric and MnO/C-600 evaporator under 1 sun radiation (Reprinted with permission from Ref. [104]; Copyright (2023), Elsevier). (e) Schematic of indoor freshwater/electricity co-production system for PCN composite evaporator under 1 sun, (f) water evaporation rate, and (g) open-circuit voltage (Reprinted with permission from Ref. [83]; Copyright (2026), Elsevier). (h) Schematic of a solar-driven interfacial water production and power generation system using a PCF-x evaporator fabricated from waste polyimide; (i) Open-circuit voltage curve and (j) voltage-time curve of three series-connected devices charging a capacitor for the PCF-x composite evaporator (Reprinted with permission from Ref. [62]; Copyright (2025), Elsevier, Open Access).

调,以及拓扑结构多样性和可裁剪性等特点,被广泛用作电极材料、电催化剂、电池隔膜等储能材料. Kaviya等^[108]采用碱液热解法将废弃PET解聚为对苯二甲酸单体,并以其为有机配体,通过水热法成功合成了Cu-MOF和Zn-MOF作为正极材料应用于超级电容器中. 采用三电极系统在 $6\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ KOH水溶液电解质中评估了这些MOF的电化学性能, Cu-MOF和Zn-MOF均表现出良好的电容性能,尤其是Cu-MOF在电流密度为 $1\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 时比电容为 $256.2\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$. 进一步组装不对称超级电容器(ASC)装置,在 $2\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 电流密度下经10000次恒流充放电循环后,仍保持92.5%的初始电容值及98.7%的库仑效率,显示出优异的循环稳定性和电化学可逆性. 该研究证实了以废弃PET为原料制备的MOF材料在电化学储能领域具有应用潜力,为废弃塑料的高值化利用提供了可行路径. Zhao等^[55]通过一步溶剂热法以废弃PET裂解的BDC作为有机连接体合成双金属NiCo-BDC材料(图9(a)). 通过调节Ni/Co前驱体比例,所得NiCo-BDC的形态可从堆叠纳米线可控转变为纳米棒,形成具有大比表面积和发达分级孔隙结构的晶体-非晶杂化体系, $\text{Ni}_{1.5}\text{Co}_{0.5}$ -BDC显示出最大的CV面积,表明电荷储存容量最高(图9(b)),在 $2\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 电流密度下实现 $949\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$ 的比电容,并在 $20\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 条件下仍保持 $820\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$ 的高比电容. 当与生物质衍生的纳米碳组装成不对称超级电容器时,该器件在功率密度 $1613\text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$ 下实现 $22\text{ Wh}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的能量密度,并在 $10\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 条件下经5000次循环后仍保持83%的电容保持率. 这种高的功率密度和出色的循环寿命源于钴和镍作为双金属中心的协同相互作用,既证实了源于废弃PET的MOF材料在能源存储中具有广阔的应用前景,也证实了PET衍生MOF中因双金属协同作用而增强的电容性行为.

然而,大多数MOF材料是绝缘体或半导体,在高温或潮湿条件下不稳定,直接被用作电极材料时,通常会出现电导率差、易团聚、循环稳定性不好等问题. MOF材料作为能源存储材料在能源器件中的应用改进主要分为以下2个方面:一是MOF与其它材料复合,制备高性能复合能源存储材料;二是MOF作为前驱体模板,通过煅烧工艺制备成多孔碳或金属化合物能源存储材料. Li等^[109]将废弃PET通过一步溶剂热法直接转

化100%转化为MIL-53(Al),进而将该材料在氮气气氛下碳化,制备出比表面积高达 $1712\text{ m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 的手风琴多孔碳(CPMD)(图9(c)). 以CPMD为正极材料组装的三电极超级电容器在电流密度为 $0.5\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 时展现出 $391\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$ 的高比电容,并在 $6\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ KOH电解液中于 $20\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 条件下保持73.6%的电容保持率,表现出优异的倍率性能. 此外,以CPMD为正极材料组装的锌离子电容器在 $0.1\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 电流密度下仍展现出 $335\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$ 的卓越电容值,在 $3\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ZnSO_4 电解液中经10000次循环后保持92.2%电容值的优异循环稳定性,并在 $90\text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$ 功率密度下实现 $150.3\text{ Wh}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的超高能量密度. CPMD在超级电容器中显示出高的功率密度和出色的循环寿命归因于以MIL-53(Al)为前驱体制备的多孔碳具有显著的手风琴状结构,增加了电极与电解液之间的接触面积,层级孔隙性的结构表现出离子扩散距离短并便于运输离子,两者协同促进CPMD表现出优异的电容行为. Khder等^[110]采用两步溶剂热法将废弃PET升级转化为MIL-53(Al),随后经过碳化等复合过程制备出MOF衍生材料 $\text{NCP}_{0.5}@\text{Al}_2\text{O}_3/\text{C}$,进而评估其作为超级电容器电极材料的性能(图9(d)). $\text{NCP}_{0.5}@\text{Al}_2\text{O}_3/\text{C}$ 电极在三电极体系中表现出优异的储能性能,在 $1\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的电流密度下,其比容量高达 $393.8\text{ mAh}\cdot\text{g}^{-1}$,并在 $20\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的高电流密度下经历5000次充放电循环后,仍能保持85.1%的初始容量,展现出优异的循环稳定性. Kamar等^[111]报道了一种以源自废弃PET作为有机连接体获得的Co-MOF-71,与聚丙烯酰胺水凝胶组装成氮掺杂碳电极($\text{CoP}/\text{Co}@\text{NC}$)电极,在 $3\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的电流密度下,展现出 $462.6\text{ mAh}\cdot\text{g}^{-1}$ 的高比容量,在 $20\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的高电流密度下经历5000次充放电循环后,仍能保持89.5%的容量保持率,并在110 s充电后可点亮发射二极管(LED). 废弃PET衍生的MOF及其复合材料在超级电容器中的性能表现持续突破,展现出极具竞争力的储能潜力.

锂离子电池中常用的阳极材料面临诸如容量衰减、周期缩短和安全问题等挑战. MOF衍生纳米结构由于其独特的高孔隙率与超大比表面积,不仅为离子提供了丰富的储存空间,显著提升可逆容量,还能构建高效的离子传输网络并改善倍率性能. Wang等^[112]通过溶剂热法将废弃PET升

