



Proposition d'une méthode d'allocation par répartition paramètre-dépendant pour l'Analyse du Cycle de Vie des produits déchet-sourcés - Application aux fertilisants phosphatés boue-sourcés

Marilys Pradel

► To cite this version:

Marilys Pradel. Proposition d'une méthode d'allocation par répartition paramètre-dépendant pour l'Analyse du Cycle de Vie des produits déchet-sourcés - Application aux fertilisants phosphatés boue-sourcés. Autre. Université de Lyon, 2017. Français. NNT : 2017LYSEM032 . tel-01654530v3

HAL Id: tel-01654530

<https://hal.science/tel-01654530v3>

Submitted on 19 Jul 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



N°d'ordre NNT : 2017LYSEM032

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON
opérée au sein de
l'Ecole des Mines de Saint-Etienne

Ecole Doctorale N° 488
Sciences, Ingénierie, Santé

Spécialité de doctorat : Science et Génie de l'Environnement

Soutenue publiquement le 26/10/2017, par :
Marilys BRUSTEL-PRADEL

**Proposition d'une méthode d'allocation par
répartition paramètre-dépendant pour
l'Analyse du Cycle de Vie des produits
déchet-sourcés**

**Application aux fertilisants phosphatés
boue-sourcés**

Devant le jury composé de :

BLANC Isabelle, Professeure, Ecole des Mines de Paris
AUBIN Joël, Ingénieur de recherche, INRA Rennes
AZZARO-PANTEL Catherine, Professeure, ENSIACET
BARNA Ligia, Professeure, INSA Toulouse
AISSANI Lynda, Ingénieure de recherche, IRSTEA
VILLOT Jonathan, Maître-assistant, Ecole des Mines St Etienne
LAFOREST Valérie, Professeur, Ecole des Mines St Etienne
BAUDEZ Jean-Christophe, IDAE, LIST

Présidente
Rapporteur
Rapporteur
Examinatrice
Encadrante
Encadrant
Directrice de thèse
Co-directeur de thèse

Spécialités doctorales	Responsables	Spécialités doctorales	Responsables
SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX	K. Wolski Directeur de recherche	MATHEMATIQUES APPLIQUEES	O. Roustant, Maître-assistant
MECANIQUE ET INGENIERIE	S. Drapier, professeur	INFORMATIQUE	O. Boissier, Professeur
GENIE DES PROCEDES	F. Gruy, Maître de recherche	SCIENCES DES IMAGES ET DES FORMES	JC. Pinoli, Professeur
SCIENCES DE LA TERRE	B. Guy, Directeur de recherche	GENIE INDUSTRIEL	X. Delorme, Maître assistant
SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT	D. Graillot, Directeur de recherche	MICROELECTRONIQUE	Ph. Lalevée, Professeur

EMSE : Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'État ou d'une HDR)

ABSI	Nabil	CR	Génie industriel	CMP
AUGUSTO	Vincent	CR	Image, Vision, Signal	CIS
AVRIL	Stéphane	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
BADEL	Pierre	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	CIS
BALBO	Flavien	PR2	Informatique	FAYOL
BASSEREAU	Jean-François	PR	Sciences et génie des matériaux	SMS
BATTON-HUBERT	Mireille	PR2	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BEIGBEDER	Michel	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
BLAYAC	Sylvain	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
BOISSIER	Olivier	PR1	Informatique	FAYOL
BONNEFOY	Olivier	MA(MDC)	Génie des Procédés	SPIN
BORBELY	Andras	MR(DR2)	Sciences et génie des matériaux	SMS
BOUCHER	Xavier	PR2	Génie Industriel	FAYOL
BRODHAG	Christian	DR	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BRUCHON	Julien	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	SMS
CAMEIRAO	Ana	MA(MDC)	Génie des Procédés	SPIN
CHRISTIEN	Frédéric	PR	Science et génie des matériaux	SMS
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR1	Génie Industriel	CMP
DEBAYLE	Johan	CR	Sciences des Images et des Formes	SPIN
DEGEORGE	Jean-Michel	MA(MDC)	Génie industriel	Fayol
DELAFOSSÉ	David	PR0	Sciences et génie des matériaux	SMS
DELORME	Xavier	MA(MDC)	Génie industriel	FAYOL
DESRAYAUD	Christophe	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
DJENIZIAN	Thierry	PR	Science et génie des matériaux	CMP
DOUCE	Sandrine	PR2	Sciences de gestion	FAYOL
DRAPIER	Sylvain	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
FAUCHEU	Jenny	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	SMS
FAVERGEON	Loïc	CR	Génie des Procédés	SPIN
FEILLET	Dominique	PR1	Génie Industriel	CMP
FOREST	Valérie	MA(MDC)	Génie des Procédés	CIS
FRACZKIEWICZ	Anna	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	MR(DR2)	Sciences de la Terre	SPIN
GAVET	Yann	MA(MDC)	Sciences des Images et des Formes	SPIN
GERINGER	Jean	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	CIS
GOEURIOT	Dominique	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GONDRAN	Natacha	MA(MDC)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
GONZALEZ FELIU	Jesus	MA(MDC)	Sciences économiques	FAYOL
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences et génie de l'environnement	SPIN
GROSSEAU	Philippe	DR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	PR1	Génie des Procédés	SPIN
GUY	Bernard	DR	Sciences de la Terre	SPIN
HAN	Woo-Suck	MR	Mécanique et ingénierie	SMS
HERRI	Jean Michel	PR1	Génie des Procédés	SPIN
KERMOUCHE	Guillaume	PR2	Mécanique et Ingénierie	SMS
KLOCKER	Helmut	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
LAFOREST	Valérie	MR(DR2)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
LERICHE	Rodolphe	CR	Mécanique et ingénierie	FAYOL
MALLIARAS	Georges	PR1	Microélectronique	CMP
MOLIMARD	Jérôme	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
MOUTTE	Jacques	CR	Génie des Procédés	SPIN
NEUBERT	Gilles			FAYOL
NIKOLOVSKI	Jean-Pierre	Ingénieur de recherche	Mécanique et ingénierie	CMP
NORTIER	Patrice	PR1	Génie des Procédés	SPIN
O CONNOR	Rodney Philip	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
OWENS	Rosin	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
PERES	Véronique	MR	Génie des Procédés	SPIN
PICARD	Gauthier	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
PIJOLAT	Christophe	PR0	Génie des Procédés	SPIN
PINOLI	Jean Charles	PR0	Sciences des Images et des Formes	SPIN
POURCHEZ	Jérémy	MR	Génie des Procédés	CIS
ROUSSY	Agnès	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
ROUSTANT	Olivier	MA(MDC)	Mathématiques appliquées	FAYOL
SANAUR	Sébastien	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences et génie des matériaux	SMS
TRIA	Assia	Ingénieur de recherche	Microélectronique	CMP
VALDIVIESO	François	PR2	Sciences et génie des matériaux	SMS
VIRICELLE	Jean Paul	DR	Génie des Procédés	SPIN
WOLSKI	Krzystof	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR1	Génie industriel	CIS
YUGMA	Gallian	CR	Génie industriel	CMP

Remerciements

Lorsque je me suis engagée dans ce travail de thèse, j'y ai vu une montagne infranchissable. J'ai désormais la preuve que l'on peut atteindre tous les sommets et qu'aucune montagne n'est infranchissable si on est bien accompagné lors de son ascension. Ce travail n'aurait pas été ce qu'il est sans l'appui des personnes suivantes.

Je tiens à remercier en premier lieu Valérie LAFOREST, Maître de recherche à l'Ecole des Mines de Saint Etienne pour avoir assuré avec enthousiasme, rigueur et implication la direction universitaire de ce travail de thèse. Je tiens également à remercier Jean-Christophe BAUDEZ pour m'avoir mis le pied à l'étrier et donné envie de faire une thèse. Merci d'avoir accepté d'assurer la codirection de ce travail et de l'avoir dirigé jusqu'au bout bien qu'ayant été appelé à prendre d'autres fonctions au Luxembourg Institute of Science and Technology.

Tous mes remerciements vont à Madame Catherine AZZARO-PANTEL, Professeure à l'ENSIACET, et à Monsieur Joël AUBIN, Ingénieur de recherche à l'INRA de Rennes, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Je remercie également Madame Isabelle BLANC, Professeure à l'Ecole des Mines de Paris, d'avoir accepté de présider le jury de la thèse, tout comme Madame Ligia BARNA, Professeure à l'INSA de Toulouse, d'avoir participé au jury en tant qu'examinatrice.

Je tiens également à remercier les membres de mon comité de pilotage de thèse pour leurs conseils avisés : Monsieur Pascal DAUTHUILLE, Suez Environnement, Monsieur Philippe ROUX, Irstea UMR ITAP, membre de la Chaire ELSA-PACT, Monsieur Philippe SESSIECQ, Ecole des Mines de Nancy, Monsieur Jean-Michel ROGER, directeur adjoint scientifique du TR INSPIRE et Madame Sylvie GILLOT, directrice adjointe scientifique du TR TED. Merci également à Jonathan VILLOT, Maître-assistant à l'Ecole des Mines de Saint Etienne, pour son encadrement, ses précieux conseils et sa relecture toujours assidue de mes écrits.

Je tiens à remercier tout particulièrement Lynda AISSANI, ingénieure de recherche à Irstea, pour m'avoir encadré tout au long de ces quatre années. Tu m'as parfois poussé dans mes retranchements, fais sortir de ma zone de confort mais cela m'a permis de donner le meilleur de moi-même et de me surpasser. Merci de t'être impliquée avec autant d'enthousiasme dans ce travail, pour nos échanges que j'ai grandement apprécié et qui font que ce travail ne serait pas ce qu'il est sans toi. Tout simplement, merci !

Je tenais enfin à remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué de près ou de loin à ce travail.

Merci à Xavier BAY de l'Ecole des Mines de Saint Etienne pour son aide précieuse lors de la construction mathématique du facteur d'allocation qui est au cœur de ce travail de thèse.

Merci à Guillermo BAQUERIZO de l'UR MALY d'Irstea Lyon pour m'avoir fourni les données de stations d'épuration utilisées dans la partie applicative de ce travail de thèse.

Merci à Jean-Pierre CANLER de l'UR MALY d'Irstea Lyon pour avoir partagé avec moi tes connaissances sur le traitement des eaux usées et ton aide précieuse lors de la détermination des paramètres utilisés pour constituer le facteur d'allocation. Merci également pour ta patience et ta disponibilité pour répondre à mes interrogations lorsqu'elles se présentaient.

Merci à Jean-Christophe ROUX et Emmanuel PIRON de l'UR TSCF d'Irstea Clermont-Ferrand pour votre aide sur l'analyse statistique. Merci à toi, Jean-Christophe, pour le temps que tu as consacré à programmer du code sous R pour me permettre de faire l'analyse de sensibilité du facteur de caractérisation. Tes connaissances du logiciel STATGRAPHICS m'ont été très précieuses. Merci à toi, Emmanuel, d'avoir partagé tes connaissances sur l'analyse Monte-Carlo qui m'ont été très utiles dans l'analyse d'incertitude conduite dans ce travail de thèse.

Merci à l'ensemble de mes collègues du site de recherche et d'expérimentation de Montoldre et à Monsieur Jean-Pierre CHANET, directeur de l'UR TSCF, pour avoir accepté que je consacre le temps nécessaire à la bonne réalisation de ce travail.

Enfin, merci à ma famille et tout particulièrement à Benoist, Charlotte et Guillaume pour la patience dont vous avez fait preuve tout au long de ces quatre années.

Table des Matières

REMERCIEMENTS	1
TABLE DES MATIERES	3
TABLE DES FIGURES.....	7
TABLE DES TABLEAUX.....	9
GLOSSAIRE	11
RESUME	13
ABSTRACT	14
INTRODUCTION.....	15
CHAPITRE 1 – VERS UN CHANGEMENT DE PARADIGME DANS LA FAÇON DE CONSIDERER LES DECHETS ET CONSEQUENCES POUR L’EVALUATION DES PRODUITS BOUE-SOURCES EN ACV.....	19
1. PRODUCTION, VALORISATION ET STATUT DES BOUES D’EPURATION URBAINES EN FRANCE.....	22
1.1. <i>Origine et traitement des boues issues des stations d’épuration urbaines</i>	22
1.1.1. Le traitement des eaux usées à l’origine de la production de boues d’épuration urbaines	22
Traitement de la pollution carbonée.....	22
Traitement de la pollution azotée et phosphatée.....	23
1.1.2. Le traitement, étape préalable à la valorisation des boues d’épuration urbaines	24
Le conditionnement	24
Les procédés d’épaississement	24
Les procédés de déshydratation	25
Les procédés de stabilisation et d’hygiénisation	25
Les procédés de séchage	25
1.2. <i>La valorisation des boues d’épuration urbaines : du simple déchet au produit à valeur ajoutée</i> .	25
1.2.1. L’épandage, voie de valorisation actuelle privilégiée pour les boues d’épuration urbaines	25
1.2.2. De nouvelles voies de valorisation innovantes pour les boues d’épuration urbaines offrant des perspectives de production de produits à valeur ajoutée	26
Production de biohydrogène.....	26
Production de différents produits à partir de la pyrolyse	27
Production d’électricité.....	27
Production de biométhane	27
Production de céramiques	27
Production de bioplastiques.....	28
Production de struvite et phosphate de calcium	28
1.3. <i>Statut réglementaire des boues d’épuration urbaines</i>	28
1.3.1. Les boues sous statut déchet.....	29
1.3.2. Les boues sous statut produit	30
1.3.3. Vers une sortie du statut de déchet pour la boue d’épuration urbaine	31
2. L’ANALYSE DU CYCLE DE VIE, UN OUTIL POUR EVALUER LES PERFORMANCES ENVIRONNEMENTALES D’UN SYSTEME	33
2.1. <i>Principes de l’Analyse du Cycle de Vie</i>	33
2.2. <i>Cadre méthodologique de l’Analyse du Cycle de Vie</i>	34
2.2.1. Définition de l’objectif et du champ de l’étude	34
Définition des objectifs	34
Définition du champ de l’étude.....	34
2.2.2. Analyse de l’inventaire du cycle de vie	38
2.2.3. Evaluation des impacts environnementaux.....	39

2.2.4.	Interprétation des résultats	40
2.3.	<i>Questionnement posé à l'ACV dans le cas de l'évaluation de nouveaux produits issus de boues d'épuration urbaines</i>	41
3.	MISE EN EVIDENCE D'UN CHANGEMENT DE STATUT POUR LA BOUE D'EPURATION URBAINE PAR LE PASSAGE D'UN STATUT « DECHET » A UN STATUT « PRODUIT » : CONSEQUENCE POUR L'EVALUATION ENVIRONNEMENTALE DE CES SYSTEMES	43
3.1.	<i>Introduction</i>	46
3.2.	<i>Methods</i>	48
3.2.1.	Prerequisites and assumptions	48
	Life Cycle Assessment modelling	48
	Terms definition	52
3.2.2.	Methodology under the critical review analysis	53
3.3.	<i>Results of the critical review analysis</i>	54
3.3.1.	Corpus description	54
3.3.2.	Crossed analyses of the reviewed papers	56
	Analysis A – Crossed-analysis of objectives with system boundaries	56
	Analysis B – Crossed-analysis of functions and functional units with objectives, system boundaries, and allocation rules	57
	Analysis C – Crossed-analysis of system boundaries and allocation rules with the “zero burden assumption” ..	60
3.4.	<i>Discussion</i>	61
3.4.1.	Consistency in LCA modelling between “waste”, “waste-to-product”, “product” sludge status, and the “zero burden assumption”	62
3.4.2.	Giving accuracy in LCA modelling according to the sludge status	64
3.4.3.	Next challenge for LCA modelling and research agenda	66
3.5.	<i>Conclusion</i>	66
3.6.	<i>References</i>	67
4.	IDENTIFICATION DES BESOINS DE RECHERCHE ET POSITIONNEMENT DE LA QUESTION DE RECHERCHE DEVELOPPEE DANS LA THESE	77

CHAPITRE 2 – PROPOSITION D'UNE METHODE D'ALLOCATION PAR REPARTITION BASEE SUR LE COUPLAGE DE PARAMETRES PRODUITS ET PROCEDES POUR ALLOUER LES IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX ENTRE COPRODUITS D'UN SYSTEME INDIVISIBLE

1.	CHOIX D'UNE METHODE D'ALLOCATION PAR REPARTITION BASEE SUR UNE APPROCHE PARAMETRE-DEPENDANT	82
1.1.	<i>Caractéristiques et logiques de détermination des relations causales</i>	82
1.2.	<i>Positionnement des différentes approches par répartition rencontrées selon leur degré de complexité</i>	83
1.2.1.	Allocation basée sur des proxys de nature physique ou économique	84
1.2.2.	Allocation proposée par le centre Ecoinvent	85
1.2.3.	Allocation basée sur un calcul paramétré du facteur d'allocation	88
1.2.4.	Allocation basée sur une approche dynamique de modélisation du facteur d'allocation	89
1.3.	<i>Choix du type d'allocation par répartition dans le cas d'un système de production combiné indivisible : application à la production de boue</i>	89
2.	PROPOSITION D'UN FACTEUR D'ALLOCATION BASE SUR DES PARAMETRES PRODUITS ET PROCEDES POUR EVALUER LES IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX DE LA PRODUCTION DE PRODUITS BOUE-SOURCES	91
2.1.	<i>Introduction</i>	94
2.2.	<i>Allocation procedure in LCA</i>	95
2.2.1.	Constructing allocation factors based on relevant causal relationships	95
2.2.2.	Using a macroscopic to microscopic approach to determine an allocation factor	97
2.2.3.	Mathematical modelling used in allocation procedure	97
2.3.	<i>Constructing an allocation factor for wastewater treatment</i>	99
2.3.1.	Modelling a wastewater treatment plant	99
2.3.2.	Determining which parameters to use to construct the allocation factor	100
	Process-related parameters	100

Product-related parameters.....	103
2.3.3. Constructing the allocation factor <i>Csludge</i>	107
Step 1. Mathematical representation of process- and product-related parameters	107
Step 2. Constructing a global allocation factor C_g	108
Step 3. Determining a corrective inventory matrix I	109
Step 4. Finalising allocation factor C_r	110
2.3.4. Robustness of allocation factor <i>Csludge</i> for sludge production	110
2.3.5. Benefits of the method for LCA allocation.....	112
2.4. Discussion	112
2.4.1. Importance of system modelling in constructing <i>Csludge</i>	112
2.4.2. Determining the process- and product-related parameters used to construct <i>Csludge</i>	113
Identifying parameters	113
Determining parameter values	113
2.4.3. Robustness of <i>Csludge</i>	114
2.5. Conclusion	114
2.6. References	114
3. CONCLUSION	120
CHAPITRE 3 – ANALYSE DU CYCLE DE VIE DE PRODUITS FERTILISANTS PHOSPHATES BOUE-SOURCE ET COMPARAISON AUX FERTILISANTS ISSUS DE RESSOURCES NON RENOUVELABLES	121
1. INTRODUCTION.....	127
2. MATERIAL AND METHODS.....	128
2.1. Goal and Scope definition.....	128
2.1.1. System boundaries	129
2.1.2. Functional unit.....	130
2.1.3. Description of the scenarios	130
2.2. Life Cycle Inventory.....	131
2.2.1. Inventory data for sludge production.....	135
Data from sewer network and wastewater treatment line.....	135
Allocation factors	135
2.2.2. Inventory data for sludge treatment	136
Thickening	136
Anaerobic digestion	136
Dewatering.....	137
Storage	137
Struvite precipitation	137
Incineration	137
2.3. Life Cycle Impact Assessment	137
3. RESULTS AND DISCUSSION.....	138
3.1. Impact of sludge-based and mineral phosphate fertilizers	138
3.1.1. General overview of impact contribution for each scenario	138
3.1.2. In-depth analysis of contribution to sludge-based product environmental impacts.....	139
3.2. Consequence of the allocation of environmental burdens for sludge production.....	142
3.3. Improving the environmental impact of sludge-based phosphate fertilizers.....	143
3.3.1. Increasing phosphorus recovery potential with less reactants	143
3.3.2. Providing a sludge-based fertilizer with the same agronomical potential than mineral fertilizer.....	144
3.3.3. Towards a relevant assessment of phosphorus recovery for Abiotic Depletion impact category.....	144
4. CONCLUSION	146
5. ACKNOWLEDGEMENTS.....	146
6. REFERENCES	146
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	151
REFERENCES	157