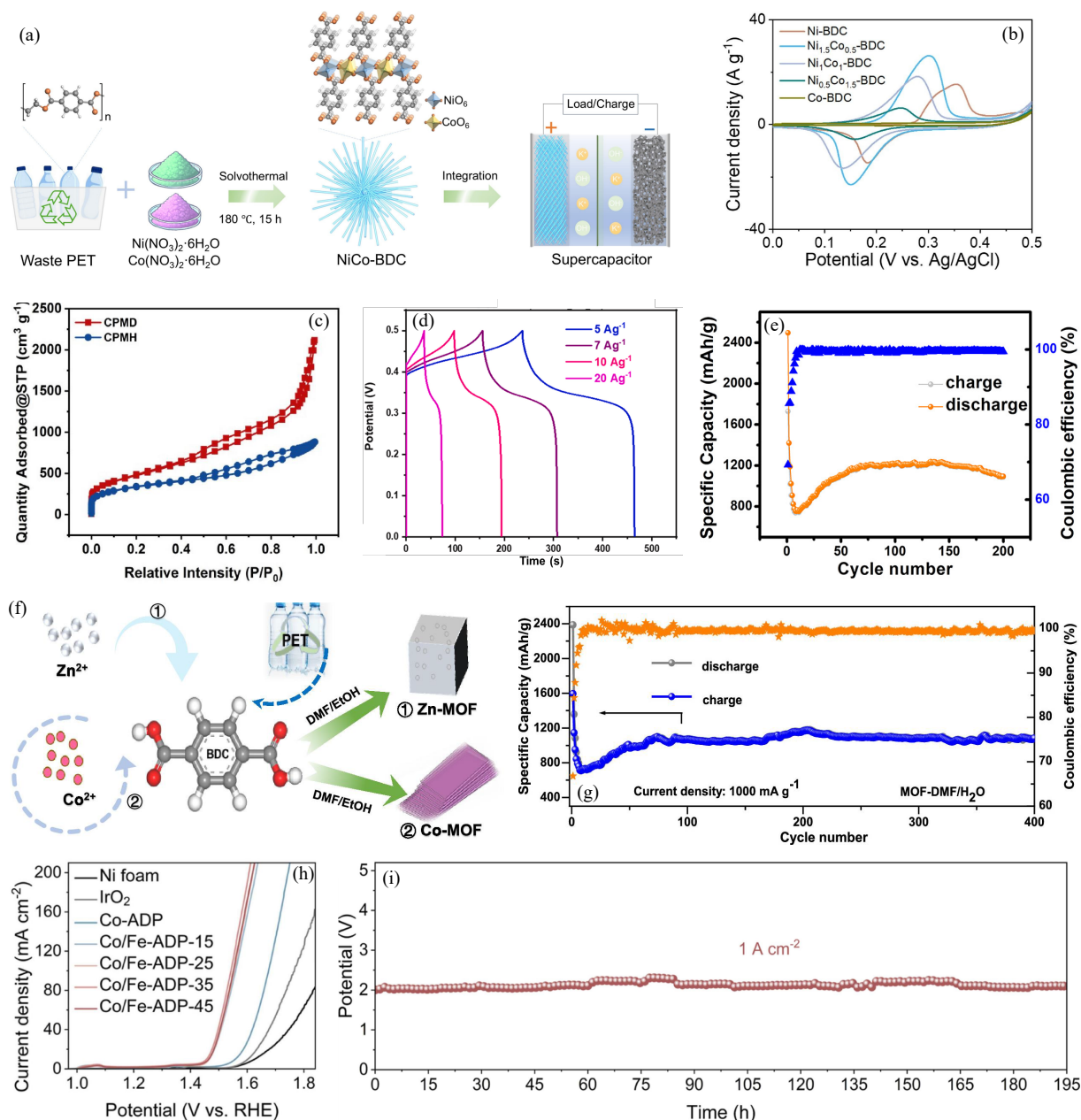


Fig. 9 (a) Schematic of one-step solvothermal degradation of waste PET and synthesis of NiCo-BDC, along with its direct application as a supercapacitor electrode material; (b) Cyclic voltammetry curves of NiCo-BDC and other electrode materials (Reprinted with permission from Ref. [55]; Copyright (2025), Elsevier). (c) N_2 isotherm curves of CPMH and CPMD (Reprinted with permission from Ref. [109]; Copyright (2024), Elsevier, Open Access). (d) Constant-current charge/discharge curves of $\text{NCP}_{0.5}@\text{Al}_2\text{O}_3$ nanocomposite at different current densities (1–20 A g^{-1}) (Reprinted with permission from Ref. [110]; Copyright (2025), Elsevier). (e) Cycling performance and coulombic efficiency of $\text{Co}_{0.8}\text{Ni-MOF}$ at 500 mA g^{-1} (Reprinted with permission from Ref. [112]; Copyright (2022), American Chemical Society, Open Access). (f) Preparation process of Zn-MOF and Co-MOF and (g) long-term cycling performance of MOF-DMF/ H_2O at 1000 mA g^{-1} (Reprinted with permission from Ref. [113]; Copyright (2022), American Chemical Society). (h) Linear sweep voltammetry curve and (i) chronopotentiometric curve of Co/Fe-ADP (Reprinted with permission from Ref. [33]; Copyright (2025), Elsevier).

级化学转化为 CoNi-MOF ，并将其用作锂离子电池负极材料，初始放电和充电容量分别为 2496 和 1729 mAh g^{-1} ，即使经过 200 次循环， $\text{Co}_{0.8}\text{Ni-MOF}$ 电极仍能保持超过 99% 的高库仑效率(图

9(e))，展现出优异的循环可逆性和稳定性。Wang 等^[113]报道了一种在醇醚溶剂环境中降解废弃 PET 作为配体成功合成了 CoZn-MOF ，记为 MOF-DMF/ H_2O (图 9(f))。作为锂离子电池的正极

材料, MOF-DMF/H₂O 在 1000 mA·g⁻¹ 的电流密度下循环 400 次后, 仍能保持 1074 mAh·g⁻¹ 的比容量, 展现出优异的倍率性能和循环稳定性(图 9(g)).

MOF 具有高比表面积、丰富的活性位点以及可调控的孔结构等显著优势, 这些结构特征能够有效促进电催化反应中的电荷传输与反应物质扩散, 从而提升电解水反应动力学并促进电能向氢能的高效转化. 因此, 利用废弃塑料衍生的有机配体构筑 MOF 电催化剂, 为实现资源循环利用与高效制氢提供了新的思路. Zhang 等^[33]通过两步溶剂热法将废弃 PA66 转化为己二酸二钠后, 进一步合成柔性 Co-ADP 的 MOF 材料, 随后通过室温 Fe³⁺ 离子交换, 部分取代 Co²⁺, 形成刚柔并济的 Co/Fe-ADP. Co/Fe-ADP 在电流密度为 10 mA·cm⁻² 时, 过电位仅 227 mV (图 9(h)), 并可在 1 A·cm⁻² 工业电流密度下稳定运行超过 195 h (图 9(i)). 柔性有机配体构筑的 MOF 骨架可在电化学反应过程中发生一定程度的结构自适应调节, 促进活性位点暴露并增强电解质与反应物的传质效率. Nayak 等^[14]利用废弃 PET 作为合成 MOF 的有机连接体 BDC, 通过溶剂热合成 NiCo-BDC, 后续与特制的活性炭(AC)复合形成 NiCo-MOF@AC 材料, 展现出卓越的电催化性能, 在电流密度为 100 mA·cm⁻², 析氢反应的过电位为 217 mV, 析氧反应的过电位为 315 mV. 此外, NiCo-MOF@AC 在 200 mA·cm⁻² 电流密度可稳定运行 24 h. NiCo-MOF 通过与导电碳材料 AC 复合, 不仅能够显著提升材料整体电导率, 还可构建连续的电子传输网络并增强结构稳定性, 从而有效缓解 MOF 在长期电化学过程中的结构衰减问题. 废弃塑料衍生的 MOF 电催化剂通过多层次结构与电子结构调控策略, 为发展绿色循环材料化学和可持续能源转化技术提供了重要的研究方向.