ANNEXES.....	165
ANNEXE 1. SUPPLEMENTARY INFORMATION FOR “CONSTRUCTION OF AN ALLOCATION FACTOR BASED ON PRODUCT- AND PROCESS-RELATED PARAMETERS TO ASSESS THE ENVIRONMENTAL BURDENS OF THE PRODUCTION OF VALUE-ADDED SLUDGE-BASED PRODUCTS - SUPPLEMENTARY INFORMATION”	165
ANNEXE 2. APPLICATION DE LA METHODE D’ALLOCATION AU RAFFINAGE DU PETROLE	176
ANNEXE 3. WORD SUPPLEMENTARY INFORMATION FOR “ASSESSING ENVIRONMENTAL IMPACTS OF PHOSPHATE FERTILIZER PRODUCTION FROM WASTEWATER SLUDGE AND PHOSPHATE ORE – A LIFE CYCLE ASSESSMENT PERSPECTIVE”	181
ANNEXE 4. EXCEL SUPPLEMENTARY INFORMATION FOR “ASSESSING ENVIRONMENTAL IMPACTS OF PHOSPHATE FERTILIZER PRODUCTION FROM WASTEWATER SLUDGE AND PHOSPHATE ORE – A LIFE CYCLE ASSESSMENT PERSPECTIVE”	190
<i>Onglet “Allocation factor for S1”</i>	<i>191</i>
<i>Onglet “Allocation factor for S2”</i>	<i>192</i>
<i>Onglet “Contribution Analysis”</i>	<i>193</i>
<i>Onglet “Graph contribution”</i>	<i>194</i>
<i>Onglet “Contribution Origin”</i>	<i>195</i>
<i>Onglet “Graphs Origin”</i>	<i>196</i>
ANNEXE 5. ANALYSE DE SENSIBILITE DES IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX DE CHAQUE SCENARIO EVALUE AU REGARD DES PARAMETRES PROCEDES ET PRODUITS UTILISES POUR LE CALCUL DU FACTEUR D’ALLOCATION PROPOSE A L’AIDE DE LA METHODE MONTE CARLO	197
<i>Données de paramétrage utilisées pour l’analyse de sensibilité</i>	<i>197</i>
<i>Réalisation de l’analyse de sensibilité à l’aide du logiciel GaBi 6 ®</i>	<i>199</i>
<i>Résultats de l’analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S1</i>	<i>201</i>
<i>Résultats de l’analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S2A</i>	<i>203</i>
<i>Résultats de l’analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S2B</i>	<i>205</i>

Table des Figures

Figure 1 : Représentation schématique des différentes natures de boues produites dans une station de traitement des eaux usées	24
Figure 2. Schéma synthétique des différentes voies de production de produits à valeur ajoutée à partir de boues d'épuration urbaines	26
Figure 3. Arbre de décision pour la distinction produit / déchet / sous-produit dans le contexte des processus de production (Houot et al, 2014).....	29
Figure 4. Statut réglementaire des produits fertilisants (Houot et al., 2014)	30
Figure 5: Principes de l'Analyse du Cycle de Vie	33
Figure 6 : Différents types de multifonctionnalité induite selon l'objectif de l'étude	36
Figure 7. Exemple de diagramme de flux (Joliet, 2005).....	38
Figure 8. Evaluation de l'impact environnemental du cycle de vie	39
Figure 9 : Spécificités des frontières du cycle de vie Produit/Déchets, adapté de Björklund (2000)	41
Figure 10. Solutions to handle multifunctionality in LCA (adapted from ILCD Handbook, 2010)	50
Figure 11. Differences in sewage sludge management by considering sewage sludge from a "waste" point of view (a) or from a "product" point of view (b).....	52
Figure 12. System boundaries of the reviewed papers.....	55
Figure 13. Repartition of the type of functions according to the objectives of the LCA studies, the system boundaries and the associated allocation rules.....	58
Figure 14. Repartition of the nature of the functional units according to the objectives of the LCA studies, the system boundaries and the associated allocation rule	58
Figure 15. LCA modelling according to the sludge status: " waste" sludge (a) and "waste-to-product" (b) or "product" sludge (c)	65
Figure 16. Différences des frontières du système en ACV entre boue « déchet » (a), boue « produit » (b) et produit issu de ressources non renouvelables (c).....	77
Figure 17. Positionnement des différentes approches par répartition rencontrées selon leur degré de complexité	84
Figure 18. Approche cut-off by classification pour les matériaux recyclables proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)	86
Figure 19. Approche cut-off by classification pour les déchets proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)	86
Figure 20. Approche allocation at the point of substitution proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)	87
Figure 21. Exemple d'allocation correction data set sur la base du contenu carbone (tiré de Weidema et al., 2013)	87
Figure 22. Wastewater treatment system modelling.....	99
Figure 23. General framework of the construction of allocation factor C_r (a) and application to wastewater treatment (b).....	107
Figure 24. Sensitivity analysis results for the allocation factor C_{sludge} for sludge production with (a) box plot representation of the % of the allocation value for each coproduct, (b) the effect of the range of variability for each parameter on the allocation factor result	111
Figure 25. System boundaries of the LCA study for sludge-based products.....	129
Figure 26. Scenario description for sludge-based products.....	131
Figure 27. LCIA results for four scenarios (Sref, S1, S2A and S2B) from CML2001 characterization method.....	138
Figure 28. LCIA results without avoided impact scores from CML2001 characterization method for each sludge-based scenario (S1, S2A and S2B).....	139

<i>Figure 29. Comparison of the contribution of phosphorus consumption to resources depletion impact category from CML2001 and the method recommended by ILCD Handbook for the four scenarios.....</i>	<i>145</i>
<i>Figure 30. Range of variation (in red) for direct oxidation</i>	<i>172</i>
<i>Figure 31. Evolution of P removal efficiency according to Fe/P molar ratio (adapted from Canler and Choubert, 2007)</i>	<i>174</i>
<i>Figure 32. Mass flow balance for WWTP1 (a) and WWTP2 (option A and B) (b).....</i>	<i>183</i>

Table des Tableaux

Table 1. Consistency in LCAs system modelling by crossing “the zero burden assumption” principle and the sludge status according to the system boundaries and the allocation rules (Y = Yes, N = No)	63
Table 2. Mathematical notation and values for process-related parameters.....	102
Table 3. Mathematical notation and values for product-related parameters	106
Table 4. Inventory data used to illustrate to the corrective inventory matrix and the environmental burdens of wastewater treatment considered as two mono-functional processes (annual data given for the production of 25 317 kg of P leaving the WWTP as sludge). Csludge refers to the allocation factor for sludge production. .	109
Table 5. Average influent, average effluent and general characteristics for each wastewater treatment plant	132
Table 6. Life cycle inventory input data for three scenarios (S1, S2A and S2B).....	133
Table 7. Life cycle inventory output data for three scenarios (S1, S2A and S2B)	134
Table 8. Allocation factors used to allocate the impact of inventory data to sludge and water production	136
Table 9. Main contributing processes for LCIA results of each sludge-based scenario (S1, S2A and S2B)	141
Table 10. Contribution of sludge production step for each sludge-based scenario in % of total scenario impact (without avoided impact).....	142
Table 11. Amount of reactant needed to recover 1 kg of phosphorus for each scenario.....	143
Table 12. Range of variation (in red) for indirect oxidation	173
Table 13. Range of variation (in red) for nitrogen removal.....	174
Tableau 14. Calcul de α distillation, fraction pour chaque fraction obtenue à partir du procédé de distillation atmosphérique	177
Tableau 15. Caractéristiques des masses, volumes, PCI massiques pour chaque coupe pétrolière du processus de distillation atmosphérique du pétrole	178
Tableau 16. Facteurs d'allocation basés sur la masse, le volume, le pouvoir calorifique inférieur et les paramètres procédés et produits de chaque coupe pétrolière obtenue lors de la distillation du pétrole brut ...	179
Table 17. Hypotheses used to calculate mass balance for sludge treatment for WWTP 1	181
Table 18. Hypotheses used to calculate mass balance for sludge treatment for WWTP 2	182
Tableau 19. Synthèse des paramètres procédés utilisés pour réaliser l'analyse de sensibilité Monte Carlo	197
Tableau 20. Synthèse des paramètres produits utilisés pour réaliser l'analyse de sensibilité Monte Carlo	198
Tableau 21. Données utilisées pour réaliser l'analyse de sensibilité avec Monte Carlo pour le scénario S1.....	199
Tableau 22. Données utilisées pour réaliser l'analyse de sensibilité avec Monte Carlo pour les scénarios S2A et S2B	200

Glossaire

ACV	Analyse du Cycle de Vie
ADEME	Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
AFNOR	Agence Française de Normalisation
ANSES	Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail
BN FERTI	Bureau de Normalisation de la Fertilisation
C	Symbole chimique du carbone
CE	Commission Européenne
CML	Centrum Milieukunde Leiden
DALY	Disability Adjusted Life Years
DBO ₅	Demande Biochimique en Oxygène à 5 jours
DCO	Demande Chimique en Oxygène
ETM	Eléments Traces Minéraux
ICV	Inventaire du Cycle de Vie
ILCD	International Reference Life Cycle Data System
ISO	International Standard Organization
JRC	Join Research Center
MAFOR	Matières fertilisantes d'origine résiduaire
MEDDE	Ministère de l'Ecologie, du Développement durable et de l'Energie
MES	Matières En Suspension
MJ	Mégajoules
MS	Matière sèche
Mt	Millions de tonnes
N	Symbole chimique de l'azote
NFU	Norme Française appliquée aux matières et objets utilisés en agriculture
OCDE	Organisation de coopération et de développement économiques
P	Symbole chimique du phosphore
PACM	Piles à combustion microbienne
PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur
PE	Polyethylene

PET	Polyethylene terephthalate
PDF	Potential Disappeared Fraction of species
PHA	Polyhydroxyalcanoates
PP	Polypropylene
PVC	Polyvinyl chloride
STEU	Station de traitement des eaux usées
UF	Unité fonctionnelle

Résumé

Les activités humaines et industrielles produisent des eaux usées devant être dépolluées. Le traitement de ces eaux usées est lui-même générateur de déchets, les boues d'épuration urbaines. Ces dernières peuvent être soit valorisées sur les sols agricoles au regard de leur pouvoir fertilisant et amendant, soit valorisées énergétiquement. Toutefois, du fait de réglementations européennes de plus en plus contraignantes, les boues d'épuration font l'objet de recherches visant à développer des procédés permettant de les transformer en produits à forte valeur ajoutée (bioplastiques, engrais minéraux, céramiques, biométhane, etc.). Dans ce contexte, les boues pourraient donc passer d'un statut de déchet fatal à un statut de coproduit attendu à l'issue de l'épuration des eaux. Ce changement de paradigme a des conséquences sur l'évaluation environnementale par Analyse du Cycle de Vie (ACV) des produits « boue-sourcés ». En effet, la boue, devenue un coproduit attendu, doit endosser de fait une part de la charge environnementale du procédé dont elle est issue. La station de traitement des eaux usées produisant de manière indivisible l'eau épurée et la boue, la possibilité de répartir la charge environnementale entre ces deux coproduits passe par l'élaboration d'un facteur d'allocation. Ce facteur d'allocation doit pouvoir refléter la réalité technologique du procédé.

Cette thèse propose une construction mathématique de ce facteur d'allocation en combinant des paramètres « procédés » et « produits », intégrant *de facto* les relations causales entre la conduite du procédé et l'obtention des produits. La résultante se présente sous la forme d'une matrice dont chaque élément associe, pour chaque donnée d'inventaire, un facteur d'allocation à chacun des coproduits générés. Appliquée à la production de fertilisants phosphatés boue-sourcés, l'ACV ainsi réalisée a permis de mettre en lumière la contribution majeure de l'étape de production par rapport aux étapes de traitement et valorisation de la boue.

Cette ACV a mis en évidence que les performances environnementales de cette filière boue-sourcée ne sont pas systématiquement plus favorables que les filières issues de ressources non renouvelables. Dans ce cas précis, même si le procédé de récupération permet de préserver la ressource minérale en phosphore, la balance reste défavorable aux produits boue-sourcés. Ce résultat provient essentiellement des rendements parfois limités de récupération du phosphore, lui-même en concentration relativement faible dans les boues, et de l'utilisation importante d'énergie et de réactifs lors de la fabrication de ces produits.

Cette méthodologie de construction d'un facteur d'allocation permettant d'attribuer une charge environnementale à chacun des coproduits d'un système de production indivisible ouvre la voie à une évaluation environnementale plus cohérente des produits déchet-sourcés. Cette méthodologie peut également être pertinemment utilisée lors de l'évaluation environnementale des procédés de séparation de nature thermique, chimique ou physique.

Abstract

Human and industrial activities produce wastewater to be treated. Appropriate treatments generate a by-product, i.e. sewage sludge, which can be reused as raw material for fertilization or incineration. However, as a result of increasingly stringent European regulations, processes are developed to convert sewage sludge into high value-added products (bioplastics, mineral fertilizers, ceramsites, biomethane, etc.). In this context, sludge could thus move from a fatal waste status to a status of an expected co-product of the wastewater treatment. This paradigm shift has implications for environmental assessment of "sludge-based" products using Life Cycle Assessment (LCA). Indeed, sludge, as an expected co-product, must logically take part of the environmental load of the process from which it comes from. Since treated water and sludge are two indivisible results generated by the wastewater treatment plant, allocating the environmental burden between these two co-products requires the development of an allocation factor reflecting the technological reality of the process.

This thesis proposes a mathematical construction of this allocation factor by combining process- and product-related parameters, integrating *de facto* the causal relationships between the operation of the process and the production of the products. The resultant takes the form of a matrix in which each element associates an allocation factor for each generated co-products and each inventory data item. Applied to the production of sludge-based phosphate fertilizers, the LCA made it possible to highlight the major contribution of the production stage compared to the stages of treatment and recovery of the sludge.

This LCA has highlighted that the environmental performance of this sludge-based stream is not systematically more environmental friendly than those from non-renewable resources. In this case, even if the recovery process allows the phosphorus mineral resource to be preserved, the balance remains unfavorable to the sludge-based products. This result is mainly due to the limited yields of phosphorus recovery, which is relatively low in sludge, and the high energy and reagent use in the manufacture of these products.

The construction of an allocation factor developed to allocate an environmental burden to each of the co-products of an indivisible production system paves the way for a more coherent environmental assessment of waste-based products. This methodology can also be used effectively in the environmental assessment of thermal, chemical or physical separation processes.

Introduction

Tel un précurseur, Paul Valéry écrivait en 1931 dans *Regards sur le monde actuel* « *Le temps du monde fini commence* » mettant ainsi en lumière le fait que l'ensemble des territoires de notre planète a été découvert, que les êtres humains vivent dorénavant de manière interdépendante à l'échelle mondiale et que se poursuit le recensement général des ressources.

La finitude des stocks de ressources d'énergie fossiles et minérales de la planète et sa capacité de charge¹ limitée sont des états de fait qui s'opposent tels des remparts à une population mondiale sans cesse croissante. Le développement durable, défini comme « *un développement qui répond aux besoins des générations présentes sans compromettre la capacité des générations futures de répondre aux leurs* », est dorénavant au cœur du débat : la précarité de l'environnement impose de trouver des réponses aux mutations provoquées par les activités humaines (Brundtland, 1987). En effet, si les 9 milliards d'habitants de la planète disposaient d'un niveau de consommation égal aux pays de l'OCDE aujourd'hui, il faudrait multiplier par 15 les économies en termes de consommations de ressources selon Dominique Bourg (Bourg, 2010; Bourg et Whiteside, 2009). Cette finitude matérielle des ressources commence à avoir des répercussions sur les modes de vie des sociétés modernes en imposant une révolution radicale de notre mode de production et de consommation (Fragnière, 2012). Certains politiques, économistes et philosophes prônent d'ailleurs la notion de décroissance non pas comme un choix idéologique mais comme une nécessité pour faire face à la finitude des ressources planétaires.

La prise de conscience par le monde scientifique de la finitude de la planète a conduit certains chercheurs de renom à définir neuf limites planétaires (*Planetary Boundaries*) à ne pas dépasser pour que l'humanité puisse se développer dans un écosystème sûr, c'est-à-dire sans lui infliger de dommages environnementaux irréversibles (Rockström et al., 2009). Une actualisation de leur travaux en 2015 a démontré que quatre des neuf limites planétaires étaient déjà dépassées ou sur le point de l'être (Steffen et al., 2015) :

- changement climatique : limite en passe d'être atteinte si la croissance actuelle des émissions de gaz à effet de serre se poursuit ;
- érosion de la biodiversité : limite déjà dépassée en 2009 ;

¹ Lors de la première conférence sur l'environnement (Stockholm, 1972), Ehrlich avec son livre « *The Population Bomb* » (Ehrlich, 1971) diffuse le concept de capacité de charge. La capacité de charge fait référence à l'effectif maximal de population que peut supporter la planète. Les organisations internationales prennent conscience à ce moment des limites physiques et biologiques de la Terre et certains agronomes et biologistes pensent alors que le seuil d'irréversibilité est déjà atteint: augmentation de l'effet de serre, amenuisement de la biodiversité, érosion des terres cultivables, raréfaction de l'eau, etc.

- perturbation du cycle de l'azote : limite déjà atteinte en 2009 ;
- perturbation du cycle du phosphore : limite désormais franchie, avec cependant des variations importantes selon les régions.

Bien que la prise de conscience de la finitude des ressources et des limites planétaires ait fait son chemin au sein de la communauté scientifique et mis en évidence la nécessité de préserver la ressource, le chemin vers cette prise de conscience par la société est beaucoup plus long. La mise en œuvre concrète d'actions visant à limiter l'épuisement des ressources n'a commencé à porter ses fruits qu'au cours de ces dix dernières années. En France, cette prise de conscience a été à l'origine des rencontres du Grenelle de l'Environnement en 2007, précurseur d'une politique orientée dorénavant vers une transition énergétique et écologique et illustré par la mise en œuvre du concept d'économie circulaire.

L'économie circulaire désigne un modèle économique dont l'objectif est de produire des biens et des services de manière durable. Elle est définie par la loi relative à la transition énergétique pour la croissance verte du 18 août 2015 : « *La transition vers une économie circulaire vise à dépasser le modèle économique linéaire consistant à extraire, fabriquer, consommer et jeter en appelant à une consommation sobre et responsable des ressources naturelles et des matières premières primaires ainsi que, par ordre de priorité, à la prévention de la production de déchets, notamment par le réemploi des produits, et, suivant la hiérarchie des modes de traitement des déchets, à une réutilisation, à un recyclage ou, à défaut, à une valorisation des déchets.* » Un des objectifs de l'économie circulaire consiste notamment en la prévention et la gestion des déchets en réduisant de 10 % les quantités de déchets ménagers et assimilés, en atteignant un taux de 65 % de recyclage en 2025 pour les déchets non dangereux non inertes et en réduisant de moitié la mise en décharge en 2025 par rapport à 2010 (Journal Officiel, 2015).

Le recyclage de ces déchets est donc présenté comme un palliatif à l'épuisement des ressources. Les produits déchet-sourcés qui en résultent pourraient remplacer à terme partiellement voire totalement les produits issus de ressources non renouvelables pétrolières ou minérales. Le gain environnemental présumé de ce recyclage ne peut être toutefois effectif que si les produits déchet-sourcés présentent une plus-value environnementale globale par rapport aux produits qu'ils sont destinés à remplacer. La robustesse de l'évaluation des performances environnementales de ces produits déchet-sourcés au moyen d'outils et méthodes adaptés est donc un enjeu fort pour assurer la durabilité du recyclage des déchets et la réduction de la consommation des ressources naturelles non renouvelables.

Au cours des dernières décennies, plusieurs méthodes visant à estimer les impacts causés par les systèmes anthropiques sur l'environnement ont été développées, parmi lesquelles la méthode d'Analyse du Cycle de Vie (ACV). Cette méthode présente deux grands intérêts : tendre vers l'exhaustivité des impacts environnementaux évalués et être basée sur l'approche cycle de vie permettant la prise en compte des étapes de fabrication, consommation et fin de vie du système étudié. Ainsi, il est possible d'identifier les points faibles d'un système et de proposer des leviers d'amélioration pour tendre vers une écoconception (ISO 14040, 2006; ISO 14044, 2006; ILCD Handbook, 2010).

La méthode d'Analyse du Cycle de Vie peut être appliquée quel que soit le système étudié dans la mesure où la modélisation de ce dernier est représentative de la fonction qu'il assure. Initialement développée dans les années 1990 pour évaluer les impacts des produits manufacturés, les ACV « produits » prennent en compte l'ensemble du cycle de vie du produit depuis l'extraction des matières premières jusqu'à sa fin de vie. La fin de vie des produits étant souvent mal évaluée du fait de manque de connaissance des filières, des ACV centrées sur cette étape de fin de vie ont émergées et sont communément appelées ACV « déchets ». Les ACV « déchets » prennent en compte uniquement les procédés de traitement visant à traiter le produit devenu déchet jusqu'à ce qu'il regagne de la valeur ou quitte le système sous forme d'émissions (Ekvall et al., 2007; Finnveden, 1999).