4 结论与展望

本文综述了以废塑料(包括 PET、PLA、PA 和 PI)为原料制备 MOF 材料的研究进展. 溶剂热法(尤其是一步溶剂热法)可在单一反应体系中实现废塑料原位解聚与 MOF 配位组装. 微波辅助法利用快速均匀的体相加热显著缩短反应周期并提升产物结晶度. 机械化学法(特别是微量溶剂辅助

球磨法)则在室温、常压、少溶剂条件下, 成功制备出高比表面积 MOF, 为废塑料基 MOF 的绿色、规模化生产开辟了新路径. 同时, 废塑料制备 MOF 过程中, 降解副产物通过参与配位或者充当结构调节剂, 主动诱导配体缺失、节点空位等本征缺陷的形成. 这些缺陷虽可能削弱晶体长程有序性, 却同步创造出丰富的开放金属位点、不饱和配位中心及分级孔道结构, 在有机染料/抗生素/重金属离子吸附、太阳能界面蒸发及其光催化降解、水蒸发发电、超级电容器及电催化析氧等领域展现出显著优势——开放位点增强污染物捕获能力与催化活性, 调节 Zeta 电位提升流动电势发电效率, 分级孔结构优化离子扩散并贡献赝电容等, 充分体现了“环境保护-资源循环-高性能材料制备”三重优势. 尽管进展显著, 该领域仍面临若干挑战. (1) 原料局限: 目前研究高度集中于 PET, 对其他废塑料(例如聚氨酯和聚碳酸酯)及含杂质/染料的实际消费后塑料关注不足. (2) 性能瓶颈: 现有绿色合成方法(例如机械化学法)产物的比表面积和结晶度仍普遍低于传统溶剂热法, 难以满足高要求应用场景. (3) 工程化滞后: 多数研究停留于实验室小试阶段, 缺乏大规模连续化制备工艺以及全生命周期可持续性(涵盖能耗、经济成本及碳足迹)的批判性评估. 相比传统化石基水热合成, 废塑料路线在原料成本与碳排放上优势显著, 但“降解—提纯—结晶”路径面临能效与经济性瓶颈, 即高温高压解聚及高纯度分离常抵消原料成本优势. (4) 处理混合塑料废弃物困难: 因降解机理各异, 产生复杂的多配体混合物, 引发严重的交叉干扰与竞争性配位, 导致产物多为多晶相、无定形沉淀或混合 MOF 相, 严重制约晶相纯度与分离效率. 此外, 废弃物中伴生的添加剂(例如着色剂、增塑剂)会占据金属配位点或堵塞孔道, 进一步劣化 MOF 的结晶度、孔隙率及催化性能. 展望未来, 该领域有望在以下方向取得突破: (1) 拓展原料来源, 开发能够处理混合塑料及复杂真实废弃物的普适性解聚-配位策略. (2) 发展微量溶剂/绿色溶剂辅助机械化学、双螺杆挤压连续流合成等低成本、高品质产技术, 旨在兼顾 MOF 规模化生产与结晶度、孔隙性能的提升, 同时降低能耗与溶剂依赖, 推动生命周期评估的完善. (3) 构建降解产物数据库, 结合机器学习逆向设计合成参

数, 确立多配体体系 MOF 的构筑理论. 同时, 依据废塑料纯度分级, 定向制备对应性能的 MOF, 最大化资源价值. (4) 开发多功能催化剂以实现温和条件下的选择性解聚与定向转化. 更重要的是, 设计兼容的杂化 MOF 结构, 通过调控金属节点配位环境与骨架柔性, 使不同塑料衍生的混合配体可共嵌入单一晶格. (5) 探究“一锅法”级联催化体系, 耦合解聚、配体合成与结晶, 规避

高能耗提纯. 同时, 探索常温常压电催化或光热催化策略. (6) 建立标准化的技术经济分析与生命周期评价体系, 系统对比溶剂热、微波、机械化学等方法, 明确“废塑料类型-合成路线-应用场景”的多目标优化, 为工业化提供数据支撑.

因此, 废塑料升级回收为 MOF, 集环境保护、资源循环与高性能材料制备于一体, 是迈向循环经济与可持续发展的关键一步.



作者简介: 龚江, 男, 1988年生, 华中科技大学化学与化工学院, 研究员、博士生导师. 2010年于四川大学获高分子材料与工程学士学位, 2015年于中国科学院长春应用化学研究所获分子化学与物理博士学位, 2015~2017年于德国马克斯-普朗克胶体界面研究所从事博士后研究, 2017~2018年于美国得克萨斯州大学圣安东尼奥分校从事博士后研究, 2018年10月加入华中科技大学化学与化工学院. 主要从事废弃塑料升级化学回收制备金属-有机框架(MOF)材料和碳材料, MOF材料的绿色合成与产业化应用, 太阳能界面水蒸发与集成应用, 在 *Progress in Polymer Science* 等期刊发表论文188篇, 被引用超过1.07万次, 申请专利60项, 其中授权30项. 主持国家自然科学基金项目和企业横向项目十余项.

REFERENCES

- 1 Law, K. L.; Sobkowicz, M. J.; Shaver, M. P.; Hahn, M. E. Untangling the chemical complexity of plastics to improve life cycle outcomes. *Nat. Rev. Mater.*, **2024**, 9(9), 657–667.
- 2 Kots, P. A.; Vance, B. C.; Quinn, C. M.; Wang, C.; Vlachos, D. G. A two-stage strategy for upcycling chlorine-contaminated plastic waste. *Nat. Sustain.*, **2023**, 6(10), 1258–1267.
- 3 Huang, W.; Xia, X. H. Element cycling with micro(nano)plastics. *Science*, **2024**, 385(6712), 933–935.
- 4 Ellis, L. D.; Rorrer, N. A.; Sullivan, K. P.; Otto, M.; McGeehan, J. E.; Román-Leshkov, Y.; Wierckx, N.; Beckham, G. T. Chemical and biological catalysis for plastics recycling and upcycling. *Nat. Catal.*, **2021**, 4(7), 539–556.
- 5 Ding, J. F.; Ju, P.; Ran, Q.; Li, J. X.; Jiang, F. H.; Cao, W.; Zhang, J.; Sun, C. J. Elder fish means more microplastics? Alaska pollock microplastic story in the Bering Sea. *Sci. Adv.*, **2023**, 9(27), eadf5897.
- 6 Vethaak, A. D.; Legler, J. Microplastics and human health. *Science*, **2021**, 371(6530), 672–674.
- 7 Wei, X. F.; Yang, W.; Hedenqvist, M. S. Plastic pollution amplified by a warming climate. *Nat. Commun.*, **2024**, 15(1), 2052.
- 8 Li, Y.; Zhang, J. J.; Xu, L.; Li, R. Q.; Zhang, R.; Li, M. X.; Ran, C. M.; Rao, Z. Y.; Wei, X.; Chen, M. L.; Wang, L.; Li, Z.; Xue, Y. N.; Peng, C.; Liu, C. G.; Sun, H. W.; Xing, B. S.; Wang, L. Leaf absorption contributes to accumulation of microplastics in plants. *Nature*, **2025**, 641(8063), 666–673.
- 9 Zhang, S.; Zhao, X.; Liu, X. H.; Chen, L.; Bai, L.; Xu, S. M.; Wang, Y. Z. Chemical depolymerization of polyethylene terephthalate and its blends: enhanced strategies for efficient circularity. *Prog. Polym. Sci.*, **2025**, 164, 101958.
- 10 Guselnikova, O.; Semyonov, O.; Sviridova, E.; Gulyaev, R.; Gorbunova, A.; Kogolev, D.; Trelin, A.; Yamauchi, Y.; Boukherroub, R.; Postnikov, P. “Functional upcycling” of polymer waste towards the design of new materials. *Chem. Soc. Rev.*, **2023**, 52(14), 4755–4832.
- 11 Kumar, S.; Singh, E.; Mishra, R.; Kumar, A.; Caucci, S. Utilization of plastic wastes for sustainable environmental management: a review. *ChemSusChem*, **2021**, 14(19), 3985–4006.
- 12 Xiao, Y. X.; Huang, Y. J.; Cheng, H. Q.; Zhu, Z. C.; Yu, M. Z.; Xu, W. T.; Li, Z. Y.; Zuo, W.; Zhou, H. Y.; Jin, B. S. Advances and outlook of heavy metal treatment technology from municipal solid waste incineration fly ash: a review. *Energy Fuels*, **2024**, 38(2), 895–918.
- 13 Vollmer, I.; Jenks, M. J. F.; Roelands, M. C. P.; White, R. J.; van Harmelen, T.; de Wild, P.; van der Laan, G. P.; Meirer, F.; Keurentjes, J. T. F.; Weckhuysen, B. M. Beyond mechanical recycling: giving new life to plastic waste. *Angew. Chim. Int. Ed.*, **2020**, 59(36), 15402–15423.

- 14 Murphy, N. P.; Dempsey, S. H.; DesVeaux, J. S.; Uekert, T.; Chang, A. C.; Mailaram, S.; Alherech, M.; Alt, H. M.; Ramirez, K. J.; Norton-Baker, B.; Bell, E. L.; Singer, C. A.; Pickford, A. R.; McGeehan, J. E.; Sobkowicz, M. J.; Beckham, G. T. Process innovations to enable viable enzymatic poly(ethylene terephthalate) recycling. *Nat. Chem. Eng.*, **2025**, 2(5), 309–320.
- 15 DelRe, C.; Jiang, Y. F.; Kang, P.; Kwon, J.; Hall, A.; Jayapurna, I.; Ruan, Z. Y.; Ma, L.; Zolkin, K.; Li, T.; Scown, C. D.; Ritchie, R. O.; Russell, T. P.; Xu, T. Near-complete depolymerization of polyesters with nano-dispersed enzymes. *Nature*, **2021**, 592(7855), 558–563.
- 16 Zheng, K.; Wu, Y.; Hu, Z. X.; Wang, S. M.; Jiao, X. C.; Zhu, J. C.; Sun, Y. F.; Xie, Y. Progress and perspective for conversion of plastic wastes into valuable chemicals. *Chem. Soc. Rev.*, **2023**, 52(1), 8–29.
- 17 Zhang, S. B.; Hu, Q. K.; Zhang, Y. X.; Guo, H. Y.; Wu, Y. F.; Sun, M. Z.; Zhu, X. S.; Zhang, J. G.; Gong, S. Y.; Liu, P.; Niu, Z. Q. Depolymerization of polyesters by a binuclear catalyst for plastic recycling. *Nat. Sustain.*, **2023**, 6(8), 965–973.
- 18 Dong, Q.; Lele, A. D.; Zhao, X. P.; Li, S. K.; Cheng, S. C.; Wang, Y. Q.; Cui, M. J.; Guo, M.; Brozena, A. H.; Lin, Y.; Li, T. Y.; Xu, L.; Qi, A.; Kevrekidis, I. G.; Mei, J. G.; Pan, X. J.; Liu, D. X.; Ju, Y. G.; Hu, L. B. Depolymerization of plastics by means of electrified spatiotemporal heating. *Nature*, **2023**, 616(7957), 488–494.
- 19 Wen, X. Y.; Niu, R.; Tang, T.; Gong, J. Atmospheric, continuous degradation of poly(ethylene terephthalate) waste by ZnO. *Appl. Catal. B Environ. Energy*, **2025**, 377, 125485.
- 20 Liu, Y.; Yan, P. L.; Li, X. D.; Li, Q. Y.; Li, S. M.; Han, H.; Chu, M. Y.; Fu, J.; Cao, M. H.; Xu, P. P.; Zhang, Q.; He, L.; Chen, J. X. Selective recycling of mixed polyesters *via* heterogeneous photothermal catalysis. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(7), 2412740.
- 21 Kang, Q. Y.; Chu, M. Y.; Xu, P. P.; Wang, X. C.; Wang, S. Q.; Cao, M. H.; Ivasenko, O.; Sham, T. K.; Zhang, Q.; Sun, Q. M.; Chen, J. X. Entropy confinement promotes hydrogenolysis activity for polyethylene upcycling. *Angew. Chim. Int. Ed.*, **2023**, 62(47), e202313174.
- 22 Gong, J.; Chen, X. C.; Tang, T. Recent progress in controlled carbonization of (waste) polymers. *Prog. Polym. Sci.*, **2019**, 94, 1–32.
- 23 Li, H. L.; Eddaoudi, M.; O’Keeffe, M.; Yaghi, O. M. Design and synthesis of an exceptionally stable and highly porous metal-organic framework. *Nature*, **1999**, 402(6759), 276–279.
- 24 Tatay, S.; Martínez-Giménez, S.; Rubio-Gaspar, A.; Gómez-Oliveira, E.; Castells-Gil, J.; Dong, Z. Y.; Mayoral, Á.; Almora-Barrios, N.; Padial, N. M.; Martí-Gastaldo, C. Synthetic control of correlated disorder in UiO-66 frameworks. *Nat. Commun.*, **2023**, 14, 6962.
- 25 Ahmad, W.; Koley, P.; Dwivedi, S.; Lakshman, R.; Shin, Y. K.; van Duin, A. C. T.; Shrotri, A.; Tanksale, A. Aqueous phase conversion of CO₂ into acetic acid over thermally transformed MIL-88B catalyst. *Nat. Commun.*, **2023**, 14(1), 2821.
- 26 Salionov, D.; Semivrazhskaya, O. O.; Casati, N. P. M.; Ranocchiari, M.; Bjelić, S.; Verel, R.; van Bokhoven, J. A.; Sushkevich, V. L. Unraveling the molecular mechanism of MIL-53(Al) crystallization. *Nat. Commun.*, **2022**, 13, 3762.
- 27 Latroche, M.; Surblé, S.; Serre, C.; Mellot-Draznieks, C.; Llewellyn, P. L.; Lee, J. H.; Chang, J. S.; Jhung, S. H.; Férey, G. Hydrogen storage in the giant-pore metal-organic frameworks MIL-100 and MIL-101. *Angew. Chim. Int. Ed.*, **2006**, 45(48), 8227–8231.
- 28 Huang, Y. T.; Lai, Y. L.; Lin, C. H.; Wang, S. L. Direct use of waste PET as unfailing source of organic reagents in the synthesis of intrinsic white/yellow luminescent nanoporous zincophosphates. *Green Chem.*, **2011**, 13(8), 2000.
- 29 Chen, C.; Shen, L. G.; Wang, B. Y.; Lu, X. C.; Raza, S.; Xu, J. J.; Li, B. S.; Lin, H. J.; Chen, B. L. Environmental applications of metal-organic framework-based three-dimensional macrostructures: a review. *Chem. Soc. Rev.*, **2025**, 54(5), 2208–2245.
- 30 Chen, Y. J.; Huang, X. Q.; Chen, Y. F.; Wang, Y. R.; Zhang, H. C.; Li, C. X.; Zhang, L.; Zhu, H. J.; Yang, R. X.; Kan, Y. H.; Li, S. L.; Lan, Y. Q. Polyoxometalate-induced efficient recycling of waste polyester plastics into metal-organic frameworks. *CCS Chem.*, **2019**, 1(5), 561–570.
- 31 Liu, S. Y.; Tian, L.; Han, L. H.; Li, Q.; Zhu, L. L.; Chen, S. Bimetallic Co/Fe-MOF derived from poly(butylene adipate-co-terephthalate) (PBAT) plastic wastes for efficient interfacial solar steam generation. *Desalination*, **2025**, 614, 119118.
- 32 Wu, B. Z.; Zhou, P. C.; Wu, Y. D.; Wei, T. Y.; Wang, X. D.; Jin, J.; Fu, Y. F.; Kuang, T. R. One-reactor upcycling of waste polyesters into functional MOFs for passive radiative cooling. *ChemSusChem*, **2026**, 19(3), e202502566.