La réalisation de ces ACV « produits » et ACV « déchets » mettent en œuvre une modélisation du système faisant l'objet d'un consensus au sein de la communauté scientifique ACV (Heijungs et al., 1992; McDouglas et al., 2001). Toutefois, la réalisation d'ACV portant sur la production de produits déchet-sourcés questionne la méthode ACV au regard de la modélisation de ces systèmes. En effet, la modélisation d'une ACV de produit déchet-sourcé se situe à l'intersection entre la modélisation d'une ACV « déchet » et une ACV « produit ». Les ACV « déchets » ont généralement pour fonction de traiter un déchet et cette fonction est caractérisée par une unité fonctionnelle entrante (i.e. la quantité de déchet à traiter). A cette fonction principale peuvent s'ajouter plusieurs fonctions secondaires lorsque le déchet est valorisé sous forme d'énergie, matière ou nutriment. Le déchet intègre la filière de traitement avec un contenu (carbone, azote, métaux lourds...) mais sans charge environnementale liée à sa production (notion de *zero burden assumption*). A contrario, les ACV « produits » ont principalement pour fonction l'évaluation des impacts de l'ensemble du cycle de vie du produit et sont caractérisées par une unité fonctionnelle sortante (i.e. la quantité sortante de produit manufacturé). La réalisation d'une ACV de produit déchet-sourcé impliquerait donc de prendre en compte l'ensemble du cycle de vie dudit produit, y compris la production du déchet dont il est originaire.

L'objectif de ce travail de thèse est de proposer un cadre méthodologique permettant d'évaluer les performances environnementales des produits déchet-sourcés dans l'objectif d'évaluer leurs impacts environnementaux potentiels et par conséquent leur plus-value environnementale par rapport aux produits pétro-sourcés et minéro-sourcés qu'ils pourraient remplacer à terme. Ce travail de thèse est illustré par le cas des boues issues du traitement des eaux usées, candidates idéales à la production de produits issus de déchets. Ce manuscrit est structuré en trois chapitres s'articulant chacun autour d'un article scientifique.

Le premier chapitre est consacré à la mise en évidence d'un changement de paradigme dans la façon de considérer les déchets et à l'identification des questionnements méthodologiques qui en découlent. Après une description des contextes dans lesquels s'inscrivent ces travaux de recherche, à savoir les boues d'épuration urbaine et l'ACV, le passage du statut de « déchet » à « produit » est mis en évidence en s'appuyant sur une revue de la littérature des ACV appliquées aux boues d'épuration urbaines. Les problèmes méthodologiques qui en découlent et la formulation de la question de recherche à laquelle se propose de répondre cette thèse – à savoir

« Comment affecter au produit déchet-sourcé une part de la charge environnementale du système à l'origine dudit déchet ? » – clôturent ce chapitre.

Dans le deuxième chapitre, les développements méthodologiques menés durant la thèse sont détaillés. Une analyse des méthodes d'allocation par répartition disponibles a conduit à un positionnement des différentes approches identifiées selon leur degré de complexité. Le choix d'une méthode basée sur une approche paramètre-dépendant pour allouer une charge environnementale entre coproduits d'un système de production combinée indivisible tel que celui du traitement des eaux usées est présenté et justifié en fin de première section. La construction mathématique d'un facteur d'allocation permettant d'évaluer les impacts environnementaux des produits boue-sourcés est ensuite proposée dans la seconde section. L'utilisation couplée de ces paramètres procédés et produits permet de rendre compte des relations physiques causales du système, de retranscrire sa complexité et sa fonctionnalité au travers du facteur d'allocation.

Le troisième chapitre est dédié à la mise en application de la méthodologie développée aux fertilisants phosphatés boue-sourcés. Une Analyse du Cycle de Vie comparative est conduite pour évaluer les impacts environnementaux de plusieurs produits boue-sourcés en comparaison d'un produit minéro-sourcé. L'application du facteur d'allocation développé dans le chapitre précédent permet d'identifier la part de la charge environnementale amont liée à la production de la boue et ses conséquences sur l'impact environnemental des produits boue-sourcés. Cette ACV comparative a permis de valider l'usage de la méthode et de mettre en lumière les difficultés liées à l'évaluation environnementale des produits déchet-sourcés.

Au final, ce travail de thèse permet d'apporter deux éclairages distincts, relatés dans la partie conclusions et perspectives, au regard de la généralisation de l'applicabilité de la méthode proposée à d'autres procédés de séparation et de la problématique plus générique de l'évaluation des impacts environnementaux des produits déchet-sourcés. Plusieurs verrous scientifiques sont également identifiés et des pistes de résolution de ces verrous sont proposées.

Chapitre 1 – Vers un changement de paradigme dans la façon de considérer les déchets et conséquences pour l'évaluation des produits boue-sourcés en ACV

L'économie circulaire vise à sortir du processus linéaire « *extraire-consommer-jeter* » en cherchant à réduire et à recycler les déchets. Ceci est particulièrement le cas pour les déchets organiques. En effet, le renchérissement des coûts de l'énergie nécessaire à la fabrication des engrais azotés de synthèse, la raréfaction des ressources minières – notamment de phosphore – et la dégradation des taux de matière organique des sols renforcent l'intérêt du réemploi en agriculture de la fraction organique des déchets.

L'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) a ainsi estimé à 6,7 millions de tonnes la quantité de déchets organiques domestiques et industriels valorisés en France en 2011. La finalité de cette valorisation est principalement l'épandage sur les sols agricoles pour apporter de la matière organique et des nutriments. L'agriculture et la sylviculture sont, de leur côté, responsables de la production de 374 millions de tonnes d'effluents d'élevage (fumiers, lisiers) et de résidus de culture, le plus souvent épandus sur site. Le gisement de ces matières fertilisantes d'origine résiduaire (MAFOR), apparaît donc être en mesure de se substituer au-moins en partie aux engrais minéraux.

Le réemploi de ces MAFOR sous forme de fertilisants peut se faire sous forme brute ou après traitement afin de réduire les risques sanitaires liés à leur épandage. Toutefois, la gestion de la fertilisation des cultures par les MAFOR peut être compliquée du fait que ces dernières contiennent les trois éléments nutritifs (azote, phosphore et potassium) nécessaires aux besoins des plantes mais avec des teneurs fortement variables d'une MAFOR à l'autre. Ceci peut donc conduire à des déséquilibres dans la fertilisation et à des risques d'accumulation des autres éléments dans le sol et par conséquent engendrer une pollution des eaux. Aussi, de plus en plus de traitements de MAFOR sont orientés vers la production de produits ayant des caractéristiques proches de celles d'un engrais minéral.

Les boues d'épuration urbaines peuvent être citées comme un exemple de MAFOR pouvant subir des traitements visant à l'atteinte d'une qualité particulière pour la fertilisation des sols agricoles et ce contrairement aux autres types de déchets où la production est une issue fatale de la consommation des ménages (cas des déchets ménagers et assimilés) et de la production industrielle (cas des déchets des industries agroalimentaires). L'origine même de ces déchets entraîne une difficulté voire une impossibilité de maîtriser leur qualité au moment de leur production. La particularité de pouvoir agir intentionnellement sur la qualité de la boue en fait un candidat idéal pour passer du statut déchet au statut produit au moment même de sa production.

Toutefois, aussi séduisante que soit la possibilité de recourir aux boues pour fertiliser les sols agricoles, l'impact environnemental de leur utilisation doit être évalué. Pour cela, des méthodes d'évaluation environnementale comme la méthode d'Analyse du Cycle de Vie (ACV) peuvent être utilisées.

Après un rappel du contexte relatif à la production et aux modes de valorisation des boues d'épuration urbaines en France puis de la méthode ACV, ce chapitre met en évidence un changement de paradigme dans le statut de la boue d'épuration urbaine (du statut « déchet » au statut « produit »). Une analyse critique de la littérature existante sur les ACV appliquées aux boues d'épuration urbaine est menée avec l'objectif de mettre en lumière l'existence du changement de paradigme dans cette littérature. Les implications méthodologiques dans la

conduite des ACV dans ce domaine et l'émergence du questionnement de recherche sont abordées dans la dernière partie du chapitre.

1. Production, valorisation et statut des boues d'épuration urbaines en France

Les boues d'épuration urbaines sont issues du traitement des eaux usées. Leur production, leur traitement, leurs principales voies de valorisation et les statuts réglementaires appliqués aux boues d'épuration sont présentées ci-après.

1.1. Origine et traitement des boues issues des stations d'épuration urbaines

Les eaux résiduaires urbaines résultent du mélange d'eaux résiduaires d'origine :

- domestique (eaux noires provenant des toilettes et eaux grises provenant d'opérations de lavage),
- artisanale et commerciale (effluents liquides produits par ces activités),
- collective (effluents des hôpitaux, établissements scolaires et universitaires, etc.).

En cas de présence d'un réseau unitaire, s'ajoutent les eaux provenant du ruissellement des eaux de pluie sur les surfaces imperméabilisées et celles résultant du lavage de la voirie. Ces eaux sont ensuite dirigées vers les stations de traitement des eaux usées (STEU) pour être dépolluées.

1.1.1. Le traitement des eaux usées à l'origine de la production de boues d'épuration urbaines

A l'entrée des STEU, les eaux usées passent en premier lieu par une étape de prétraitement (dégrillage, dessablage, déshuilage) qui vise à éliminer les déchets grossiers, les sables et les graisses.

Les eaux usées prétraitées sont ensuite envoyées dans une phase de traitement, qui vise principalement à abattre la charge organique (pollution dite carbonée) mais au cours de laquelle il est également possible de traiter la pollution azotée et phosphatée en additionnant des procédés de traitement supplémentaires aux procédés de traitement biologique.

Traitement de la pollution carbonée

Les eaux usées sont essentiellement composées de matières organiques. La dégradation de ces matières s'effectue par des bactéries qui consomment de l'oxygène. La pollution carbonée peut donc être mesurée par la quantité d'oxygène consommée. Les indicateurs de pollution des eaux usées s'expriment par la demande biochimique en oxygène sur 5 jours (DBO₅) et par la demande chimique en oxygène (DCO).

La DCO des eaux usées domestiques peut être classée en DCO particulaire (granulométrie > à 100 µm), colloïdale (granulométrie de 0,1 à 100 µm) ou dissoute (granulométrie < à 0,1 µm).

Les traitements successifs mis en œuvre sur la station d'épuration visent à piéger et traiter les différentes formes de DCO des eaux usées.

Ainsi, un premier traitement par décantation physique permet de piéger la DCO particulaire et une fraction de la DCO colloïdale, pour former les boues dites « primaires ». La fraction de DCO colloïdale restante et l'intégralité de la DCO dissoute sont consommées par des micro-organismes aérobies qui se développent dans des réacteurs biologiques. Les boues résultantes, en excès, forment des boues dites « secondaires ».

Les procédés de traitement biologique les plus utilisés sont ceux mettant en œuvre des boues activées et des biofiltres. Dans le premier cas, les bactéries se développent librement dans le bassin. Dans le second cas, les bactéries sont fixées sur un matériau (les biofiltres) à travers lequel l'eau percole.

Traitement de la pollution azotée et phosphatée

Le traitement de la pollution azotée en condition aérobie est conjoint au traitement de la pollution organique carbonée, par les mêmes micro-organismes hétérotrophes en condition d'anoxie ou des micro-organismes autotrophes. De même, le traitement de la pollution phosphatée met en œuvre des micro-organismes qui concentrent le phosphore au niveau intracellulaire sous forme de polyphosphates avant d'être évacués avec les boues secondaires. La décantation des micro-organismes hétérotrophes et accumulateurs de phosphore ayant traités la pollution azotée et phosphorée n'entraîne toutefois que très peu de boues supplémentaires comparées aux boues produites à l'issue du traitement de la pollution carbonée.

La déphosphatation biologique des eaux usées ne permettant pas toujours d'éliminer l'intégralité du phosphore dans le cas d'eau fortement chargée en phosphore, un traitement physico-chimique peut être envisagé par adjonction d'un réactif chimique (chlorure ferrique par exemple). La précipitation des composés phosphatés générés par la réaction chimique donne lieu à la production de boues dites « tertiaires ».

La Figure 1 synthétise l'ensemble de ces étapes. En fonction de la phase de traitement des eaux usées, plusieurs types de boues peuvent être ainsi produits :

- Les boues primaires provenant d'une élimination des matières en suspension (MES) des eaux brutes par décantation gravitaire lors du traitement primaire,
- Les boues secondaires ou biologiques issues de la décantation des eaux usées après une épuration biologique en bassin d'aération,
- Les boues tertiaires provenant d'un traitement physico-chimique des effluents permettant d'améliorer les rendements de l'élimination des matières en suspension (MES), du phosphore (P) et de l'azote (N).

Les boues mixtes sont constituées d'un mélange de boues primaires et de boues secondaires.

La quantité totale annuelle de boues issues des stations d'épuration urbaines produites en France s'élève ainsi à environ 1,24 Mt de matière sèche en 2015 (MEDDE, 2017).

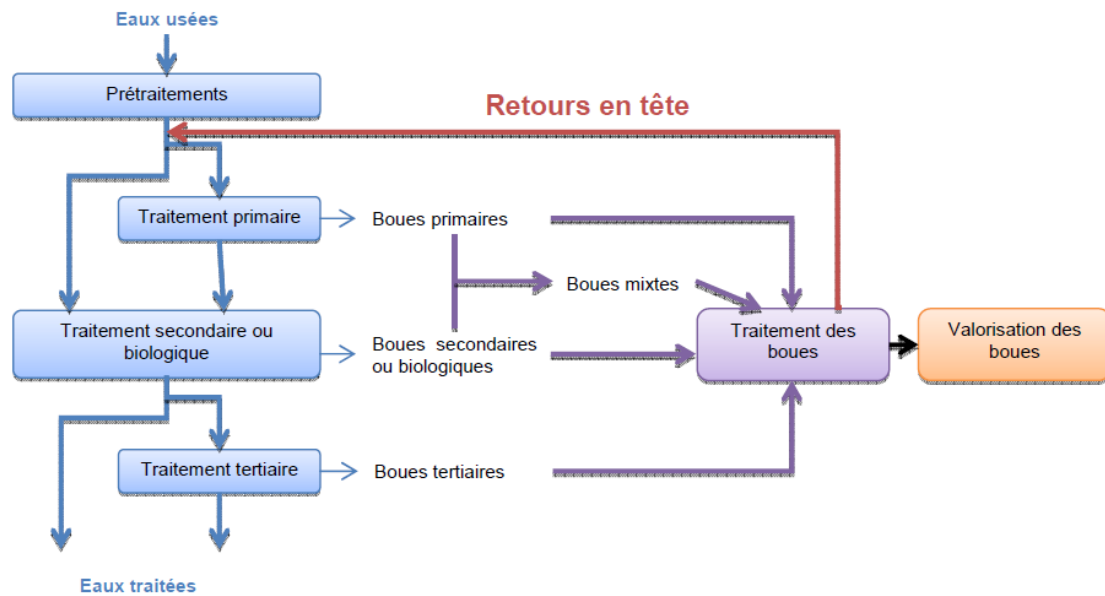


Figure 1 : Représentation schématique des différentes natures de boues produites dans une station de traitement des eaux usées

1.1.2. Le traitement, étape préalable à la valorisation des boues d'épuration urbaines

Une fois soutirées de la filière de traitement des eaux usées, les boues vont suivre plusieurs types de traitement selon la voie de valorisation qui sera privilégiée. Ces traitements successifs ont pour objectifs principaux de réduire la quantité d'eau contenue dans les boues, de stabiliser la matière organique contenue dans celles-ci afin de réduire les nuisances olfactives et de les hygiéniser pour les rendre aptes à une valorisation agricole notamment. Les traitements appliqués peuvent être catégorisés en cinq familles de procédés (Degrémont, 2005) :

- Le conditionnement,
- Les procédés d'épaississement,
- Les procédés de déshydratation,
- Les procédés de stabilisation et d'hygiénisation,
- Les procédés de séchage.

Le conditionnement

Il permet d'améliorer l'efficacité de l'épaississement et de la déshydratation par ajout de réactifs minéraux (FeCl_3 , chaux, etc.) ou organiques (polymères, etc.).

Les procédés d'épaississement

Ils visent à concentrer la matière sèche présente dans les boues en sortie de filière de traitement des eaux usées. La siccité des boues passe ainsi de 1 à 5% environ. Les principaux procédés

d'épaississement sont l'épaississement gravitaire, par flottation, par égouttage et par centrifugation.

Les procédés de déshydratation

Ils visent à augmenter la teneur en matière sèche des boues. Selon les procédés utilisés (filtre presse, filtre à bande, centrifugation), la siccité peut atteindre 35%.

Les procédés de stabilisation et d'hygiénisation

Ils visent à réduire le volume des boues, ainsi qu'à les stabiliser pour réduire la fermentescibilité en stoppant le développement des bactéries et les hygiéniser pour réduire les pathogènes présents dans la boue. Parmi les principaux procédés de stabilisation et d'hygiénisation figurent le chaulage, la digestion anaérobie et le compostage.

Les procédés de séchage

Ils visent à réduire drastiquement la teneur en eau des boues. Les principaux procédés sont le séchage solaire (en serre ouverte ou fermée) et le séchage thermique des boues permettant d'atteindre jusqu'à 98% de siccité.

Les procédés de traitement des boues ne sont pas toujours les mêmes selon les types de filières de traitement des eaux usées considérées et il existe une très grande variété d'association de procédés de traitement puisque environ 3 153 filières de traitement des boues différentes ont été recensées dans une étude récente (Richard and Pradel, 2014).

1.2. La valorisation des boues d'épuration urbaines : du simple déchet au produit à valeur ajoutée

1.2.1. L'épandage, voie de valorisation actuelle privilégiée pour les boues d'épuration urbaines

Riches en éléments azotés et phosphorés, les boues présentent un réel intérêt à être valorisées agronomiquement par épandage sur les sols agricoles. En France, 86% de la production annuelle de boues en 2015 ont été envoyées dans cette filière de valorisation sous forme d'épandage direct (31% soit environ 0,38 Mt MS) ou après compostage (55% soit 0,68 Mt MS) (MEDDE, 2017). Elles peuvent être épandues sous toutes les formes existantes (liquides, pâteuses, compostées, chaulées, solides ou sèches) selon le type de traitement subi. Le reste des boues produites en France sont soit incinérées (11%), soit mises en décharge² ou valorisées industriellement (3%).

² Malgré l'interdiction de l'enfouissement des boues depuis 2002, certaines boues impropres à l'épandage et à l'incinération sont envoyées en décharge après obtention d'une dérogation.

Bien qu'ayant de nombreux avantages, leurs teneurs en éléments traces minéraux (ETM) peuvent cependant présenter des risques sanitaires aussi bien pour les humains que pour les milieux naturels. C'est pourquoi une réglementation spécifique à l'épandage des boues de STEU a été mise en place avec l'arrêté du 8 janvier 1998 fixant notamment les valeurs limites de concentration à ne pas dépasser en ETM et en composés traces organiques dans les sols et dans les boues.

1.2.2. De nouvelles voies de valorisation innovantes pour les boues d'épuration urbaines offrant des perspectives de production de produits à valeur ajoutée

Bien que présentant un fort potentiel agronomique, le risque sanitaire associé à leur épandage et la possibilité d'exploiter de manière plus poussée les nutriments et le potentiel énergétique des boues ont conduit les chercheurs à déterminer de nouvelles voies de valorisation. Ces travaux de recherche s'intéressent notamment à la production de produits à forte valeur ajoutée au moyen de procédés innovants décrits succinctement ci-dessous (cf. Figure 2).