- 33 Zhang, X. Y.; She, Y.; Wen, X. Y.; Hu, G. X.; Yu, X. P.; Li, X. Y.; Zhu, X. Y.; Niu, R.; Feng, L. L.; Gong, J. Upcycling waste plastic into electrocatalyst: waste nylon fishnet-derived flexible & rigid Co/Fe-MOF for efficient oxygen evolution reaction. *Appl. Catal. B Environ. Energy*, **2026**, 384, 126184.
- 34 Liu, L. J.; Liu, H. J.; Fan, Z. F.; Liu, J.; Wen, X. Y.; Wang, H. Y.; She, Y.; Hu, G. X.; Niu, R.; Gong, J. Simultaneous solar-driven interfacial evaporation and photo-Fenton oxidation by semiconducting metal-organic framework from waste polyimide. *Energy Environ. Mater.*, **2025**, 8(2), e12812.
- 35 Wang, Y.; He, T. F.; Cao, J. G.; Li, K.; Wang, C. Q.; Liu, Q.; Zhang, Y. Waste-to-microporous framework: Al/Si fractionation of coal fly ash coupled with waste PET conversion for separated synthesis of high-porosity MIL-53(Al) and ZSM-5 toward efficient dyes and CO₂ capture. *J. Mol. Struct.*, **2025**, 1335, 141984.
- 36 Chen, Y. T.; Xia, Z. H.; Zhou, X. J.; Ma, N.; Dai, W. Defective iron-based metal-organic framework derived from discarded plastics for rapid and efficient adsorptive removal of methylmercury. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **2025**, 32(24), 14730–14742.
- 37 Ko, Y.; University, C.; Hinestroza, J. P.; University, C.; Uyar, T.; University, C. Waste treats waste: upcycling polyester textile waste into nanofibrous membranes with UiO-66 for removal of dyes. *ACS Sustainable Chem. Eng.*, **2025**, 13(34), 13794–13807.
- 38 He, P. P.; Bai, H. Y.; Fan, Z. F.; Hao, L.; Liu, N.; Chen, B. Y.; Niu, R.; Gong, J. Controllable synthesis of N/Co-doped carbon from metal-organic frameworks for integrated solar vapor generation and advanced oxidation processes. *J. Mater. Chem. A*, **2022**, 10(25), 13378–13392.
- 39 Chen, B. Y.; Ren, J. X.; Song, Y. H.; He, P. P.; Bai, H. Y.; Fan, Z. F.; Niu, R.; Gong, J. Upcycling waste poly(ethylene terephthalate) into a porous carbon cuboid through a MOF-derived carbonization strategy for interfacial solar-driven water-thermoelectricity cogeneration. *ACS Sustainable Chem. Eng.*, **2022**, 10(49), 16427–16439.
- 40 Xu, E. H.; Han, W. K.; Hu, G. X.; Liu, H. J.; Wang, H. Y.; Qin, M. T.; Chen, X.; Yao, N.; Niu, R.; Gong, J. Efficient interfacial solar-driven evaporation and hydroelectric co-generation by Al-Fum metal-organic framework-derived porous carbon. *Sustain. Mater. Technol.*, **2025**, 44, e01356.
- 41 Dai, Z. K.; Gao, R.; Li, Q. Q.; Qin, M. T.; Yang, J.; Niu, R.; Gong, J. Facile synthesis of dual-functional ZIF-8-based evaporators towards high-performance in seawater desalination and uranium extraction. *J. Environ. Chem. Eng.*, **2024**, 12(5), 113580.
- 42 Al-Enizi, A. M.; Ahmed, J.; Ubaidullah, M.; Shaikh, S. F.; Ahamad, T.; Naushad, M.; Zheng, G. F. Utilization of waste polyethylene terephthalate bottles to develop metal-organic frameworks for energy applications: a clean and feasible approach. *J. Clean. Prod.*, **2020**, 248, 119251.
- 43 Xue, R.; Qiu, C. H.; Zhou, X. L.; Cheng, Y.; Zhang, Z.; Zhang, Y.; Schröder, U.; Bornscheuer, U. T.; Dong, W. L.; Wei, R.; Jiang, M. Enzymatic upcycling of PET waste to calcium terephthalate for battery anodes. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2024**, 63(1), e202313633.
- 44 Pattappan, D.; Nga, T. T. T.; Ramar, S.; Mannu, P. D.; Dong, C. L.; Huang, D. W.; Liao, Y. C.; Kuo, C. C.; Lai, Y. T. Visible-light induced dual charge couplings via green mixed ligand metal-organic framework for boosting photoelectrocatalytic hydrogen production in pharmaceutical wastewater. *Sep. Purif. Technol.*, **2026**, 382, 136041.
- 45 Hu, L. G.; Wu, W. H.; Hu, M.; Jiang, L.; Lin, D. H.; Wu, J.; Yang, K. Double-walled Al-based MOF with large microporous specific surface area for trace benzene adsorption. *Nat. Commun.*, **2024**, 15(1), 3204.
- 46 Peng, Y. G.; Huang, H. L.; Zhang, Y. X.; Kang, C. F.; Chen, S. M.; Song, L.; Liu, D. H.; Zhong, C. L. A versatile MOF-based trap for heavy metal ion capture and dispersion. *Nat. Commun.*, **2018**, 9, 187.
- 47 Ye, X. H.; Chung, L. H.; Li, K. D.; Zheng, S. L.; Wong, Y. L.; Feng, Z. H.; He, Y. H.; Chu, D. D.; Xu, Z. T.; Yu, L.; He, J. Organic radicals stabilization above 300 °C in Eu-based coordination polymers for solar steam generation. *Nat. Commun.*, **2022**, 13, 6116.
- 48 Xu, Y.; Wang, Z. Y.; Wang, X. B.; Guo, Z. Z.; Irshad, M. S.; Arshad, N.; Gong, J.; Liu, H. F.; Li, G. F. Harvesting solar energy with a Ni-MOF-based evaporator for efficient solar thermal storage and steam generation. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(20), 12064–12076.
- 49 Fan, Z. F.; He, P. P.; Bai, H. Y.; Liu, J.; Liu, H. J.; Liu, L. J.; Niu, R.; Gong, J. Green recycling of waste poly(ethylene terephthalate) into Ni-MOF nanorod for simultaneous interfacial solar evaporation and photocatalytic degradation of organic pollutants. *EcoMat*, **2024**, 6(1), e12422.
- 50 Lin, Y. C.; Han, W. K.; Xu, E. H.; Wang, H. F.; Pan, Y. T.; Yao, K.; Gong, J. High performance of interfacial solar-driven water evaporation and power generation by ZIF-8 derived N-doped porous carbon polyhedron. *Sep. Purif. Technol.*, **2025**, 377, 134227.

- 51 Boukayouht, K.; Bazzi, L.; El Hankari, S. Sustainable synthesis of metal-organic frameworks and their derived materials from organic and inorganic wastes. *Coord. Chem. Rev.*, **2023**, 478, 214986.
- 52 Yun, L. X.; Qiao, M.; Zhang, B.; Zhang, H. T.; Wang, J. X. Upcycling plastic wastes into high-performance nano-MOFs by efficient neutral hydrolysis for water adsorption and photocatalysis. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(30), 19452–19461.
- 53 Hoang, T. L. G.; Doan, D. T.; Nguyen, T. T.; Nguyen-Tri, P. Sustainable and cost-effective synthesis of single-layered 2D MIL-53(Al) nanosheets for efficient H₂S capture. *ACS Appl. Nano Mater.*, **2025**, 8(35), 17194–17206.
- 54 Chen, Y. H.; Huang, P. J. Sono-assisted rapid dye removal by chromium-based metal organic frameworks derived from waste PET bottles: characterization, kinetics and adsorption isotherms. *J. Environ. Chem. Eng.*, **2021**, 9(6), 106766.
- 55 Zhao, Y. X.; Li, D. N.; Cai, P. C.; Ni, X. Y.; Chen, G. H.; Xia, D. S.; Sun, Z. X.; Yuan, H. R. Architectural modulation of binary metal-organic frameworks upcycled from waste polyethylene terephthalate for high-performance supercapacitors. *J. Colloid Interface Sci.*, **2025**, 700, 138666.
- 56 Wang, C. Y.; Wang, C. C.; Chu, H. Y.; Wang, P.; Zhao, C.; Fu, H. F. *In situ* growth of MIL-101 (Fe) on waste PET plastic slices for effective arsenic removal. *Sep. Purif. Technol.*, **2024**, 331, 125589.
- 57 Waribam, P.; Rajeendre Katugampalage, T.; Opaprakasit, P.; Ratanatawanate, C.; Chooaksorn, W.; Li, P. W.; Liu, C. H.; Sreearunothai, P. Upcycling plastic waste: rapid aqueous depolymerization of PET and simultaneous growth of highly defective UiO-66 metal-organic framework with enhanced CO₂ capture via one-pot synthesis. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 473, 145349.
- 58 He, P. P.; Hu, Z.; Dai, Z. K.; Bai, H. Y.; Fan, Z. F.; Niu, R.; Gong, J.; Zhao, Q.; Tang, T. Mechanochemistry milling of waste poly(ethylene terephthalate) into metal-organic frameworks. *ChemSusChem*, **2023**, 16(2), e202201935.
- 59 She, Y.; Han, W. K.; Liu, H. J.; Hu, G. X.; Wang, H. Y.; Wen, X. Y.; Liu, L. J.; Feng, L. L.; Zhang, X. Y.; Gong, J. Trace solvents-assisted mechanochemistry of waste poly(ethylene terephthalate) into MIL-53Al for efficient hydroelectricity generation. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 515, 163895.
- 60 Liu, J.; Fan, Z. F.; Liu, H. J.; Liu, L. J.; Wen, X. Y.; Wang, H. Y.; Niu, R.; Wang, H. N.; Cheng, J. J.; Gong, J. Upcycling of waste poly(lactic acid) into crumpled carbon nanosheet towards high-performance interfacial solar-driven evaporation. *J. Environ. Chem. Eng.*, **2024**, 12(2), 112363.
- 61 Slater, B.; Wong, S. O.; Duckworth, A.; White, A. J. P.; Hill, M. R.; Ladewig, B. P. Upcycling a plastic cup: one-pot synthesis of lactate containing metal organic frameworks from polylactic acid. *Chem. Commun.*, **2019**, 55(51), 7319–7322.
- 62 Liu, L. J.; Liu, H. J.; Wang, H. Y.; Liu, K. K.; Hu, G. X.; She, Y.; Wen, X. Y.; Du, H. Y.; Feng, L. L.; Gong, J. Converting waste polyimide into porous carbon nanofiber for all-weather freshwater and hydroelectricity generation. *Green Energy Environ.*, **2025**, 10(11), 2187–2200.
- 63 Bai, H. Y.; He, P. P.; Hao, L.; Fan, Z. F.; Niu, R.; Tang, T.; Gong, J. Waste-treating-waste: upcycling discarded polyester into metal-organic framework nanorod for synergistic interfacial solar evaporation and sulfate-based advanced oxidation process. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 456, 140994.
- 64 Liu, J.; Du, H. Y.; Wang, H. Y.; Zhu, H. R.; Wen, X. Y.; Yu, X. P.; Ai, J. H.; Niu, R.; Yao, N.; Gong, J. Green synthesis of photo-Fenton-active Fe-BDC from waste polyester for co-enhancing solar interfacial evaporation with organic contaminant remediation. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 526, 170839.
- 65 Song, K. N.; Qiu, X. Q.; Han, B.; Liang, S. J.; Lin, Z. Efficient upcycling electroplating sludge and waste PET into Ni-MOF nanocrystals for the effective photoreduction of CO₂. *Environ. Sci. Nano*, **2021**, 8(2), 390–398.
- 66 Sharma, M.; Anshika, Sharma, P.; Janu, V. C.; Gupta, R. Harnessing waste PET bottles for sustainable Ca-MOF synthesis: a high-efficiency adsorbent for uranium and thorium. *J. Mater. Chem. A*, **2024**, 12(39), 26833–26847.
- 67 Cheng, S. A.; Li, Y. X.; Yu, Z.; Su, Y. Q. Efficient adsorption removal of anionic dyes by waste PET-derived MIL-101(Cr). *Sep. Purif. Technol.*, **2025**, 354, 128985.
- 68 Bian, S. Y.; Sun, W. T.; Pan, Y. W.; Zhang, M.; Wu, G. Y.; Huang, Y. D. Zn-MOF derived from waste plastic bottles activated peroxydisulfate for the degradation of oxytetracycline: process mechanism and toxicological analysis. *Chem. Eng. J.*, **2025**, 525, 170288.
- 69 Dyosiba, X.; Ren, J. W.; Musyoka, N. M.; Langmi, H. W.; Mathe, M.; Onyango, M. S. Feasibility of varied polyethylene terephthalate wastes as a linker source in metal-organic framework UiO-66(Zr) synthesis. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **2019**, 58(36), 17010–17016.
- 70 Senthil Raja, D.; Pan, C. C.; Chen, C. W.; Kang, Y. H.; Chen, J. J.; Lin, C. H. Synthesis of mixed ligand and pillared paddlewheel MOFs using waste polyethylene terephthalate material as sustainable ligand source. *Microporous Mesoporous Mater.*, **2016**, 231, 186–191.