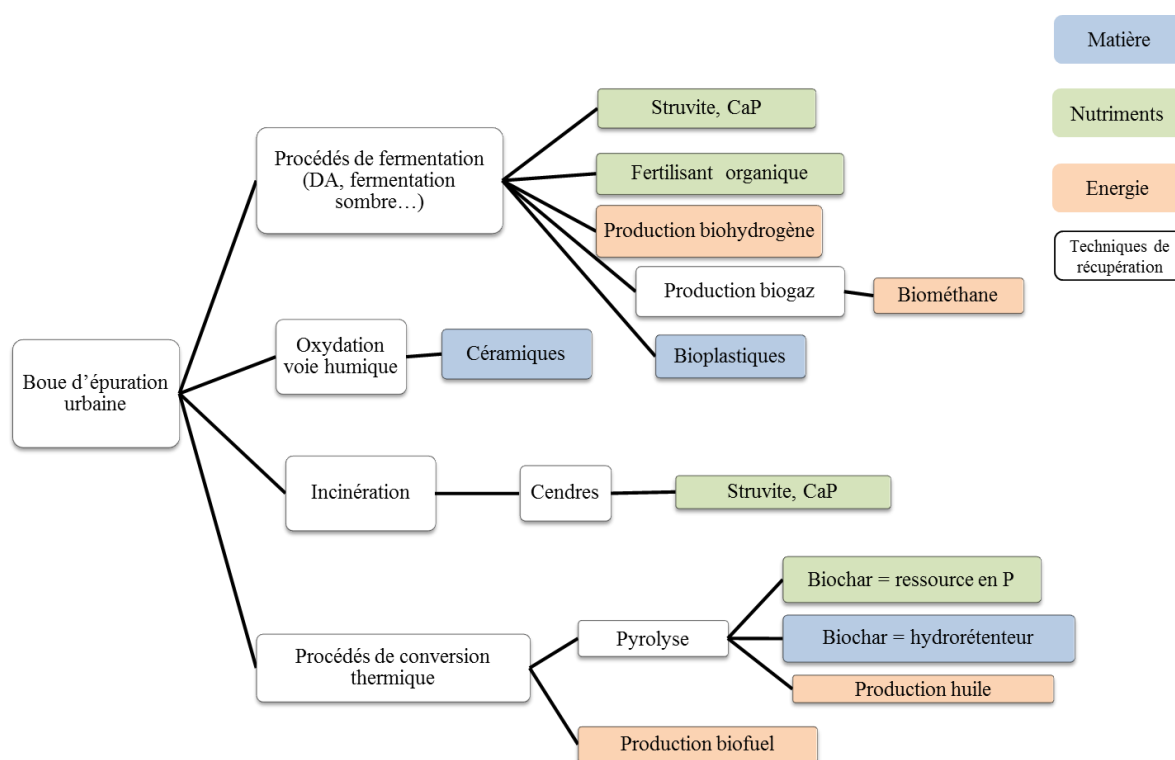


Figure 2. Schéma synthétique des différentes voies de production de produits à valeur ajoutée à partir de boues d'épuration urbaines

Production de biohydrogène

Le biohydrogène peut être produit à partir de boues d'épuration par voie fermentaire en absence de lumière. Ce mode de production permet d'envisager des productions intensives d'hydrogène. Les procédés de fermentation ayant été largement éprouvés dans le monde industriel

(agroalimentaire, santé), il s'agit de procédés biologiques ayant le plus de retour d'expériences et par conséquent les avancées technologiques les plus abouties (RECORD, 2015).

Production de différents produits à partir de la pyrolyse

La pyrolyse (ou thermolyse) des boues d'épuration est une dissociation thermique de la matière organique et de la matière minérale, en l'absence d'oxygène (moins de 2 %), sous l'action de la chaleur (400 à 800°C). Selon les conditions de la réaction, la fraction organique se décompose en gaz, huiles et résidus solides carbonés (Gay, 2002). Le gaz de synthèse est généralement constitué d'un mélange de méthane, d'hydrogène, de dioxyde et monoxyde de carbone et d'eau. Il est le plus souvent valorisé dans une chaudière pour le séchage des boues ou directement dans le réacteur de thermolyse pour fournir l'énergie nécessaire à la dissociation thermique de la conversion. L'huile est produite par condensation d'une fraction des gaz de synthèse. Le liquide ainsi obtenu est raffiné par extraction et catalyse avant une valorisation énergétique (Fonts et al, 2012). Enfin le résidu solide carboné, appelé biochar, est un matériau relativement proche d'un charbon pauvre qui contient de 10 à 40 % de carbone. Il peut être utilisé comme matériau secondaire pour les cimenteries, comme hydrorétenteur (charbon actif) ou comme amendement organique et non comme un fertilisant du fait de sa faible teneur en phosphore (8%) et azote (5%).

Production d'électricité

La matière organique des boues peut également être utilisée comme substrat organique pour produire de l'électricité grâce à des piles à combustion microbiennes (PACMs). Les PACMs peuvent être définies comme des dispositifs électrochimiques qui utilisent l'action catalytique des bactéries organisées en biofilms pour réaliser l'oxydation de composés organiques ou inorganiques en produisant du courant (Ketep, 2012). Angenent et al. (2004) ont montré que les principales limites de l'usage des PACMs dans le traitement des eaux usées étaient leur faible puissance et que la technologie n'en était encore qu'au stade de prototype en laboratoire.

Production de biométhane

Le biogaz issu de la méthanisation (biodégradation en condition anaérobie) des boues est généralement valorisé sur le site, soit par combustion directe (chaudière), soit sous la forme de biométhane après épuration, soit par cogénération (production de chaleur et électricité).

Production de céramiques

Le traitement des boues par oxydation par voie humide consiste à chauffer les boues d'épuration à 250°C sous une pression de 54 bars en présence d'oxygène pur, pendant une heure. Cette technologie permet d'obtenir un mélange de gaz, de liquide, et surtout de résidu solide minéral, non toxique et inodore, composé d'argiles, de calcaires et de phosphates. Ce résidu peut être valorisé dans deux filières principales : la fabrication de céramique et la construction

d'ouvrages routiers. Il peut constituer jusqu'à 7% de la composition des céramiques et 35% des matières premières utilisées pour la construction d'ouvrages routiers.

Production de bioplastiques

Les polyhydroxyalcanoates (PHA) sont des polymères biodégradables pouvant être synthétisés à partir de la biomasse microbienne. Les bactéries utilisées métabolisent des acides gras à partir des boues d'épuration pour stocker du PHA dans leurs tissus. L'utilisation de solvants alcoolisés permet d'extraire ensuite ces bioplastiques, représentant 50 à 60% de la composition des bactéries qui l'ont produit (projet VALORIA, 2012).

Production de struvite et phosphate de calcium

La récupération de l'azote et du phosphore des boues est au cœur de nombreux projets de recherche. La récupération du phosphore (et parfois de l'azote) peut être réalisée à différentes étapes du traitement des eaux usées. Les techniques de précipitation du phosphore varient selon la nature du substrat (boues, cendres). Les techniques les plus prometteuses en termes d'efficacité de récupération sont les techniques mises en œuvre en amont et en aval de la digestion anaérobie ou en utilisant les cendres d'incinération des boues (Egle et al, 2015).

Les différents procédés innovants et voies de valorisation présentés ci-dessus questionnent alors le statut accordé aux boues d'épuration urbaines : le statut « déchet » ou le statut « produit ».

1.3. Statut réglementaire des boues d'épuration urbaines

D'un point de vue réglementaire, le statut d'une matière dépend essentiellement de « l'intentionnalité » de sa production, c'est à dire si elle a été produite délibérément ou non lors du processus de production (cf. Figure 3). Si elle a été produite délibérément, elle acquiert le statut de produit, sinon elle acquiert le statut de déchet ou celui de sous-produit. Cette qualification permet de définir le cadre législatif de référence qui sera appliqué à ces matières, les règles relatives à la protection de l'environnement pouvant être plus ou moins contraignantes selon la qualification retenue.

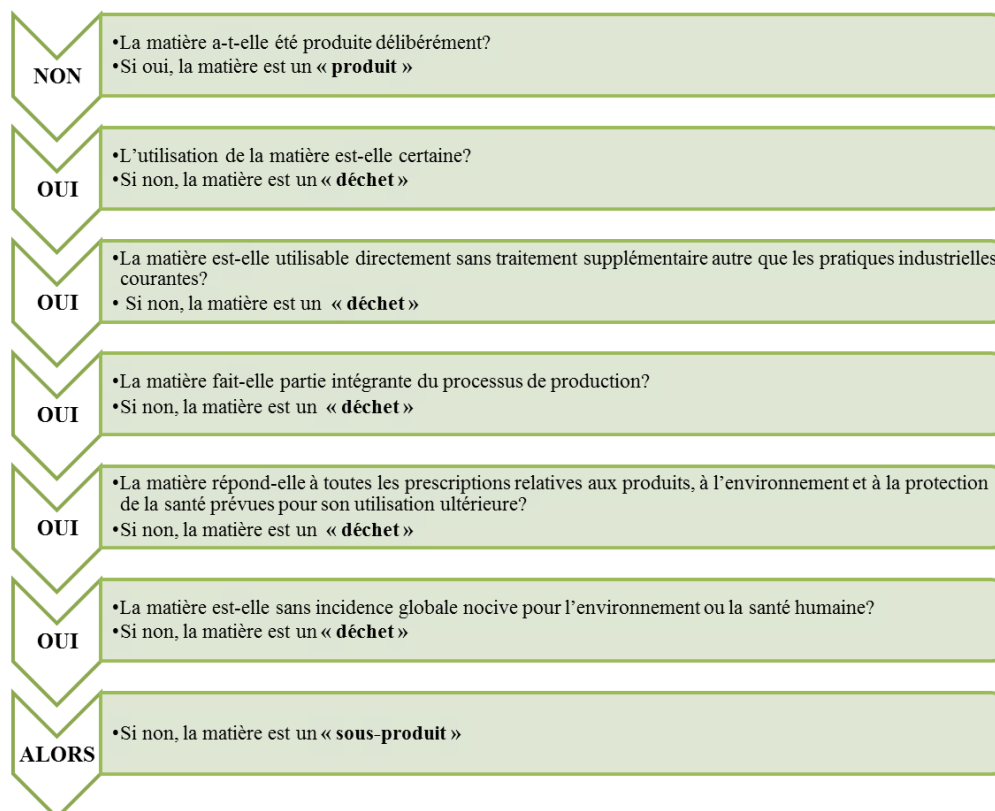


Figure 3. Arbre de décision pour la distinction produit / déchet / sous-produit dans le contexte des processus de production (Houot et al, 2014)

1.3.1. Les boues sous statut déchet

La qualification de déchet est longtemps apparue comme « un concept juridique indéterminé » (Van Lang, 2011). Autrefois défini par la loi du 15 juillet 1975 relative à l'élimination des déchets et la récupération des matériaux, le déchet correspondait à un bien meuble abandonné volontairement ou non. La jurisprudence européenne et nationale interprétait assez largement la notion de déchet, en minimisant en particulier le critère de l'abandon afin de limiter les inconvénients inhérents à la nature des déchets. La clarification en matière de déchet est venue de la transposition en droit interne de la directive n°2008/98/CE du parlement européen et du Conseil du 19 novembre 2008 relative aux déchets. Le déchet est dorénavant défini à l'article L. 541-1- 1 du Code de l'environnement comme « *toute substance ou tout objet, ou plus généralement tout bien meuble, dont le détenteur se défait ou dont il a l'intention ou l'obligation de se défaire* ».

Parmi les déchets issus des collectivités et des industries agroalimentaires, les boues d'épuration urbaines présentent des particularités juridiques. Longtemps, la nature juridique des boues a donné lieu à des débats entre les partisans de la qualification de produit et ceux préférant la qualification de déchet; les premiers privilégiant leur valeur fertilisante, les autres leur risque polluant (Etrillard, 2014). Les boues sont aujourd'hui définies à l'article R. 211-26 du Code de l'environnement comme « *des sédiments résiduels des installations de traitement ou de prétraitement biologique, physique ou physicochimique des eaux usées* ». L'article R. 211-27

du même code prévoit expressément qu'elles ont « le caractère de déchets ». Il s'agit donc d'une qualification légale.

L'utilisation agricole des boues d'épuration, bien qu'encadrée par de nombreux textes au niveau français et européen, ne leur fait pas perdre leur qualité de déchet.

1.3.2. Les boues sous statut produit

Certains déchets peuvent, après transformation, acquérir le statut de produit homologué ou normalisé (boues homologuées, composts de boues normalisés...) prévu aux 1° et 2° de l'article L. 255-2 du Code rural. Ainsi, les boues d'épuration urbaines peuvent accéder au statut de produit si elles répondent aux conditions d'une homologation ou d'une autorisation provisoire de vente, ou bien aux conditions d'une norme.

Pour accéder au statut de produit homologué ou autorisé, une boue d'épuration urbaine doit faire l'objet « d'une homologation ou, à défaut, d'une autorisation provisoire de vente, d'une autorisation de distribution pour expérimentation ou d'une autorisation d'importation » (cf. Figure 4). Ainsi, la personne désirant mettre un produit à base de boues d'épuration sur le marché doit déposer une demande d'homologation.

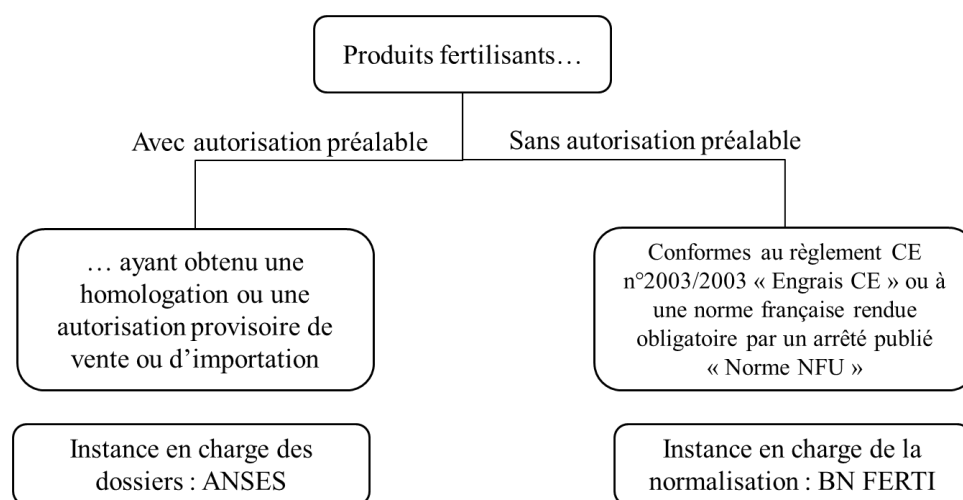


Figure 4. Statut réglementaire des produits fertilisants (Houot et al., 2014)

Pour accéder au statut de produit normalisé, une boue d'épuration urbaine doit répondre aux conditions posées par une norme nationale ou européenne. Pour les matières fertilisantes répondant à des caractéristiques générales connues, le législateur estime en effet qu'aucune évaluation ou décision préalable à leur mise sur le marché n'est nécessaire. Ainsi, les boues d'épuration à l'origine de produits répondant à des normes NFU ou d'« engrais CE » peuvent être mises sur le marché avec un statut de produit. Il appartient au responsable de la mise sur le marché de ces produits de s'assurer que celui-ci répond bien aux conditions de la norme qu'il revendique ou bien d'apporter les informations et analyses justifiant de la dénomination « engrais CE ».

1.3.3. Vers une sortie du statut de déchet pour la boue d'épuration urbaine

Certaines matières, initialement considérées comme des déchets, sont donc susceptibles de connaître une seconde vie (Enckell, 2013). Elles peuvent « *cesser d'être déchet* » après avoir subi, dans une installation classée ou une installation soumise à la loi sur l'eau, « *une opération de valorisation, notamment de recyclage ou de préparation en vue de la réutilisation* ». Cette possibilité de sortie du statut de déchet est énoncée à l'article L. 541-4- 3 du Code de l'environnement. Elle doit notamment permettre de limiter l'utilisation de ressources vierges et de faciliter les échanges commerciaux. La sortie du statut de déchet doit répondre à plusieurs critères:

- la substance doit être couramment utilisée à des fins spécifiques ;
- il doit exister une demande pour celle-ci ;
- elle doit remplir des exigences techniques et respecter la législation et les normes applicables aux produits ;
- enfin son utilisation ne doit pas avoir d'effets globaux nocifs pour l'environnement ou la santé humaine.

Une fois sorti du statut de déchet, ce n'est plus la réglementation relative aux déchets qui s'applique mais celle sur les produits.

La sortie du statut de déchet fait actuellement l'objet de réflexions au niveau européen au travers de la Directive *End-of-Waste*. Plusieurs règlements européens ont été récemment adoptés pour permettre la sortie de statut de déchet de filières comme les débris métalliques, le calcin de verre ou les débris de cuivre. Un autre règlement européen est en préparation s'agissant de la sortie de statut de déchet des composts et digestats de méthanisation.

Missionné pour définir la nature des intrants dans les procédés de compostage et de méthanisation, le *Joint Research Center* (JRC) a proposé de limiter ceux-ci aux seuls biodéchets collectés séparément et a recommandé l'établissement d'un champ d'application excluant les composts de boues. Toutefois, les boues ont été réintégrées dans la troisième version du document de travail après discussion ; la Communauté Européenne laissant la possibilité aux Etats membres de définir eux-mêmes des sorties nationales du statut de déchet de ces matières (Saveyn and Eder, 2014).

Par ailleurs, la révision des réglementations en cours à l'échelle européenne prévoit d'intégrer les produits du recyclage comme la struvite ou les biochars dans les produits autorisés en fertilisation. Cependant, l'acceptation des produits issus des boues d'épuration urbaines n'ayant pas subi une étape préalable d'incinération est encore en discussion. Ces produits pourront toutefois faire l'objet d'autorisation nationale de mise sur le marché.

En résumé, deux statuts réglementaires peuvent donc être appliqués aux boues d'épuration urbaines :

1 – Elles ont réglementairement le statut « déchet » qu'elles soient traitées ou non. Cela ne modifie en rien le fait qu'elles puissent être valorisées soit sous forme de « matière » par retour au sol (épandage) ou comme matière secondaire (en substitution d'argile pour la fabrication du

ciment par exemple), soit sous forme d'« énergie » (récupération de chaleur, génération d'électricité). Ce statut est acquis dès la génération de la boue (c'est-à-dire en sortie de traitement primaire, secondaire voire tertiaire des eaux usées).

2 – Elles ont réglementairement le statut de « produit » si elles rentrent pour tout ou partie dans la composition de compost (ou de digestats de méthanisation produit à partir des boues) faisant l'objet d'une homologation ou d'une normalisation (NF U 44-095), ou d'une autorisation provisoire de vente ou d'importation (AFNOR, 2002).

Au final, la mise en place de traitements poussés visant à produire des produits à valeur ajoutée questionne le statut des boues d'épuration urbaines, les faisant passer d'un statut de déchet fatal dont le détenteur doit se défaire au statut de produit. Ces nouveaux produits « issus de ressources renouvelables » visent à remplacer des produits manufacturés issus de ressources non renouvelables et sont ainsi considérés comme plus pertinents d'un point de vue environnemental, mais est-ce réellement le cas ?

Evaluer les impacts environnementaux de ces nouveaux produits issus de boues d'épuration et identifier leur plus-value environnementale par rapport aux produits issus de ressources non renouvelables peut être réalisé au moyen de la méthodologie d'Analyse du Cycle de Vie.

2. L'Analyse du Cycle de Vie, un outil pour évaluer les performances environnementales d'un système

L'évaluation des performances environnementales des nouveaux produits issus de boues d'épuration urbaines par la méthodologie d'Analyse du Cycle de Vie posent un certain nombre de questionnements méthodologiques. Ces questionnements seront traités en fin de partie après une présentation préalable des principes et du cadre méthodologique de l'ACV.

2.1. Principes de l'Analyse du Cycle de Vie

L'Analyse du Cycle de Vie (ACV) est une méthodologie d'évaluation des impacts environnementaux d'un système. Elle est basée sur un bilan comptable (input/output) des flux physiques du système étudié, traduits ensuite en impacts environnementaux potentiels.

L'ACV repose sur deux principes fondamentaux. D'une part, son approche « multicritère » permet l'évaluation simultanée de plusieurs impacts environnementaux potentiels. Il est ainsi possible d'identifier les contributions du système sur l'ensemble des compartiments environnementaux (eau, sol, air) et des aires de protection (écosystèmes, santé humaine et épuisement des ressources naturelles). D'autre part, la pensée « cycle de vie » permet la prise en compte de l'ensemble des étapes du cycle de vie des procédés utilisés par le système étudié (cf. Figure 5). Le cycle de vie comprend les étapes d'extraction des matières premières, de fabrication, d'usage et de fin de vie. Dans le cas où la fin de vie intégrerait une étape de recyclage des matières premières, ces dernières pourraient être réutilisées, refermant ainsi la boucle du cycle de vie.