- 71 Zhou, L.; Wang, S. J.; Chen, Y. L.; Serre, C. Direct synthesis of robust hcp UiO-66(Zr) MOF using poly(ethylene terephthalate) waste as ligand source. *Microporous Mesoporous Mater.*, **2019**, 290, 109674.
- 72 Lin, X. H.; Xu, J. M.; Sun, G. L.; Sun, J. J.; Xiao, Y.; Hu, Y. L.; Yang, J. Q.; Liao, Y. B.; Liu, J. C.; Shang, M. Y.; Wu, K. Recycling waste poly(ethylene terephthalate) to prepare a Zn-MOF and its application as a nucleating agent for plastics and antibacterial agent on cotton fabrics. *J. Environ. Chem. Eng.*, **2025**, 13(5), 118280.
- 73 El Jery, A.; Pecho, R. D. C.; Tania Churampi Arellano, M.; Aldrery, M.; Elkhaleefa, A.; Wang, C. Q.; Sammen, S. S.; Tizkam, H. H. Transforming waste into value: eco-friendly synthesis of MOFs for sustainable PFOA remediation. *Sustainability*, **2023**, 15(13), 10617.
- 74 Wang, C. Y.; Chu, H. Y.; Wang, C. C.; Wang, P. Ag₃PO₄/UiO-66-NH₂@PET for light-responsive desorption toward sulfamethoxazole. *New J. Chem.*, **2023**, 47(9), 4172–4176.
- 75 Garay, A. L.; Pichon, A.; James, S. L. Solvent-free synthesis of metal complexes. *ChemInform*, **2007**, 38(33), 200733241.
- 76 Stock, N.; Biswas, S. Synthesis of metal-organic frameworks (MOFs): routes to various MOF topologies, morphologies, and composites. *Chem. Rev.*, **2012**, 112(2), 933–969.
- 77 Yuan, W. B.; Friščić, T.; Apperley, D.; James, S. High reactivity of metal-organic frameworks under grinding conditions: parallels with organic molecular materials. *Angew. Chim. Int. Ed.*, **2010**, 49(23), 3916–3919.
- 78 Kole, G. K.; Koh, L. L.; Lee, S. Y.; Lee, S. S.; Vittal, J. J. A new ligand for metal-organic framework and co-crystal synthesis: mechanochemical route to rect-1,2,3,4-tetrakis-(4'-carboxyphenyl)-cyclobutane. *Chem. Commun.*, **2010**, 46(21), 3660.
- 79 Boldyreva, E. Mechanochemistry of inorganic and organic systems: what is similar, what is different? *Chem. Soc. Rev.*, **2013**, 42(18), 7719–7738.
- 80 Štrukil, V. Highly efficient solid-state hydrolysis of waste polyethylene terephthalate by mechanochemical milling and vapor-assisted aging. *ChemSusChem*, **2021**, 14(1), 330–338.
- 81 Liu, H. J.; Liu, L. J.; Fan, Z. F.; Liu, J.; Wang, H. Y.; Wen, X. Y.; Hu, G. X.; Liu, K. K.; Niu, R.; Gong, J. Transforming waste polyester into porous carbon polyhedron for interfacial solar steam and hydrovoltaic electricity co-generation. *Chem. Eng. J.*, **2024**, 485, 149690.
- 82 Gong, Z.; Dai, Z. K.; Dong, Z. Y.; Liu, Q. X.; Milichko, V. A.; Liu, H. J.; Liu, J.; Niu, R.; Gong, J. Green synthesis of luminescent La-MOF nanoparticle from waste poly(ethylene terephthalate) for high-performance in Fe(III) detection. *Rare Met.*, **2024**, 43(8), 3833–3843.
- 83 Wang, H. Y.; Wen, X. Y.; Hu, G. X.; Zhu, H. R.; Dai, Z. K.; Zhang, X. Y.; Wei, Q. Y.; Liu, H. J.; Niu, R.; Gong, J. Enhancing interfacial solar-driven evaporation and hydrovoltaic electricity generation by porous carbon nanoparticles from waste polyester. *J. Mater. Chem. A*, **2026**, 14(8), 4673–4682.
- 84 Li, Y. Y.; Yi, H. L.; Ge, M. Q.; Yao, D. G. Scale-up synthesis of high purity calcium terephthalate from polyethylene terephthalate waste: purification, characterization, and quantification. *Macromol. Mater. Eng.*, **2021**, 306(12), 2100591.
- 85 Li, Y. Y.; Yao, D. G.; Ge, M. Q. Reactive melt processing of poly(ethylene terephthalate) waste into calcium terephthalate. *Express Polym. Lett.*, **2021**, 15(2), 153–165.
- 86 Fan, Z. F.; Liu, J.; Liu, H. J.; Liu, L. J.; She, Y.; Wen, X. Y.; Wang, H. Y.; Hu, G. X.; Niu, R.; Gong, J. Synergism of solar-driven interfacial evaporation and photo-Fenton Cr(VI) reduction by sustainable Bi-MOF-based evaporator from waste polyester. *J. Energy Chem.*, **2024**, 94, 527–540.
- 87 Stolar, T.; Bayram, D.; May, A.; Sundermann, R.; Prinz, C.; Meyer, K.; Myxa, A.; Falkenhagen, J.; Emmerling, F. Selective mechanochemical conversion of post-consumer polyethylene terephthalate waste into hcp and fcu UiO-66 metal-organic frameworks. *RSC Mechanochemistry*, **2026**, 3(2), 293–300.
- 88 Wang, C. Q.; Zhang, X. X.; Wang, L. Y.; Liu, G. G.; Boczkaj, G. Valorization of waste plastics to a novel metal-organic framework derived cobalt/carbon nanocatalyst as peroxymonosulfate activator for antibiotics degradation. *J. Clean. Prod.*, **2025**, 486, 144539.
- 89 Jiang, Q. S.; Chen, Z. J.; Bai, M. Y.; Liu, S.; Lou, X. Y.; Deng, S. M.; Shangguan, Y. Z.; Gu, X. S.; Zeng, Q.; Yang, S. H.; Liu, Y.; Chen, H. Upcycling of waste polyethylene terephthalate (PET) into CoFe@C for highly efficient PV-driven bifunctional seawater splitting via a “waste materialization” strategy. *Appl. Catal. B Environ. Energy*, **2025**, 362, 124756.
- 90 Li, J.; Guo, C. Y.; Wang, K. F.; Wang, Z. Y.; Li, M. T.; Wang, J. D. Upcycling discarded polyethylene terephthalate bottles into Co-MOF/ γ -Fe₂O₃ magnetic material for photocatalytic H₂ evolution. *Int. J. Hydrogen Energy*, **2025**, 156, 149893.