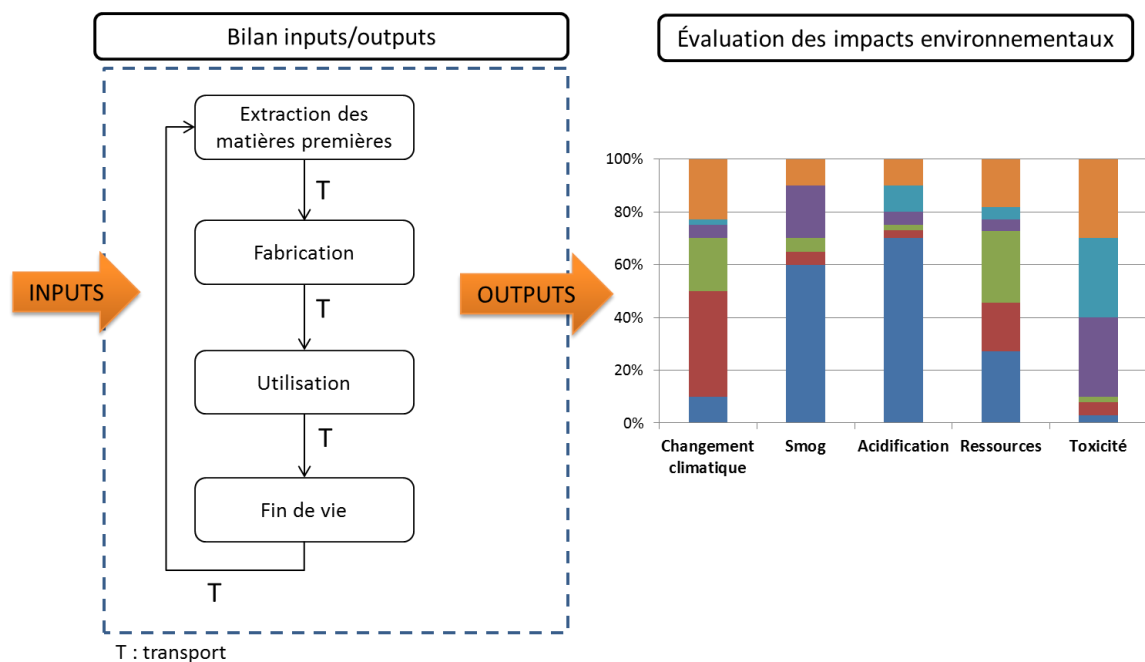


Figure 5: Principes de l'Analyse du Cycle de Vie

2.2. Cadre méthodologique de l'Analyse du Cycle de Vie

L'ACV est définie par les normes ISO 14040 et 14044 et l'ILCD Handbook, guidant le praticien ACV à travers les différents aspects méthodologiques de l'ACV (ILCD Handbook, 2010; ISO 14040, 2006; ISO 14044, 2006).

L'ACV est une procédure itérative constituée de quatre étapes à savoir : la définition des objectifs et du champ de l'étude, l'analyse de l'inventaire du cycle de vie, l'évaluation des impacts environnementaux et l'interprétation.

2.2.1. Définition de l'objectif et du champ de l'étude

Cette première étape est fondamentale car elle conditionne l'ensemble des étapes à suivre de l'ACV.

La définition de l'objectif à atteindre doit permettre de définir et identifier les applications envisagées, les limites de la méthode et les hypothèses utilisées, les raisons qui ont poussés à conduire l'ACV et les destinataires de l'étude. La définition des objectifs doit également préciser si une analyse comparative est réalisée, notamment si les résultats sont diffusés au grand public.

La définition du champ de l'étude permettra quant à elle de définir précisément l'objet de l'ACV. Ainsi, au cours de cette étape sont définis le système étudié et sa (ou ses) fonction(s), l'unité fonctionnelle et le périmètre. La modélisation de l'inventaire du cycle de vie (ICV), la vérification de la qualité des données utilisées au cours de l'ICV et la méthode utilisée pour résoudre la multifonctionnalité du système sont également abordées. Enfin, une revue critique peut être réalisée par un organisme tiers, notamment dans le cadre de la diffusion publique des résultats d'ACV comparatives. La revue critique visera notamment à valider les choix méthodologiques, les données utilisées et l'interprétation des résultats obtenus.

Définition des objectifs

Une ACV peut ainsi être réalisée afin d'identifier les indicateurs de performances environnementales d'un groupe de produits en vue de leur écoconception ou les points faibles dans la conception environnementale d'un produit, de comparer des produits ou des filières dans le but de développer la filière ou le produit le moins impactant. L'ACV est également utilisée pour la vérification environnementale des technologies, l'étiquetage environnementale de type I des produits écolabellisés ou de type III sur les déclarations environnementales, mais également dans les politiques publiques « vertes ».

Définition du champ de l'étude

Le périmètre du système étudié est défini de manière à prendre en compte tous les procédés nécessaires afin de pouvoir remplir la fonction du système quel que soit le scénario étudié. Ainsi, les frontières du système définissent quelles parts du cycle de vie et quels procédés appartiennent au système analysé afin de remplir sa fonction. L'ACV ne portant que sur

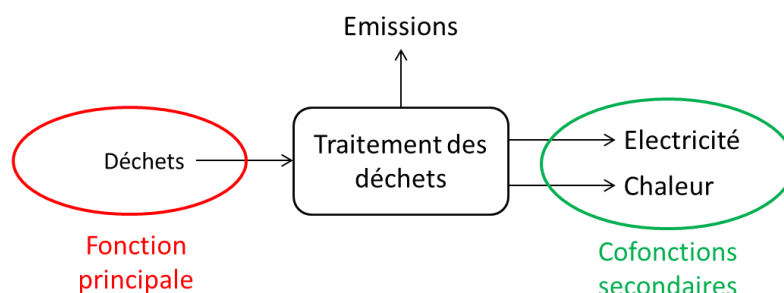
l'évaluation des activités anthropiques, les frontières du système définissent également les frontières entre la technosphère et l'écosphère au sein de laquelle les activités humaines puisent les ressources et rejettent des émissions.

Un système en ACV est également défini par des activités de premier-plan et des activités d'arrière-plan. Les premières concernent l'ensemble des procédés directement affectés par les décisions analysées dans l'étude alors que les secondes concernent l'ensemble des activités utilisées par les activités de premier plan et qui ne sont pas affectées directement par ces décisions.

La définition de la fonction attribuée au système et son unité fonctionnelle sont les éléments centraux de l'ACV. En ACV, tout système peut être spécifié par une ou plusieurs fonctions (réparties généralement en une fonction principale et une ou plusieurs fonctions secondaires). Ces fonctions sont qualifiées qualitativement et quantitativement par une unité fonctionnelle (UF). L'unité fonctionnelle est mise en œuvre au moyen du flux de référence, c'est-à-dire l'ensemble des flux d'inventaire entrants et sortants du système permettant de remplir la fonction décrite par l'unité fonctionnelle. Ainsi, différents scénarios pourront être comparés sur la base d'une même unité fonctionnelle mais avec des flux de référence différents.

Lorsque le système remplit plusieurs fonctions, on parle de système multifonctionnel. Le caractère multifonctionnel du système dépendra essentiellement de l'objet de l'étude. En effet, un procédé multifonctionnel peut par définition avoir plus qu'un jeu de cofonctions et le choix du jeu de cofonctions sera réalisé en fonction de la pertinence de l'étude. A titre d'exemple, l'incinération de déchets peut générer de l'électricité et de la chaleur comme coproduits. Si l'étude a pour objectif de comparer différents traitements de déchets, la fonction pertinente (considérée en conséquence comme fonction principale) sera le traitement d'une certaine quantité de déchets en entrée de filière de traitement et la production de chaleur et d'électricité devront être traitées comme des cofonctions. Si l'objectif est de réaliser l'inventaire de l'électricité ou de la chaleur produite par incinération des déchets, les deux fonctions sont des cofonctions pertinentes et l'inventaire devra être alloué entre ces deux cofonctions (cf. Figure 6).

a) Objectif : comparer l'impact environnemental du traitement des déchets



b) Objectif : comparer l'impact environnemental de la production d'énergie à partir de déchets

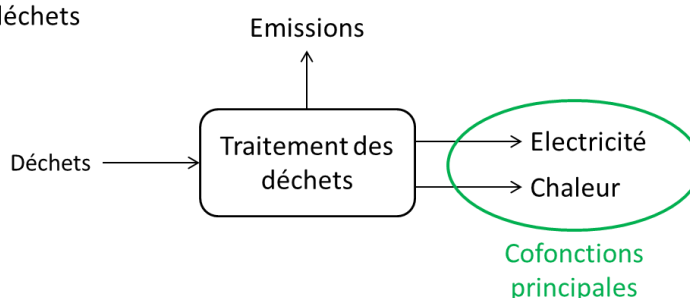


Figure 6 : Différents types de multifonctionnalité induite selon l'objectif de l'étude

Il existe plusieurs solutions pour gérer les problèmes de multifonctionnalité en ACV. La solution la plus appropriée dépend entre autre de l'objet d'étude, de la disponibilité des données et des caractéristiques du procédé multifonctionnel.

Traitement de la multifonctionnalité par subdivision des procédés multifonctionnels

Cette approche consiste à subdiviser les procédés unitaires d'un système multifonctionnel représenté sous la forme d'une « boîte noire » en procédés unitaires opérationnels simples et monofonctionnels. Cette approche nécessite notamment que les flux d'inventaire intervenant dans chaque procédé unitaire puissent être identifiés et quantifiés de manière précise.

Traitement de la multifonctionnalité par expansion du système (ou substitution)

Cette approche consiste à ajouter les impacts d'une fonction ou soustraire les impacts de la fonction non désirée au système. On parle alors respectivement de substitution par addition ou par soustraction selon le focus fait par l'unité fonctionnelle.

La substitution par addition consiste à étendre les frontières d'un système en lui ajoutant des fonctions supplémentaires afin que les deux systèmes comparés assurent au global les mêmes fonctions. La substitution par soustraction consiste à réduire le nombre de fonctions assurées par un système. Les scénarios sont dans ce cas-là comparés sur la/les fonctions principales, et les cofonctions non requises seront soustraites.

Traitement de la multifonctionnalité par répartition

Cette approche consiste à répartir les flux d'inventaires entrants et les sortants entre les cofonctions selon des critères de répartition, autrement appelés facteurs d'allocation, basés sur une propriété des cofonctions (i.e. contenu en éléments, contenu énergétique, masse, prix...). La norme ISO 14044, reprise par l'ILCD Handbook, propose une hiérarchie pour traiter la multifonctionnalité d'un système :

« L'étude doit identifier les processus partagés avec d'autres systèmes de produits et les traiter selon la procédure par étapes présentée ci-après :

Étape 1: Il convient que l'affectation³ soit évitée autant que possible en :

1. divisant le processus élémentaire à affecter en deux sous-processus ou plus et en recueillant les données d'intrant et d'extrant rattachées à ces sous-processus,

2. étendant le système de produits pour y inclure les fonctions supplémentaires des coproduits, en tenant compte des exigences liées aux frontières du système,

Étape 2: Lorsque l'affectation est inévitable, il convient que les intrants et les extrants du système soient répartis entre ses différents produits ou fonctions d'une manière qui reflète les relations physiques sous-jacentes existantes entre eux; c'est-à-dire qu'il convient que ces relations physiques illustrent la manière dont les intrants et les extrants évoluent avec les modifications quantitatives des produits ou des fonctions que le système fournit.

Étape 3: Lorsqu'une relation physique seule ne peut pas être établie ou utilisée comme base de l'affectation, il convient que les intrants soient affectés entre les produits et les fonctions d'une manière qui reflète d'autres relations mutuelles. Par exemple, des données d'intrant et d'extrant pourraient être affectées entre coproduits proportionnellement à la valeur économique des produits. »

L'ISO 14044 précise également que certains flux sortants peuvent être considérés soit comme des coproduits soit comme des déchets. Dans de tels cas, la norme précise qu'« il est nécessaire d'identifier le rapport entre coproduits et déchets étant donné que les intrants et les extrants doivent être affectés uniquement aux coproduits ». Par ailleurs, l'étape d'Inventaire du Cycle de Vie s'appuyant sur les bilans matières entre flux entrants et sortants, il convient de faire en sorte que les règles d'allocation s'approchent autant que possible des relations et des caractéristiques fondamentales qui existent entre ces flux.

³ Le mot « allocation » en anglais se traduit par « affectation » en français. Toutefois, le terme « allocation » est généralement utilisé dans le langage courant et par les praticiens ACV pour parler d'affectation.

2.2.2. Analyse de l'inventaire du cycle de vie

Chaque étape du cycle de vie consomme de l'énergie et des ressources non renouvelables et génère des émissions vers l'air, l'eau et le sol à un niveau local, régional ou global. L'étape d'inventaire de cycle de vie consiste en la réalisation d'une collecte de données permettant de réaliser le bilan de l'ensemble des flux du système étudié.

Le recueil des données est un processus itératif. Au fur et à mesure de l'inventaire, des données peuvent ne pas être disponibles, nécessitant de mettre en place des hypothèses de calcul ou de redéfinir les frontières du système si l'inventaire devient incohérent avec l'objectif et le périmètre affiché du système.

Un diagramme de flux ou arbre des procédés est construit, d'une part, de manière qualitative à partir de la détermination des frontières de l'étude et, d'autre part, de manière quantitative avec les données d'inventaire. Ces données d'inventaire sont ensuite rapportées à l'unité fonctionnelle établie précédemment (cf. Figure 7).

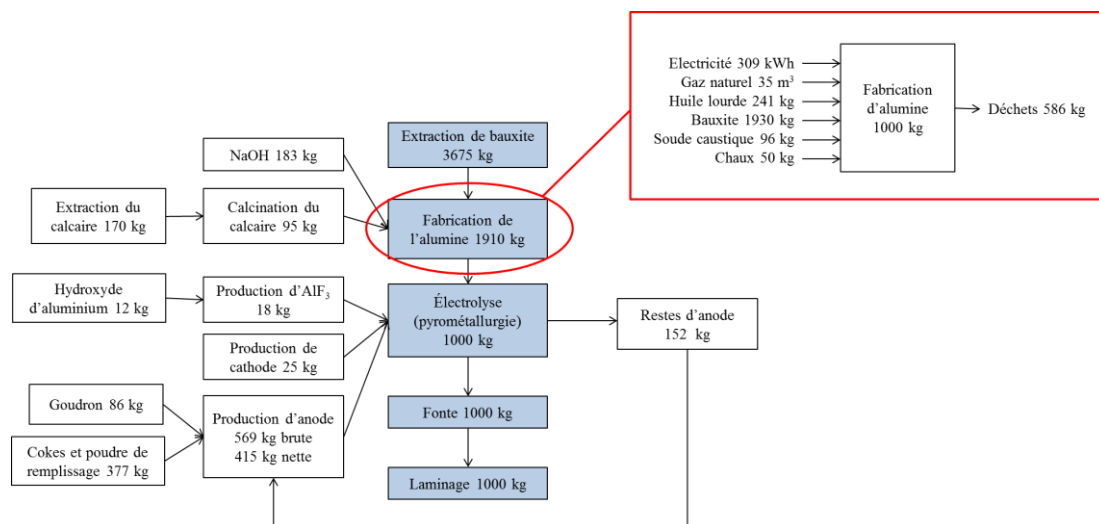


Figure 7. Exemple de diagramme de flux (Jolliet, 2005)

Les flux comptabilisés au cours de l'étape d'inventaire du cycle de vie pour chacun des processus élémentaires du système (encadré rouge, cf. Figure 7) sont :

- Les flux entrants : intrants énergétiques et de matières premières provenant d'autres systèmes et les flux élémentaires puisés dans l'environnement sans transformation humaine préalable ;
- Les flux sortants : les flux élémentaires rejetés dans l'environnement tels que les émissions vers l'eau, l'air, le sol et les extrants qui ne sont pas réutilisés dans le processus élémentaire suivant tels que les déchets.

Les flux intermédiaires permettent de relier chacun des processus élémentaires entre eux afin de constituer un arbre des procédés complet.

Les exigences de qualité des données doivent également être définies au cours de cette étape afin que les objectifs et le champ de l'étude soient satisfaits. Les exigences relatives à la qualité des données couvrent les facteurs temporels, la géographie, la technologie, la fidélité, la complétude, la représentativité, la cohérence, la reproductibilité, les sources des données et l'incertitude des informations.

Enfin, bien que définies au cours de l'étape de définition du champ de l'étude, le traitement de la multifonctionnalité s'opère concrètement lors de l'étape d'inventaire du cycle de vie.

2.2.3. Evaluation des impacts environnementaux

Cette troisième étape consiste à traduire les flux inventoriés lors de l'étape du cycle de vie en impacts potentiels (cf. Figure 8).

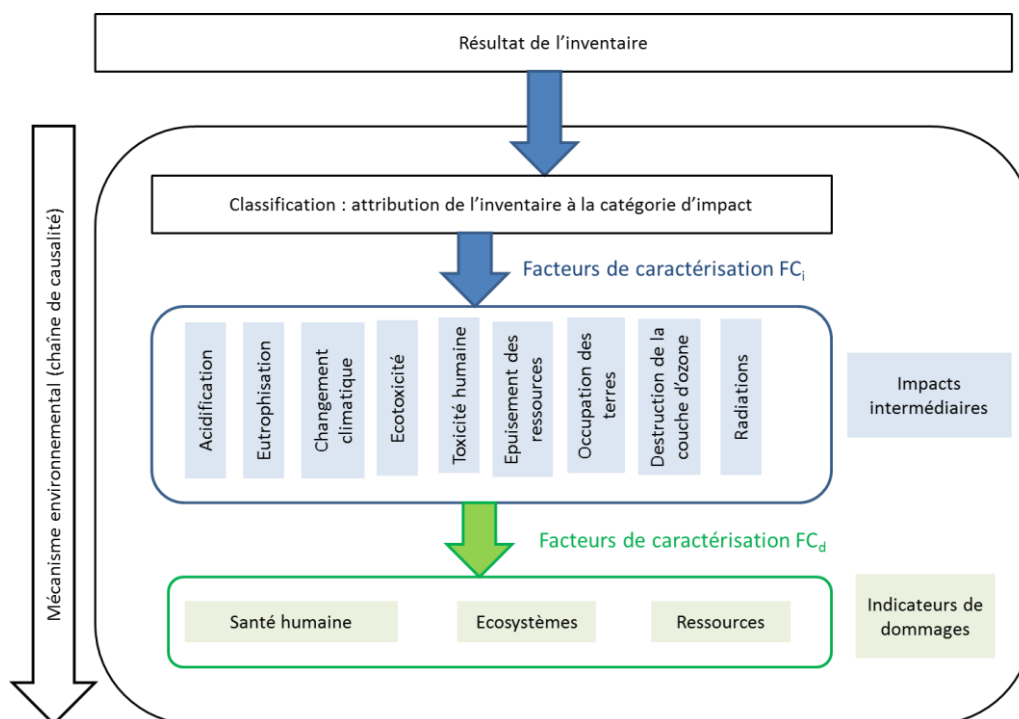


Figure 8. Evaluation de l'impact environnemental du cycle de vie

Les flux d'inventaire font en premier lieu l'objet d'une classification, c'est-à-dire qu'ils sont identifiés comme étant contributeurs à une ou plusieurs catégories d'impacts environnementaux. A titre d'exemple, le protoxyde d'azote (N₂O) contribue à l'impact de changement climatique et à l'impact d'eutrophisation.

Les flux référencés lors de l'analyse de l'inventaire sont ensuite convertis, le plus souvent, en quantité de substance « équivalente » par un *facteur de caractérisation* (on parle alors de « caractérisation des impacts ») pour chaque impact étudié selon la formule suivante (Guinée et al., 2002) :

$$I_c = \sum_i^n (m_i \cdot CF_{c,i})$$

Où I_c est l'impact relatif à la catégorie d'impact c issus de l'émission de n substances pour un cycle de vie donné (mesuré en kg), m_i la masse de substance i inventoriée dans le processus (mesurée en kg) et $CF_{c,i}$ le facteur de caractérisation de l'impact c relatif à la substance i , (exprimée en quantité de substance équivalente par kg de substance i).

Les facteurs de caractérisation sont construits sur la base de modèles appelés modèles de caractérisation. Ces modèles visent à représenter quantitativement la contribution de chacune des substances émises tout au long de la chaîne de cause à effet pour chacun des impacts. Deux approches existent : l'approche midpoint (ou intermédiaire) décrite ci-dessus et l'approche endpoint (ou dommage).

Les indicateurs de dommages (ou impacts finaux) ont pour principale vocation de regrouper les impacts intermédiaires en fonction de leurs contributions respectives à la détérioration des aires de protection que sont la santé humaine, les ressources naturelles et les écosystèmes (ILCD Handbook, 2010). Ils sont calculés par la formule suivante (Guinée et al., 2002) :

$$I_c = \sum_i^n (m_i \cdot \text{dommage}_{c,i})$$

Où I_c est l'impact relatif à la catégorie de dommage c issu de l'émission de n substances (mesuré en DALY ou PDF.m².an ou MJ), m_i la masse de substance i inventoriée dans le processus du cycle de vie du scénario considéré (mesurée en kg) et $\text{dommage}_{c,i}$ le résultat de l'indicateur de catégorie de dommage c relatif à la substance i (mesuré en DALY.kg⁻¹ ou PDF.m².an.kg⁻¹ ou MJ.kg⁻¹ selon l'aire de protection et la méthode de caractérisation).