- 91 Li, T.; Ma, S.; Yang, H.; Xu, Z. L. Preparation of carbonized MOF/MgCl₂ hybrid products as dye adsorbent and supercapacitor: morphology evolution and Mg salt effect. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **2019**, 58(4), 1601–1612.
- 92 Al-Enizi, A. M.; Nafady, A.; Alanazi, N. B.; Abdulhameed, M. M.; Shaikh, S. F. Waste polyethylene terephthalate plastic derived Zr-MOF for high performance supercapacitor applications. *Chemosphere*, **2024**, 350, 141080.
- 93 刘辉, 高佳莲, 朱金佗, 李湘, 刘志扬, 黄壮, 张昌伟, 汪少振, 张生辉, 李晓鹏, 赵越, 徐欢. 界面键合调控双金属有机框架在聚乳酸纳纤原位生长及其纳米颗粒物捕集性能研究. *高分子学报*, **2026**, 57(4), 877–888.
- 94 Heng, Y.; Fang, Z.; Li, J.; Luo, L. Q.; Zheng, M. Z.; Huang, H. L. Defective metal-organic framework derived from the waste plastic bottles for rapid and efficient nitroimidazole antibiotics removal. *J. Colloid Interface Sci.*, **2023**, 650, 836–845.
- 95 El Sharkawy, H. M.; Sayed, M. S.; Mohamed, R. S. Eco-Friendly synthesis of MCM-41@MIL-101(Fe) from waste materials for heavy metal adsorption. *Sep. Purif. Technol.*, **2025**, 378, 134540.
- 96 Ren, J. W.; Dyosiba, X.; Musyoka, N. M.; Langmi, H. W.; North, B. C.; Mathe, M.; Onyango, M. S. Green synthesis of chromium-based metal-organic framework (Cr-MOF) from waste polyethylene terephthalate (PET) bottles for hydrogen storage applications. *Int. J. Hydrogen Energy*, **2016**, 41(40), 18141–18146.
- 97 Xing, W. Q.; Wang, D. Y.; Feng, K.; Ding, S. H.; Zhang, X. L.; Xu, H. L.; Gong, J.; Qu, J. P.; Niu, R. Interfacial solar evaporation-driven lithium extraction from salt-lake brines for battery-grade Li₂CO₃ production. *Energy Environ. Sci.*, **2025**, 18(23), 10102–10111.
- 98 Niu, R.; Ren, J. X.; Koh, J. J.; Chen, L.; Gong, J.; Qu, J. P.; Xu, X. D.; Azadmanjiri, J.; Min, J. K. Bio-inspired sandwich-structured all-day-round solar evaporator for synergistic clean water and electricity generation. *Adv. Energy Mater.*, **2023**, 13(45), 2302451.
- 99 Wu, X.; Lu, Y.; Ren, X. H.; Wu, P.; Chu, D. W.; Yang, X. F.; Xu, H. L. Interfacial solar evaporation: from fundamental research to applications. *Adv. Mater.*, **2024**, 36(23), 2313090.
- 100 He, P. P.; Lan, H. Y.; Bai, H. Y.; Zhu, Y. Y.; Fan, Z. F.; Liu, J.; Liu, L. J.; Niu, R.; Dong, Z. Y.; Gong, J. Rational construction of “all-in-one” metal-organic framework for integrated solar steam generation and advanced oxidation process. *Appl. Catal. B Environ.*, **2023**, 337, 123001.
- 101 Wang, F.; Gao, Y.; Chai, Y. T.; Wang, C. C.; Wang, J. F.; Yi, X. H.; Li, Y.; Fu, H. F.; Zhao, C.; Wang, P. Interfacial engineering regulating electronic structure of homologous S-scheme Co₃O₄@C-TiO₂ heterojunction for enhanced Fenton-like reaction activity. *Appl. Catal. B Environ. Energy*, **2025**, 364, 124848.
- 102 Chen, B.; Liu, L.; Song, Y.; Liu, H.; Gong, Z.; She, Y.; Liu, J.; Niu, R.; Gong, J. Functional upcycling of waste polyester into Cr-MOF towards synergistic interfacial solar evaporation and organic pollutant degradation. *Mater. Today Sustain.*, **2023**, 24, 100561.
- 103 Zhu, L. L.; Ding, T. P.; Gao, M. M.; Peh, C. K. N.; Ho, G. W. Shape conformal and thermal insulative organic solar absorber sponge for photothermal water evaporation and thermoelectric power generation. *Adv. Energy Mater.*, **2019**, 9(22), 1900250.
- 104 Fan, Z. F.; Ren, J. X.; Bai, H. Y.; He, P. P.; Hao, L.; Liu, N.; Chen, B. Y.; Niu, R.; Gong, J. Shape-controlled fabrication of MnO/C hybrid nanoparticle from waste polyester for solar evaporation and thermoelectricity generation. *Chem. Eng. J.*, **2023**, 451, 138534.
- 105 Liu, K. K.; Liu, H. J.; Gong, J.; Zhao, Q. High-performance double-drive water evaporation-induced generator operating without liquid water sources. *Adv. Mater.*, **2025**, 37(43), e10119.
- 106 Hu, G. X.; Liu, H. J.; Liu, K. K.; Wang, H. Y.; Wen, X. Y.; Liu, L. J.; She, Y.; Feng, L. L.; Niu, R.; Gong, J. All-In-one carbon foam evaporators for efficient co-generation of freshwater and electricity. *Adv. Funct. Mater.*, **2025**, 35(27), 2423781.
- 107 She, Y.; Hu, G. X.; Wen, X. Y.; Wang, H. Y.; Yang, M.; Feng, L. L.; Dai, Z. K.; Wei, Q. Y.; Niu, R.; Gong, J. High-performance freshwater-hydroelectricity co-generation by porous carbon through waste polyester-derived MOF-assisted carbonization. *Sci. China Mater.*, **2026**, 69(3), 1508–1517.
- 108 Kaviya, R.; Arun, T.; Murugesan, A.; Loganathan, M. Synthesis of efficient copper- and zinc-based MOFs using terephthalic acid linker derived from hydrothermal depolymerization of PET for advanced asymmetric supercapacitor applications. *J. Phys. Chem. Solids*, **2026**, 211, 113444.
- 109 Li, J. X.; Zhang, S.; Hua, Y. M.; Lin, Y. C.; Wen, X.; Mijowska, E.; Tang, T.; Chen, X. C.; Ruoff, R. S. Facile synthesis of accordion-like porous carbon from waste PET bottles-based MIL-53(Al) and its application for high-performance Zn-ion capacitor. *Green Energy Environ.*, **2024**, 9(7), 1138–1150.

- 110 Khder, M. A.; Adly, M. S.; Ibrahim, A. A.; El-Sharkawy, E. A.; Ahmed, A. I. Waste to watt: a sustainable strategy of fabricating NiCoP-supported nanostructured alumina from recycled plastic and Al foil *via* MIL-53(Al) metal organic framework for high-performance supercapacitors. *J. Power Sources*, **2026**, 663, 238811.
- 111 Abo Kamar, S. M.; Ibrahim, A. A.; EL-Hakam, S. A.; El-Sharkawy, E. A.; Ahmed, A. I.; Adly, M. S. Tailoring of CoP/Co-based nitrogen-doped carbon-derived Co-MOF-71 upcycled from plastic waste for high-performance supercapacitor. *J. Energy Storage*, **2025**, 134, 118124.
- 112 Wang, Y. X.; Wang, H. M.; Li, S. Y.; Sun, S. R. Waste PET plastic-derived CoNi-based metal-organic framework as an anode for lithium-ion batteries. *ACS Omega*, **2022**, 7(39), 35180–35190.
- 113 Wang, Y. X.; Meng, K.; Wang, H. M.; Si, Y. H.; Bai, K.; Sun, S. R. Green synthesis of CoZn-based metal-organic framework (CoZn-MOF) from waste polyethylene terephthalate plastic as a high-performance anode for lithium-ion battery applications. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2024**, 16(1), 819–832.
- 114 Nayak, M. P.; Rao, L.; Rodney, J. D.; Sushmitha, S.; Rohit, A. G.; Bhat, B. R. Recycling waste plastics and biowaste into high-performance NiCo-MOF/activated carbon electrocatalyst for overall water splitting. *Int. J. Hydrogen Energy*, **2025**, 184, 151839.

Review

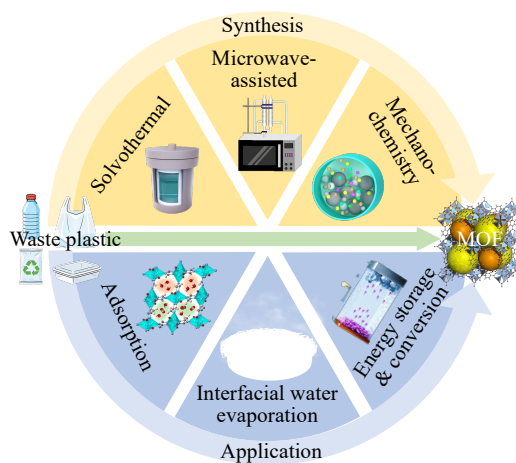
Upcycling of Waste Plastics into Metal–Organic Frameworks *via* Chemical Recycling

Xue-ying Wen, Ling-ling Feng, Zhi-kun Dai, Gui-xin Hu, Ran Niu, Jiang Gong*

(Key Laboratory of Material Chemistry for Energy Conversion and Storage, Ministry of Education,
Hubei Key Laboratory of Material Chemistry and Service Failure, School of Chemistry and Chemical Engineering,
Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074)

Abstract Plastic pollution poses a significant threat to the ecological environment and human health, making it urgent to develop efficient and green recycling technologies for waste plastics. Chemical upcycling, which can directionally convert waste plastics into high-value chemicals or functional materials, is considered a key pathway toward a circular economy. Metal-organic frameworks (MOFs) have emerged as highly promising functional materials due to their high specific surface area, tunable pore size, and abundant active sites. Using waste plastics as ligand precursors to obtain organic acids *via* chemical depolymerization for MOF synthesis not only reduces the synthesis cost but also enables high-value resource utilization of waste plastics. This article systematically reviews the recent research progress on upcycling waste plastics into MOF materials, summarizes various synthesis strategies, and presents the applications of the as-prepared MOFs in adsorption, interfacial water evaporation, and energy storage and conversion. Finally, the current challenges and future development directions are analyzed and prospected, aiming to provide a reference for the synergistic development of waste plastic valorization and the synthesis of high-performance MOF materials.

* Corresponding author: Jiang Gong, E-mail: gongjiang@hust.edu.cn



Keywords Waste plastic; Chemical upcycling; Metal-organic framework; Solar-driven interfacial water evaporation; Environmental remediation