Leur principal avantage réside dans la capacité de présenter des résultats d'impact plus facilement appropriables. Toutefois, une incertitude importante réside dans la construction de la chaîne de cause à effet des impacts jusqu'à leur dommage sur les aires de protection en raison de la complexité, de la temporalité et du manque de connaissance des phénomènes mis en œuvre.

Il existe enfin des méthodes de compilation des résultats de caractérisation des impacts finaux (normalisation, agrégation, pondération, monétarisation) permettant d'obtenir un score unique. Ces méthodes sont facultatives d'après la norme et font l'objet de discussion quant à leur objectivisme.

2.2.4. Interprétation des résultats

Cette dernière phase de l'ACV permet d'analyser les résultats obtenus lors de l'analyse de l'inventaire et de l'évaluation des impacts. L'interprétation peut être réalisée sous la forme de conclusions et/ou de préconisations.

Elle se doit d'être cohérente avec les objectifs et le champ de l'étude, claire et utilisable par le décideur. Si les résultats ne sont pas cohérents, il est alors possible de mettre en place un

processus itératif qui permet de revoir le champ de l'étude, la qualité des données et les objectifs fixés (ISO 14044, 2006).

Les résultats de l'ACV pointent les étapes du cycle de vie où il est nécessaire de mettre en place des actions d'amélioration. Ces dernières sont choisies en fonction de différents facteurs tels que le facteur économique (coût et de rentabilité des améliorations), le facteur social, le facteur technique en termes de faisabilité et le facteur réglementaire (Aissani, 2008).

Cette dernière étape permet également d'analyser de manière critique l'ACV réalisée en ce qui concerne les hypothèses posées, les choix méthodologiques et les limites de l'étude et de mettre en perspective les résultats.

2.3. Questionnement posé à l'ACV dans le cas de l'évaluation de nouveaux produits issus de boues d'épuration urbaines

L'identification des performances environnementales des produits issus de boues d'épuration urbaines au moyen de l'ACV amène à un certain nombre de questionnements méthodologiques.

Le premier est lié au statut réglementaire de la boue et à la conséquence qu'aurait un changement de paradigme concrétisé par le passage du statut de déchet au statut de produit.

En effet, à la différence d'une ACV évaluant les impacts d'un produit manufacturé qui prend en compte l'ensemble du cycle de vie dudit produit depuis l'extraction des ressources naturelles jusqu'à la fin de vie (qui peut être une voie d'élimination ou une voie de valorisation), une ACV évaluant les impacts de la gestion d'un déchet (ou ACV « fin de vie ») ne prend en compte que la dernière étape du cycle de vie (cf. Figure 9). Un déchet est en effet exonéré de toute charge environnementale de production, du fait de la fatalité de sa genèse. Cette exonération est appelée *zero burden assumption* et favorise de fait les produits déchets-sourcés. Or si un changement de statut s'opère pour certains déchets, la validité de leurs performances environnementales peut être remise en question.

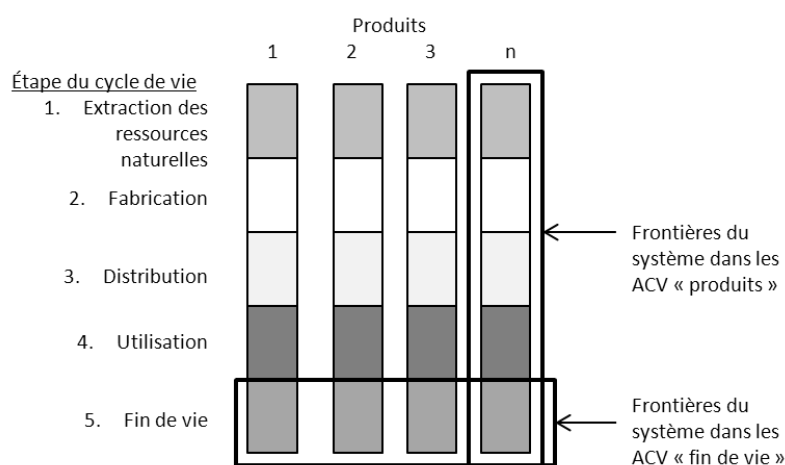


Figure 9 : Spécificités des frontières du cycle de vie Produit/Déchets, adapté de Björklund (2000)

Pour tenter d'identifier l'impact de cet éventuel changement de paradigme dans la littérature scientifique ACV, une analyse critique a été réalisée sur 44 articles scientifiques. Il est en effet possible d'obtenir des indications sur le statut de la boue d'épuration urbaine choisi en analysant l'étape de définition des objectifs et du champ de l'étude des ACV réalisées par les auteurs de ces articles. Cette analyse critique a fait l'objet d'une publication scientifique présentée dans la partie suivante.

3. Mise en évidence d'un changement de statut pour la boue d'épuration urbaine par le passage d'un statut « déchet » à un statut « produit » : conséquence pour l'évaluation environnementale de ces systèmes

L'article ci-après est la version auteur de l'article publié dans *Journal of Cleaner Production* en mai 2016.

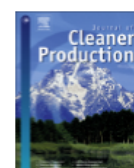
Journal of Cleaner Production 131 (2016) 60–75



Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Cleaner Production

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jclepro



Review

From waste to added value product: towards a paradigm shift in life cycle assessment applied to wastewater sludge – a review



Marilys Pradel ^{a, d, *}, Lynda Aissani ^{b, c}, Jonathan Villot ^d, Jean-Christophe Baudez ^a,
Valérie Laforest ^d

^a Irstea, UR TSCF, Domaine des Palaquins, 40 Route de Chazeuil, 03150 Montoldre, France

^b Irstea, UR OPAALE, 17 Avenue de Cucillé, CS 64427, 35044 Rennes Cedex, France

^c Université Bretagne Loire, France

^d Université de Lyon, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, CNRS, UMR 5600 EVS, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2, France

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jclepro.2016.05.076>

0959-6526/© 2016 Elsevier Ltd. All rights reserved.

From waste to added value product: towards a paradigm shift in Life Cycle Assessment applied to wastewater sludge – A review

Marilys Pradel^{a,d*}, Lynda Aissani^{b,c}, Jonathan Villot^d, Jean-Christophe Baudez^a, Valérie Laforest^d

^a Irstea, UR TSCF, Domaine des Palaquins, 40 route de Chazeuil, 03150 MONTOLDRE, France, marilys.pradel@irstea.fr, jean-christophe.baudez@irstea.fr

^b Irstea, UR OPAALE, 17 avenue de Cucillé, CS 64427, 35044 Rennes Cedex, France, lynda.aissani@irstea.fr

^c Université Bretagne Loire, France,

^d Université de Lyon, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, CNRS, UMR 5600 EVS, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2 France, valerie.laforest@mines-stetienne.fr, jonathan.villot@mines-stetienne.fr

*Corresponding author: telephone: (+33) 470 474 426, fax: (+33) 470 474 411, marilys.pradel@irstea.fr

Abstract

This paper aims at highlighting considerations on the sludge status and subsequent Life Cycle Assessment modelling if a paradigm shift arose by moving from “waste” sludge to “product” sludge. Forty-four peer-reviewed papers of Life Cycle Assessment in the field of wastewater treatment have been critically reviewed to highlight the consequences of this paradigm shift on the Life Cycle Assessment method and to identify the impacts on the goal and scope step of Life Cycle Assessment questioned by the sludge status (“waste”, “waste-to-product” or “product” sludge). Results show that sludge is mainly considered as “waste-to-product” sludge. The “zero burden assumption” is always applied and sludge is never charged with an environmental burden associated with its production. This is not questionable when sewage sludge is considered as “waste” or “waste-to-product” sludge with energy recovery. However, this is becoming more debatable when sludge is considered as “product” sludge or as “waste-to-product” sludge with nutrient or material recovery.

In such cases, the “zero burden assumption” is no longer a valid hypothesis as the sludge life-cycle needs to be fully considered. This can only be done if the sludge carries an upstream environmental burden. Allocating an environmental burden to the sludge appears as a challenging question requesting allocation factors between the sludge production and the water treatment for each step that generates sewage sludge.

Keywords

Sewage sludge, Life Cycle Assessment, Wastewater treatment, Product, Waste, Environmental burden

3.1. Introduction

With the population increase in concentrated urban areas during the last centuries, inevitably came sanitary problems. The sanitary problems originated from the release of raw wastewater in the environment, with an increase of fecal pathogens, leading to several pandemics. Part of the problem was solved with the development of sanitation systems for these growing cities in the middle of the 19th century. From basic desludging systems, wastewater treatment plants (WWTP) were progressively improved with the development of activated treatment processes but the remaining sludge was still discharged into the natural environment without being previously sanitized. During the last decades, European institutions established regulations aiming at protecting the environment from the adverse effects of the collection, treatment and discharge of wastewater (CEC, 1991) and at maintaining or improving the aquatic environment (CEC, 2000). These regulations led to important constraints on the WWTP in terms of water quality leading to more effective water treatment and an increase in sludge production that can be no longer dumped into the ocean or landfilled. Thus, wastewater sludge (mentioned afterwards as sewage sludge or, more simply, as sludge) has to be treated before being disposed in a safe way.

Based on two European directives (CEC, 1991; CEC, 1986), sludge is defined as a residual product, whether treated or untreated. Despite article 14 of directive 91/271/EEC, specifying that sludge shall be re-used whenever appropriate and disposal routes shall minimize the adverse effects on the environment, sludges are still classified as “waste”.

However, sludge is a huge source of renewable organic matter that can be considered for sustainable resource recovery (Spinosa et al., 2011), such as nutrient or energy recovery leading to potentially marketable sludge-based added value products.

This approach is echoing the revised Waste Framework Directive (WFD) (CEC, 2008) which specifically introduces the concept of end-of waste. End-products are no longer considered as waste, but as materials to be reused with the objective of reducing the environmental impact of waste generation and management if they fulfill four conditions:

- The waste is commonly used for specific purposes.
- There is an existence of a market or a demand for this waste.
- Technical requirements, legislation, and standards applicable to products exist for the waste.
- No adverse environmental effects or human health impacts are generated following the waste use.

A focus on magnesium ammonium phosphate (MAP) production from struvite crystallization process can demonstrate that, in the near future, sludge will probably move from a waste to an added value product. As sludges are rich in phosphorus, this phosphorus can be recovered as MAP. The latest MAP can then be used as mineral fertilizers on agricultural soils, displacing traditional phosphorus mineral fertilizers (fulfilling the first condition). MAP can be sold as a mineral fertilizer and so is able to create a market or a specific demand for this product (fulfilling the second condition). As the production of MAP from struvite crystallization process

using sewage sludge effluent is one of the most advanced processes that can be achieved with a good technology level and a two-year return on investment (von Münch, 2001), the third condition is fulfilled. The fourth condition is also fulfilled as no sanitary accident in France has been reported while using MAP on agricultural soils, at least since a devoted observatory was launched in 1998 (Legroux and Truchot, 2009; MEEDTL, 2009). No cumulative effects were demonstrated in literature and no impacts on human health have been identified yet according to a French National Scientific Expertise (ESCo MAFOR) for MAP use on agricultural soils (Houot et al., 2014).

The first three conditions are also valid for organic sludge, but the fourth condition is more debatable, as two biological sanitary accidents have been reported in France and a possible case of ewes' contamination with endocrine disrupting compounds was found in Great Britain (Lea et al., 2016). However, the last technical proposal in the third working document of the « End-of-Waste » criteria for biodegradable waste subjected to biological treatment mentions that sludge is not directly included in the list of eligible biodegradable wastes but can be considered as an input material for composting and anaerobic digestion (Saveyn and Eder, 2014).

All these considerations lead to an ambiguity about the status of sludge: it is currently considered a waste, but can be used to generate a product and so becomes a valuable product on its own.

It creates a paradigm shift in the given status of sludge, as it implies that the sludge will move from its current state of fatal waste to an on-going state of valuable and expected product – with predictable characteristics – of the wastewater treatment plant. This duality generates an ambiguity in the way sludge should be considered – waste or product – and in the development of environmental assessment procedures, especially by using Life Cycle Assessment (LCA).

Initially adapted to manufactured products and among the multiple decision tools that can be used to perform environmental assessment, LCA is a powerful tool that allows an exhaustive analysis of, firstly, different anthropogenic systems, such as manufactured products, agricultural or waste management systems and, secondly, many environmental impacts, such as climate change, eutrophication, or human toxicity (ISO14040, 2006; ISO14044, 2006). LCA is commonly used to assess the potential environmental impact of wastewater treatment, including the sewage sludge management (Yoshida et al., 2013; Corominas et al., 2013).

The paradigm shift “from “waste” sludge to “product” sludge” implies that sludge production is more and more controlled and oriented to reach a final marketable product and, possibly, with predictable characteristics in line with its future reuse. It is reasonable to look at the consequences of this paradigm shift on LCA: Does this paradigm shift make wastewater related LCA studies out of date or incorrect in the way the systems were modelled? Are the methodological consequences for LCA identified and, if so, are they important?

The purpose of this review is to highlight if this paradigm shift is ongoing for sewage sludge by analyzing how the goal and scope steps of LCA in the field of wastewater treatment were structured among four aspects: the objectives of the study, the function and the functional unit of the system under study, its boundaries, and the use of the zero burden assumption. The analysis of the review will highlight the implications for conducting LCA in this research field

and methodological challenges that need to be solved to fully take into consideration this paradigm shift in LCA methodology.

3.2. Methods

This section sets the prerequisites and assumptions used in this review in terms of LCA system modelling, and terms definition. Then, the method used to select literature papers is described.

3.2.1. Prerequisites and assumptions

Life Cycle Assessment modelling

Life Cycle Assessment (LCA) is structured according to ISO14040 standards (ISO14040, 2006; ISO14044, 2006) with the objective of assessing the potential environmental impacts of a product, a service, or a system, including all its related activities. The impact quantification is done throughout the system life cycle by considering each step from raw material acquisition through production, use, possible reuse/recycling, and final disposal. LCA aims at comparing, from an environmental point of view, systems that strictly provide the same service. According to the standards, Life Cycle Assessment is conducted through a four step iterative procedure including (i) goal and scope definition, (ii) life cycle inventory, (iii) life cycle impact assessment and (iv) results interpretation.

Because this paper focuses on the system modelling in LCA studies from literature to highlight sludge status, only the goal and scope definition step is presented in detail hereafter; the three other LCA steps are not developed.

Goal and scope definition: a key step for LCA system modelling

The goal definition aims at defining the problem, the intended applications, and the recipients of the study. The scope of the study, meanwhile, defines the boundaries of the system, its assigned function, and its modelling. This step also includes the definition of the functional unit (FU), a quantification of the function assigned to the system, and to which all the inventory data should refer. FU is the basis for the calculations and the comparison of the studied scenarios. Depending on the scope of the LCA, FUs are expressed in terms of system's output (all product, material, or energy flow that leaves the system) or system's input (all product, material, or energy flow that enters the system). In the early nineties, the LCA methodology was used to assess the environmental impacts of manufactured products. A "product LCA" takes into account the entire life cycle of the product from the extraction of natural resources up to the end of life. Basically, such LCAs can have a single product as an output and can also produce a fatal waste. The function of such LCA is quite easy to assess and generally refers to the production of a unit of the product. The consequent functional unit is defined in terms of system's output such as the mass (or volume) of the manufactured product (Heijungs et al., 1992).

With the growing interest in LCA as an environmental assessment tool, new methodological developments occurred to adapt LCA to other application areas, such as technological process, open systems (agriculture, production service systems or territory), or waste management systems. In this last case, once the product becomes a waste, it is included in a new system, the waste management system, until it regains value or leaves the waste management system as an emission. The LCA of waste management system (referred later in the paper as “waste LCAs”) is focused on the “end of life” of a product or a system and only takes into account the processes involved to manage this waste. “Waste LCAs” are used to determine the environmental changes in the way wastes can be managed. The functional unit of waste management system is defined in terms of system’s input, i.e., the quantity of waste to be managed (McDouglas et al., 2001). The main function of a waste management system is therefore, to treat a waste, but additional functions should be considered if energy is produced from the waste treatment (heat and electricity from waste incineration, for example) or if waste is used as a fertilizer on agricultural soils.

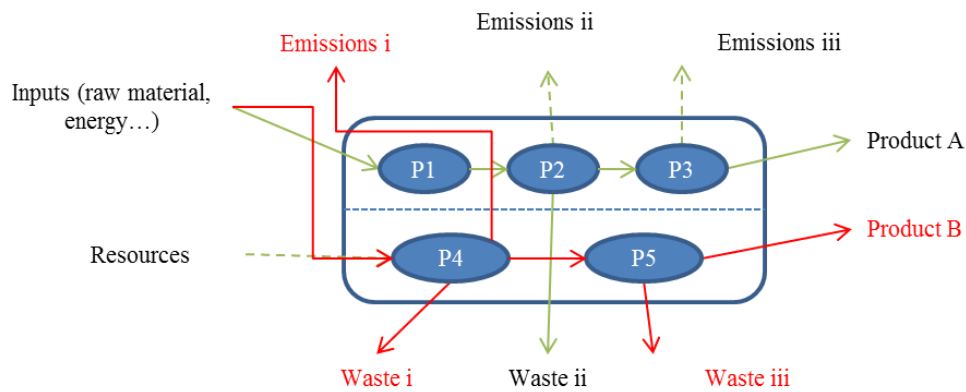
“Product LCAs”, as well as “Waste LCAs”, can be multifunctional as they can have several functions or products and it is not clear to which product or function the environmental impact should be allocated. According to Finnveden (2009), there are three types of allocation problems: multi-output (a system produces several products, e.g., manufactured industries), multi-input (a system receives several products to be treated, e.g., waste incinerator) and open-loop recycling (a system uses a product or a waste from another system).

Solving multifunctionality in LCA is a long-lasting research question and usually a methodological challenge as outlined by Reap et al. (2008). There are three main ways to handle multifunctionality in LCA (cf. Figure 10).

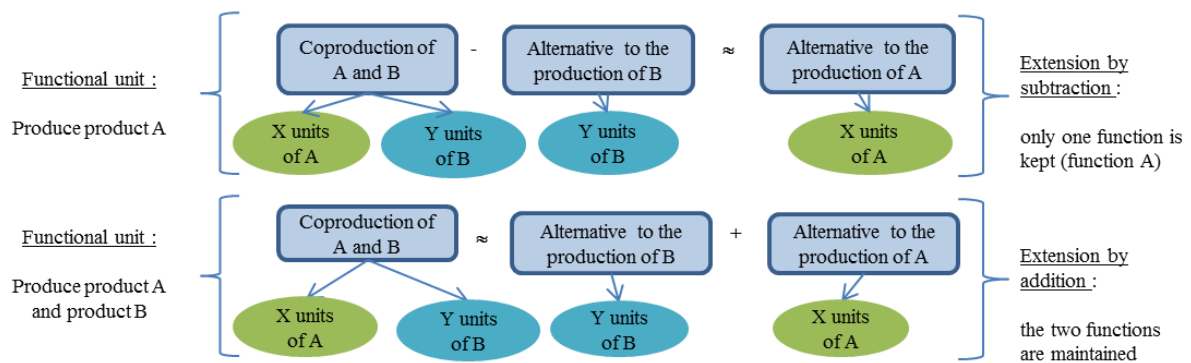
One is to subdivide multifunctional processes in single operation unit processes (cf. Figure 10a). According to ILCD Handbook (European Commission JRC-IES, 2010), subdivision of multifunctional processes refers to the collection of data individually for those of the monofunctional processes that relate to the system and that are contained in the multifunctional process. This implies that the monofunctional processes can be cut free and easily associated with inputs and outputs and so partitioned between product A and product B.

Another way to solve multifunctionality is to expand the system boundaries and to include affected parts of other life cycles in the technological system under study (cf. Figure 10b). When several multifunctional systems are to be made comparable, solving multifunctionality is done by subtracting the undesired function or adding the missing one.

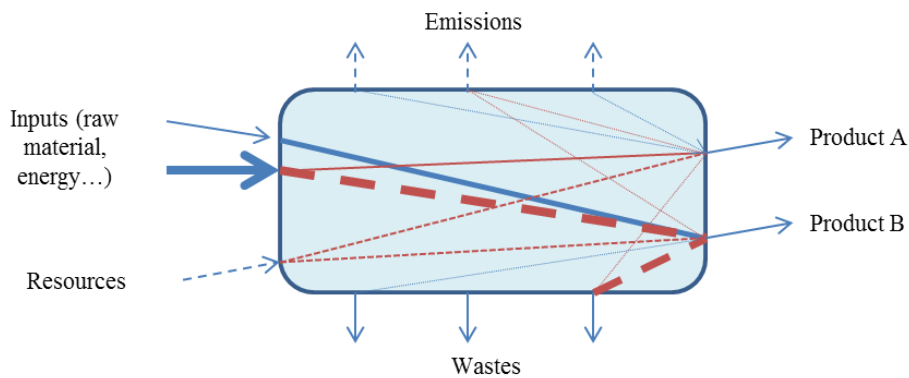
In practice, when system 1 generates two products A and B while system 2 generates only product A and if the objective of the study is the “production of product A”, the function “production of product B” is not required in system 1 and thus it is subtracted from the system by substituting it with an alternative function.



(a) Subdivision of a multifunctional process in monofunctional processes



(b) System expansion



(c) System partitioning. The thickness of the lines indicates which share of each non-functional flow is allocated to each coproduct (product A and product B). The blue solid lines refer to the flows that can be allocated to only one product and the red dotted lines the flows that can be allocated to both products A and B

Figure 10. Solutions to handle multifunctionality in LCA (adapted from ILCD Handbook, 2010)

If the objective of the study is to produce product A and product B, the missing function “production of product B” needs to be added to system 2. This approach is currently called system expansion by addition. Solving multifunctionality by system expansion means to subtract or add the inventory of another system to/from the analyzed system depending on the objective of the study and the chosen system boundaries. The choice of the substituted systems can be done according to two approaches: attributive or consequential. The explanation of the aim of both approaches and their consequences in LCA modelling is very discussed in scientific literature (Earles and Halog, 2011; Ekvall et al., 2016; Sandén and Karlström, 2007) and it mainly depends on the goal of the study (Zamagni et al., 2012). In the following, only attributional LCAs system modeling is considered.

The last way to solve multifunctionality in LCA is to allocate (partition) the environmental impacts between the products. Allocation is one of the most discussed methodological issues in LCA (Curran, 2007; Ekvall and Finnveden, 2001; Heijungs and Guinee, 2007; Lundie et al., 2007; Weidema, 2001). This can be done on the basis of several principles such as physical and chemical causation or economic value (Finnveden, 1999).

The concept of zero burden assumption

LCA modelling only focuses on the impacting system boundaries of the relevant processes as it is mostly applied for system comparison. All the identical processes are not taken into account in the system boundaries. In case of comparative “Waste LCAs” (Ekvall et al., 2007; Finnveden, 1999), as the amount of waste treated can be equal in the different scenarios, a simplification is done by excluding the upstream materials and processes from the system boundaries. This means the system is only focused on the waste treatment. This concept is called the “zero burden assumption” and is also known as the cut-off approach (Schrijvers et al., 2016).

This “zero burden assumption” concept was first focused on a LCA system simplification in comparative “Waste LCA”. It has been derived by LCA practitioners by considering that a fatal waste generated by a system has no upstream environmental burdens: the impacts are fully and totally allocated to the product, meaning the fatal waste is free of any environmental burdens when entering a waste management system to be treated (Ekvall et al., 2007; Finnveden, 1999).

Some authors also start to question this “derive of the zero burden assumption” (Cleary, 2010; Holden; Oldfield and Holden, 2014) by considering that the “waste” status is subjective and questionable especially if it has a high nutrient or energy recovery potential. The fatal waste can therefore be seen as a resource or as a material that can be used in another system as in case of open-loop recycling. For these authors, the concept of “zero burden assumption” is therefore hard to justify and should be reconsidered depending on the status according to the “waste” and its future usage: the waste is fatal strictly speaking, the waste is seen as a resource or the waste is in fact a fatal coproduct of the system.

Terms definition

To overcome the ambiguity highlighted on the “waste” status and how it can be illustrated with the case of sewage sludge, it was chosen to state on and to define what “waste” sludge, “waste-to-product” sludge and “product” sludge are.

When sewage sludge is seen from a “waste” point of view (cf. Figure 11a), sewage sludge is considered as a fatal waste generated during the treatment of waste water. In that case, the only function of the wastewater treatment plant is to treat wastewater. Sludge can then be defined as “waste” sludge. When this fatal waste enters a new system (in open-loop recycling) with neither value nor recovery potential (used to be burnt, for example), sludge can also be defined as “waste” sludge.

When sludge is seen from a “product” point of view (cf. Figure 11b), two cases can be considered.

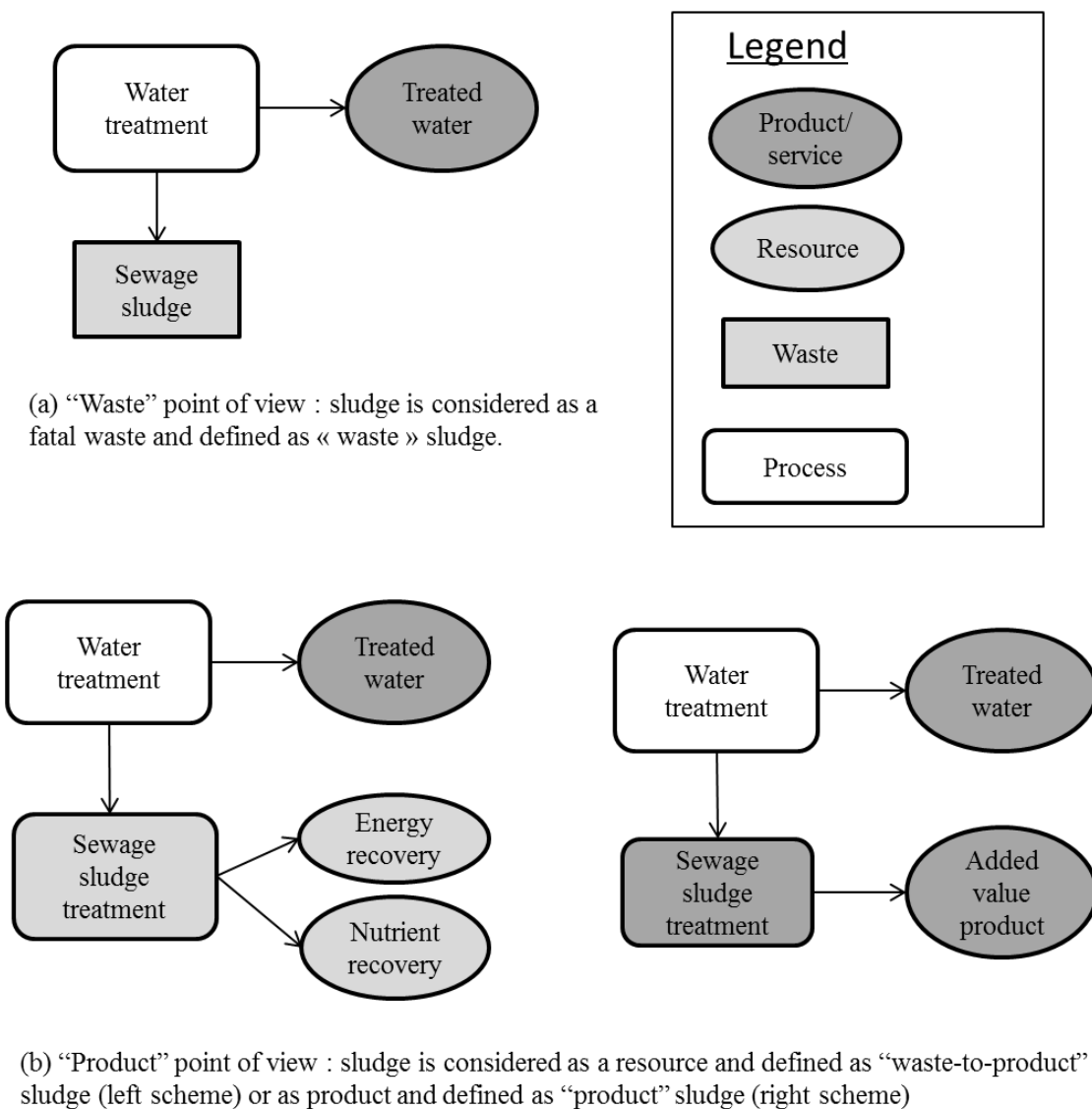


Figure 11. Differences in sewage sludge management by considering sewage sludge from a “waste” point of view (a) or from a “product” point of view (b)

Firstly, the sludge is treated to reduce its water content and to be stabilized or dried before being disposed in a safe way. Technologies used can produce valuable byproduct (such as biogas from anaerobic digestion) that can be recovered and used as energy supply (after thermal conversion). This is often known as sludge-to-energy approach (Manara et Zabaniotou, 2012; Rulkens, 2008). Sludge can also be used on agricultural soil as it contains nitrogen and phosphorus (Mehta et al, 2015). In case of open-loop recycling, sludge can enter a new system than generates valuable product (such as cement or fertilizer) to substitute raw materials. In these three examples, sludge is considered as a valuable resource as a quality improvement management is done all along the treatment line. Sludge can be reused either as a material resource or as an energy or nutrient resource. From our point of view, this way to consider sludge as a resource is defined later in the paper as “waste-to-product” sludge.

Secondly, sludge is treated in order to gain specific characteristic compatible with its reuse (as fertilizer, ceramsite or absorbents). The sludge treatment line is oriented to obtain a potential marketable added-value product. In that case, sludge is seen as a full product of the wastewater treatment plant and can therefore be defined as “product” sludge.

According to these definitions, the terms “waste” sludge, “waste-to-product” sludge and “product” sludge will be used in the present critical review.

3.2.2. Methodology under the critical review analysis

Yoshida et al. (2013) and Corominas et al. (2013) foresee in their reviews a change of paradigm as sludge has the potential to be an energy or nutrient resource and so can move to a “waste-to-product” sludge but without giving a deep analysis of its consequences for LCA. The present critical review is going further in order to highlight if a paradigm shift from “waste” sludge to “product” sludge occurs. This work is based on a deep exam of the goal and scope of LCA studies applied to wastewater treatment as we assume that this LCA step is a good indicator to identify and analyze the status given to sludge.

44 LCA papers dealing with sewage sludge management have been analyzed regarding the underlying objectives, the system boundaries, the associated functions (and so the functional unit), the allocation rules in case of multifunctional system, and any discussion regarding the sludge status (Appendix A). Papers were collected throughout the Web Of Science website (<http://apps.webofknowledge.com>) using the combination of two queries: ["biosolid*" OR "sewage sludge*"] AND ["lca" OR "life cycle assessment" OR "lci" OR "life cycle inventor*" OR "life cycle analysis"]. The description of the analyzed corpus is presented in the result section (section 3.1).

First results of the review analysis show that it is very rare that the sludge status is precised by the authors as it was not really the main examined question. However, the paper reading and the deep analysis of the goal and scope allow us to assume the sludge status for each paper. This assumption is based on that the different methodological points of the goal and scope as objectives, function, functional unit, system boundaries, and allocation could be good indicators of the sludge status through a crossed analysis according on the definition given in section 2.1.2. Thus, three analyses have been carried out.

- A first analysis is conducted by crossing the objectives with the system boundaries (Analysis A) to highlight how the current LCAs of sewage sludge take into consideration the sludge status.
- A second analysis is focused on the comparison of the objectives, the system boundaries, and the allocation rules with both the function and the functional unit (Analysis B) to highlight the functions and the associated functional units of these systems, how are they modelled, and to assess whether sludge is considered with a “waste”, a “waste-to-product”, or a “product” status.
- A third analysis is conducted by crossing system boundaries and allocation rules with the “zero burden assumption” (Analysis C). The goal of this analysis is to highlight if there is a coherence between the status given to sludge and its modelling, specifically if sludge is not charged with an environmental burden.

Results of these three analyzes are presented in the result section (section 3.3). A discussion is following on the consistency in LCA modelling according to the sludge status definition given in section 2.1.2., and how better accuracy in system modelling could be proposed based on it.

3.3. Results of the critical review analysis

3.3.1. Corpus description

The 44 papers analyzed have been classified in four main objectives:

1. Assessing the environmental impacts of the use of sewage sludge as a raw material in a different system (either cement or fertilizer production) (obj 1 – 5 papers – 11%),
2. Assessing the environmental impacts of water facility services (obj 2 – 1 paper – 2%),
3. Improving the Life Cycle Assessment methodology development, using wastewater treatment as a case study (obj 3 – 3 papers – 7%)
4. Comparing and assessing different technological systems of sewage sludge treatment and disposal in order to identify the environmental impacts in their possible modifications (obj 4 – 35 papers – 80%).

Even if system boundaries are specific to each of the 44 papers, a simplified representation of these boundaries is presented in Figure 12. Five main system boundaries are highlighted:

- i. The use of sludge as a raw material in another system, either cement, fertilizer or energy production – called later on “LCA of sludge in open-loop recycling” (5 papers).
- ii. The whole water treatment line, including the drinking water production up to the sludge disposal or reuse (2 papers).
- iii. The wastewater treatment plant, including the sludge disposal or reuse (12 papers).
- iv. The sewage sludge management focusing on the whole sewage sludge treatment line (17 papers).
- v. The sewage sludge management focusing on a specific treatment process (8 papers).

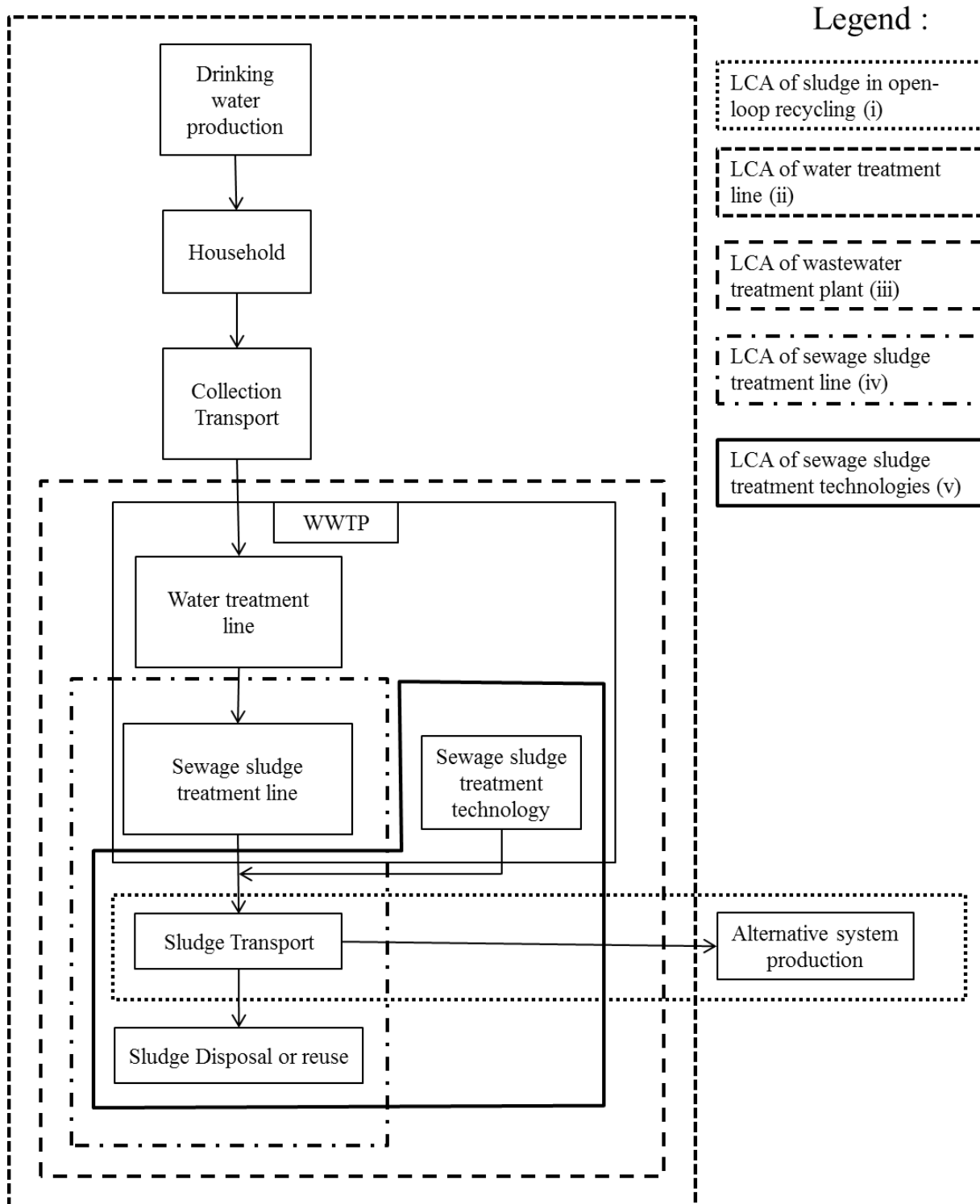


Figure 12. System boundaries of the reviewed papers

In LCA, each system has a specific function characterized by a functional unit. Among the 44 papers, only 14 of them explicit clearly the function of the considered system, the others do not mention it. When the functions are mentioned, the authors specify clearly that the system is either monofunctional (9 papers) or multifunctional (5 papers). But even if the function is not mentioned in most of the papers, their authors express the multifunctional nature of their system

by using different allocation procedures. The majority of authors (29 papers) use system expansion by subtraction. The other authors do not use allocation procedure (14 papers) except one author that uses the system expansion by addition.

Most authors who do not mentioned the function of their system specify the functional unit used. When the functional unit is not mentioned (4 papers), it is replaced by the reference flow used for each scenario. The vast majority of the functional units used are input functional units (34 papers) while only 6 papers express the LCA results according to an output functional unit.

3.3.2. Crossed analyses of the reviewed papers

The results of the three crossed analyses are presented in this section. Results of Analysis A intersect objectives with system boundaries. Results of analysis B intersect the objectives, system boundaries, and allocation rules with both the function and the functional unit, and results of analysis C intersect boundaries and allocation rules with the “zero burden assumption”.

Analysis A – Crossed-analysis of objectives with system boundaries

Very few authors focus part of their attention on the sewage sludge status whatever the system boundaries as only 11 papers discuss if sludge should be considered as a waste or a resource. However, this status can be deduced for all papers from an in-depth analysis on how the LCA study was conducted. This crossed-analysis aims to try determining the sludge status through the use/fate of sludge (defined by the system boundaries) and the objectives of studies through systems comparison.

When LCA aims to assess the environmental impacts of the use of sewage sludge as a raw material in different systems (either cement or fertilizer production) (obj. 1), the system boundaries are always limited to the sludge transport and use in an alternative system (system boundaries i, cf. Figure 12). In such open-loop recycling LCA, sludge has a “waste-to-product” status when sludge enters the system with the same characteristics than the raw material it replaces and is clearly seen as a resource by the authors (Hong and Li, 2011; Valderrama et al., 2013). However, when sludge enters the system to be incinerated to produce some energy, sludge is considered with a “waste” status as it is seen as a sludge treatment and no recovery is introduced in the system (Cartmell et al., 2005; Hong et al., 2011).

When LCA aims to assess the environmental impacts of water treatment line, the system boundaries include the sludge treatment that is seen by the authors as a nutrient or energy recovery process (obj. 2 and 3, system boundaries ii). In such system, sludge is considered as “waste-to-product” sludge (Lundie et al., 2004; Lundin et al., 2000).

Several authors described the wastewater treatment plant as a water treatment process that generates a fatal waste: the sludge (obj. 3 and obj. 4, system boundaries iii). Other authors described the sludge treatment line more as a waste reduction process than a recovery one (obj. 3 and obj. 4, system boundaries iv). In such papers, sludge is considered as “waste” sludge

(Bravo and Ferrer, 2011; Dennison et al., 1998; Hwang and Hanaki, 2000; Kalbar et al., 2013; Li et al., 2013; Renou et al., 2008; Suh and Rousseaux, 2002; Xu et al., 2014).

All the other authors considered that sewage sludge treatment is a recovery process whatever the system studied: the whole WWTP (obj 4., system boundaries iii), the sludge treatment line (obj. 4, system boundaries iv), or the sludge treatment technologies (obj.4, system boundaries v). In these papers, sludge is considered with a “waste-to-product” status. Sludge treatment can be considered specifically as nutrient recovery (Gallego et al., 2008; Hospido et al., 2008; Hospido et al., 2010; Sablayrolles et al., 2010) or energy recovery (Hong et al., 2009; Peters and Lundie, 2001; Svanstrom et al., 2004). It can also be considered both as nutrient and energy recovery (Brown et al., 2010; Cao and Pawlowski, 2013; Carballa et al., 2011; Foley et al., 2010; Hospido et al., 2004; Hospido et al., 2005; Mills et al., 2014; Nakakubo et al., 2012; Peters and Rowley, 2009; Remy and Jekel, 2008; Remy et al., 2013; Righi et al., 2013; Tillman et al., 1998) with sometimes material recovery added to the two others (Houillon and Jolliet, 2005; Liu et al., 2013; Murray et al., 2008; Pasqualino et al., 2009).

However, some difficulties were encountered to determine the status of sludge when authors proposed scenario comparison with both advanced technological treatment that leads to “product” sludge from our point of view and scenario with classic sewage sludge treatment that leads to “waste-to-product” sludge (obj. 4, system boundaries v.). This mainly occurs when the objective of the LCA study is to assess the environmental impact of phosphorus recovery as some technologies used are developed to obtain the maximum yield of phosphorus from residue while the compared technologies do not (Johansson et al., 2008; Lederer and Rechberger, 2010; Lundin et al., 2004). This was also highlighted in an open-loop recycling LCA study (obj. 1, system boundaries i) that aims to compare phosphate fertilizer production scenario from various origin including sludge-based ones (Linderholm et al., 2012).

To summarize, according to this crossed analysis between system boundaries and objectives, it can be highlighted that sludge is considered as “waste-to-product” sludge in 30 of the paper reviewed and as “waste” sludge in 10 others. In 4 papers, both “waste-to-product” and “product” statuses are concomitant and depend on the scenario compared.

Analysis B – Crossed-analysis of functions and functional units with objectives, system boundaries, and allocation rules

Functions are barely, or simply, not described in the reviewed papers. Nevertheless, as the functional unit quantifies the function, an in-depth analysis of the functional unit gives implicit information on the system function. So, the analysis B will be carried out both on the function (when it is mentioned in papers) and on the functional unit to assess whether sludge is considered as a “waste”, a “waste-to-product” or a “product”. The repartition of the type of functions (no function, single, or several functions) according to the objectives of the LCA studies, the system boundaries and the associated allocation rules is presented in Figure 13. The repartition of the functional unit and its nature (no functional unit, input, or output functional unit) according to the same criteria is presented in Figure 14.

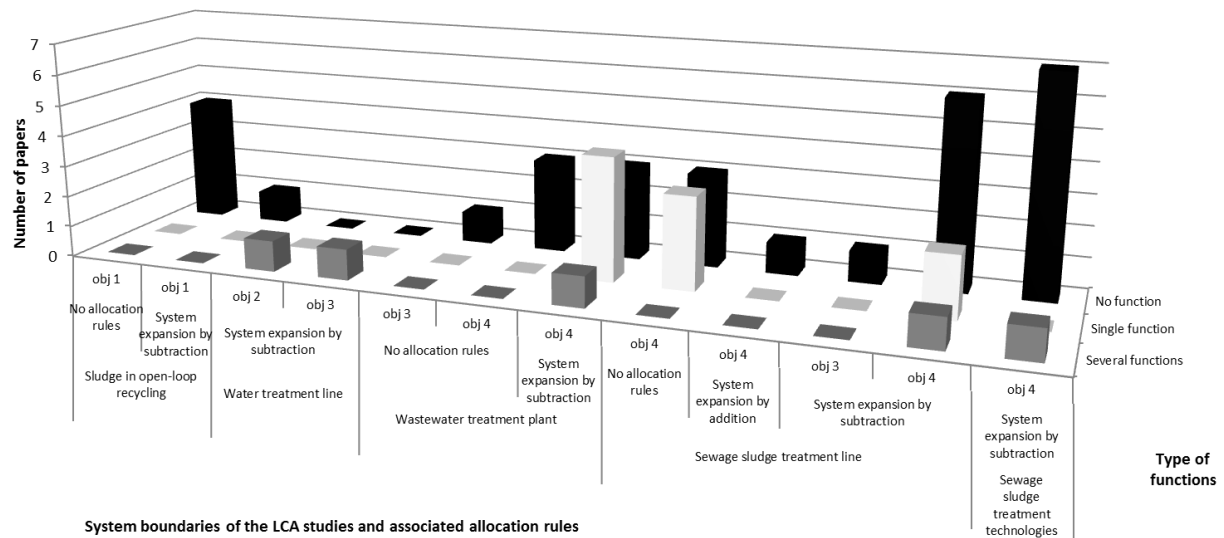


Figure 13. Repartition of the type of functions according to the objectives of the LCA studies, the system boundaries and the associated allocation rules

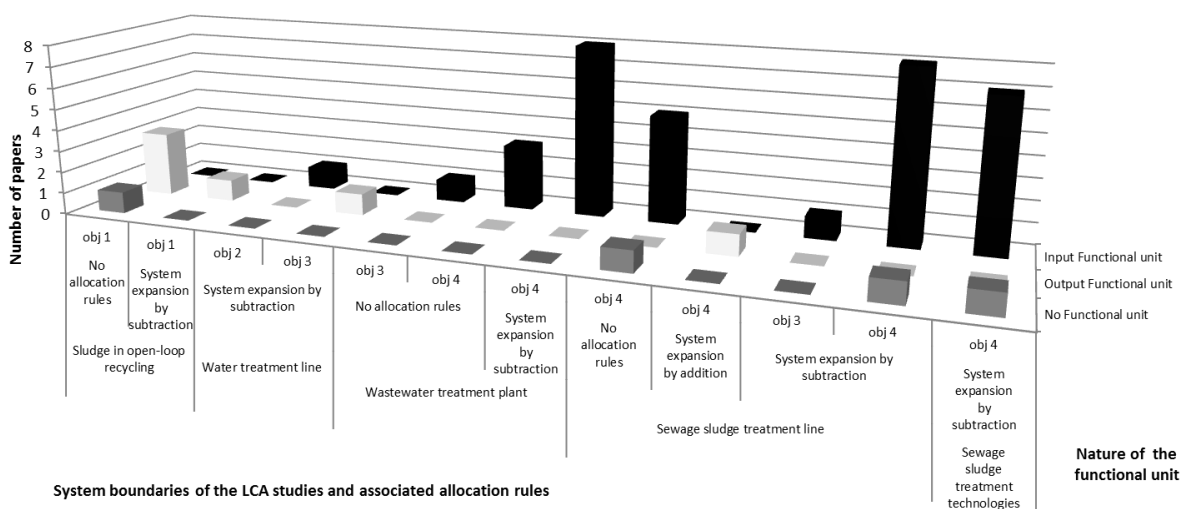


Figure 14. Repartition of the nature of the functional units according to the objectives of the LCA studies, the system boundaries and the associated allocation rule

Specificities of obj. 1 and 4, and systems boundaries i, iv, and v

Functions of LCAs using sludge in open-loop recycling (obj. 1, system boundaries i) are to manufacture an expected product and the associated functional unit is mainly an output FU (cf. Figure 14). For instance, Hong and Li (2011) and Valderrama et al. (2013) study the impact of sewage sludge as a raw material for cement production with a “waste-to-product” status. The functional unit is an output unit, i.e., produce 1 mass unit of cement, which is in agreement with the goal of a cement production plant. Nevertheless, sludge production is left out of the system and sludge enters in the system only once produced. On the contrary, Cartmell et al. (2005) and Hong et al., 2013) consider that sludge has a “waste” status as it is only used to be incinerated with no recovery potential. Both authors do not consider sludge production in their system boundaries. Finally, Linderholm et al. (2012) assess the environmental impacts of sludge-based

phosphate fertilizer production compared to other sources and use system expansion to subtract the nitrogen fraction from the phosphate fertilizer production. While some scenarios include the raw material production (case of mineral phosphate fertilizers scenario), the sludge production is not included in the sludge-based phosphate fertilizer production scenario.

LCAs of sewage sludge treatment line (obj. 4, system boundaries iv, 17 papers) and LCAs of sewage sludge treatment technologies (obj. 4, system boundaries v, 8 papers) mainly aim to treat the sewage sludge. In LCAs of sewage sludge treatment line, sewage sludge can only be considered as a “waste” entering a treatment line with no added value (Bravo and Ferrer, 2011; Hwang and Hanaki, 2000; Suh and Rousseaux, 2002). These authors consider a single function for the system and no allocation rules are applied. Other authors (14 papers) consider the potential added value of sludge through nutrient and energy recovery and sludge has a “waste-to-product” status. In the first case, sludge is considered as an organic fertilizer that can substitute mineral fertilizers and in the second one, energy is produced either from biogas recovery in case of sludge anaerobic digestion or energy recovery from sludge-to-energy processes or fuel production, displacing grid electricity, natural gas, or fossil fuel. The authors use system expansion to solve the induced multifunctionality.

In the same way, all authors who conduct LCAs of sewage sludge treatment technologies (8 papers) consider that sewage sludge has an added value potential through nutrient and energy recovery, and so a “waste-to-product” status as above. All these authors consider that sludge enters a specific treatment technology (sludge-to-energy, anaerobic digestion treatment systems) leading to the production of valuable products (biogas, electricity), and, according to the technology, to the production of a valuable byproduct (digestate). The authors studying different phosphorus recovery scenarios either consider sludge with a “product” status or with a “waste-to-product” status. However, authors use system expansion by subtraction to model the induced multifunctionality whatever if sludge is seen as “product” or “waste-to-product”.

Specificities of obj. 2, 3, and 4, and systems boundaries ii and iii

The review of LCAs focusing on water treatment (obj. 2 and 3, system boundaries ii) shows that Lundie et al. (2004) consider that the function of this system is to provide a water supply and wastewater collection services to domestic, industrial and commercial users, quantified by a volume of water (622 GL) per year to residential, industrials, commercial consumers at the 2021 horizon. The authors also considered three additional functions which are nutrient and energy recovery from sewage sludge and water reuse, and so, explicitly recognized sludge as a “waste-to-product” sludge. Lundin et al. (2000) consider that wastewater system has a double function which is the collection of the wastewater from the sewer systems and the reduction of nutrients, Biochemical Oxygen Demand, bacteria to acceptable levels and making nutrients available to agriculture. They characterized the function by the sewage sludge production for 1 PCE (per capita equivalent) per year explicitly recognizing that sludge has a “waste-to-product” status through nutrient recovery.

All LCAs applied to WWTP (obj. 3 and 4, system boundaries iii) quantify the WWTP system with an input functional unit. Several authors (Dennison et al., 1998; Kalbar et al., 2013; Li et

al., 2013; Renou et al., 2008) considered that WWTP has the single function of treating an amount of wastewater and releasing good quality water in the environment. Sludge is considered as “waste” sludge in these systems and no allocation rules are applied. Other authors (Foley et al., 2010; Gallego et al., 2008; Hospido et al., 2004; Hospido et al., 2008; Nakakubo et al., 2012; Pasqualino et al., 2009; Remy and Jekel, 2008; Tillman et al., 1998) consider that the main function of the WWTP is the treatment of wastewater in order to reach good water quality in the receiving media but that other functions coexist such as nutrient or energy recovery from sludge, treated by system expansion through subtraction. So, sludge can be considered as “waste-to-product” sludge and all environmental impacts are reported either to the volume or quantity of wastewater treated, or per person equivalent, a typical functional unit for the wastewater treatment. By doing such a system modelling, they affect all the environmental benefits of sludge recovery to the treated water.

To summarize, four different ways in LCAs system modelling are considered in the literature leading to two different considerations in the status of sludge.

Firstly, two cases lead to a “waste” status for sludge. In first case, sludge leaves the system as a waste and no allocation is applied. All the impacts are allocated to the main function (to treat the wastewater). In the second case, sludge enters an open-loop recycling system that does not recover this sludge (incineration system) and no allocation is applied.

Secondly, two cases lead to a “waste-to-product” or “product” status for sludge. In first case, sludge leaves the system as an output with an added value through energy, material, or nutrient recovery. Sludge additional functions are treated by system expansion implying that all the benefits of sludge recovery are affected to the main function (to treat the wastewater). “Product” sludge is treated through the same way than “waste-to-product” sludge.

In second case, “waste-to-product” sludge enters the system as an input (open-loop recycling systems) that replaces raw material, and, once transformed, leads to valuable products and byproducts (cement or fertilizer). In such system, no allocation is applied in case of cement production and system expansion is used in case of phosphate fertilizer production.

Analysis C – Crossed-analysis of system boundaries and allocation rules with the “zero burden assumption”

The corpus analysis highlights that sludge is characterized either by a “waste” status (10 papers), a “product” status (4 papers), and more often by a “waste-to-product” status (30 papers). However, whatever the status, sludge additional functions are subtracted and the generated avoided impacts are so affected to the main function (to treat the wastewater) in the case of wastewater treatment. Sludge is therefore considered with any environmental burden linked to its production, implying that the “zero burden assumption” principle is applied.

This third analysis is conducted to highlight coherence between the status given to sludge and its modelling through the use of the “zero burden assumption”.

The “zero burden assumption” was found in 30 papers, more specifically in LCAs applied to sewage sludge treatment line (17 papers), sewage sludge in open-loop recycling (5 papers), and sewage sludge treatment technologies (8 papers). In the following, an in-depth analysis is conducted on these three system boundaries. LCAs applied to water treatment (2 papers) and wastewater treatment plants (12 papers) do not explicitly use the “zero burden assumption”, and so, are not included in the third analysis.

A closer look at LCAs using sludge in open-loop recycling shows that the “zero burden assumption” is applied whatever authors give a “waste” or a “waste-to-product” status to the sludge. The authors consider that sludge is either a waste or a resource with no environmental burden implying that sludge production is not taken into account in both cases. However, if sludge can replace a raw material, it implies that it gets the same technical characteristics (either an interesting phosphorus content to produce phosphorus fertilizers, or a calcium oxide content to produce cement in clinker production) of the replaced raw material, and therefore, should be charged with an environmental burden due to its production.

As an example, Linderholm et al. (2012) study the potentiality of sludge-based phosphorus fertilizers compared to other phosphorus fertilizers. They show that for 1 kg of pure P produced, sludge-based fertilizers are less impacting than the other ones. As sludge production is not taken into consideration (sludge enters the system only with P content), a bias is introduced from the other scenarios that consider the production of P inputs. No comparison can be objectively made as boundaries of the system are therefore not equal.

In LCAs applied to sewage sludge treatment line (17 papers) and treatment technologies (8 papers), the main objectives is to compare several waste management or technological scenarios. In all of these papers, the cut-off approach is used. The system is simplified by excluding the water line or the water line and part of the sludge treatment line as they are identical whatever the studied scenarios. However, sludge enters the system without any environmental burden while sludge has either a “waste” status (identified by a single function and no allocation rules) or a “waste-to-product” status (identified by several function and system expansion). The way sludge is considered (“waste” or “waste-to-product”) impacts the LCA modelling and so the LCA results. This leads to a great variability in the way systems can be modelled and it is therefore not possible to compare “waste” sludge LCA results and “waste-to-product” LCA results or to quantify the variability obtained between them.

3.4. Discussion

The purpose of this section is to discuss if there is consistency between the three statuses identified for sludge and the concept of “zero burden assumption”, how can accuracy be given in LCA modelling according to sludge status, and the forthcoming challenges to LCA.

3.4.1. Consistency in LCA modelling between “waste”, “waste-to-product”, “product” sludge status, and the “zero burden assumption”

The zero burden assumption is valid only when sludge has a “waste” status, meaning it is not a valuable output of the system whatever the system boundaries of the system. If sludge is considered as a possible renewable resource, so with a “waste-to-product” status, or if treatment is oriented to give added-value to the sludge, and so leading to a “product” sludge, then the application of the zero burden assumption is questionable (cf. Table 1).

The “zero burden assumption” is therefore strongly questionable when a “waste-to-product” sludge is used as an input in an open-loop recycling LCA. Indeed, if sludge has the same required characteristics than valuable raw materials it could replace, then it should be charged with an environmental burden due to its production. Otherwise, it will always appear more interesting – but probably erroneously – to use sludge instead of traditional raw materials.

In other LCAs, our analysis has highlighted that what we consider as “product” sludge is modelled in papers as “waste-to-product” sludge, i.e., all the benefits are affected to the main function as avoided burden and not to sludge production. This can be an acceptable way of LCA modelling for “waste-to-product” sludge. Indeed, the sludge treatment is fatal leading to the creation of fatal cofunctions to the waste management system (to treat the sludge and recover nutrient or energy from sludge), or to the WWTP (to treat the wastewater and providing energy or nutrient through sludge recovery). The multifunctionality due to the appearance of these fatal cofunctions is solved by system expansion.

However, the way LCAs are currently modeled when sludge has a “product” status (in other words when the sludge treatment is oriented to get a valuable product (such as for phosphorus recovery)) is hardly questionable. Indeed, the treatment can be oriented “to obtain the maximum yield of phosphorus from residue” (Johansson et al., 2008) or technologies can be developed to “recover the phosphorus which concentrates in the ash and yields in a fertilizer” (Lederer and Rechberger, 2010). In such LCAs, “product” sludge is considered clearly with an added-value and as a product of the wastewater treatment plant in the same way clean water is. As a consequence, “product” sludge has to carry part of the environmental burden of its production.

As it is true that LCA system modelling can be done according to the objective of the study, it is also important to consider the sludge status as it greatly impacts the modelling and so the LCA results and interpretation.

Table 1. Consistency in LCAs system modelling by crossing “the zero burden assumption” principle and the sludge status according to the system boundaries and the allocation rules (Y = Yes, N = No)

System boundaries	Allocation rules	Sludge status			Presence of “zero burden assumption”	Is zero burden assumption questionable (Y) or not questionable (N)?
		“waste” sludge	“waste-to-product” sludge	“product” sludge		
Sludge in open-loop recycling	No allocation	2			Y	(N) Sludge is a waste with no added value
			2		Y	(N) Sludge is used as an energetic resource but do not lead to a valuable product
	System expansion by subtraction			1	Y	(Y) Sludge leads to a valuable product but its production is not considered leading to a bias in scenario modelling
Sewage sludge treatment line		4			Y	(N) Sludge is a waste with no added value
	No allocation		2		Y	(N) should be treated by system expansion by subtraction but no alternative function is used to subtract the “organic amendment” function of the sludge in papers
	System expansion by addition		1		Y	(N) Sludge is used as a resource and a cut-off approach is used
	System expansion by subtraction		10		Y	(N) Sludge is used as a resource and a cut-off approach is used
Sewage sludge treatment technologies			5		Y	(N) Sludge is used as a resource and a cut-off approach is used
	System expansion by subtraction			3	Y	(Y) Sludge leads to a valuable product but its production is not considered leading to a bias in scenario modelling
WWTP	No allocation	4			N	
	System expansion by subtraction		8		N	
Water treatment line	System expansion by subtraction		2		N	
Total		10	30	4	44	

3.4.2. *Giving accuracy in LCA modelling according to the sludge status*

Regarding sludge as a “product” and no longer as a “waste” or “waste-to-product” modifies its LCA modelling as its life-cycle needs to be taken into account. However this step is currently truncated because of the quasi systematic use of the “zero burden assumption”. If sludge gains an economical added value or if it is considered as “product” sludge, it should no longer be called nor considered as a “waste” or a “waste-to-product” sludge. It becomes a product with its own environmental burden: the historical “zero burden assumption” is no longer valid.

This point is in agreement with Oldfield and Holsen (2014) who state that the environmental impact of the waste itself carries a large part of the overall system generating the waste. In order to show impact reduction when waste reduction occurs, they proposed to include the environmental burden due to the waste generation. This statement implies that once a waste gains value or is seen as a “product”, part of the environmental burdens of the system should be allocated to it.

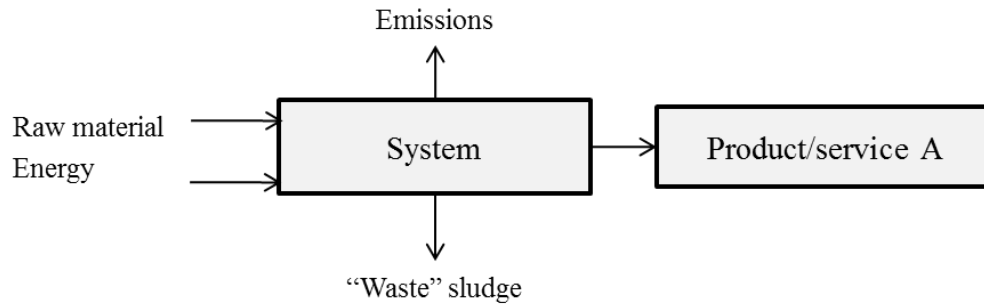
So, LCA modelling should be done depending on the status given to sludge.

If sludge is considered as “waste” sludge with no added value within the system, only a single function, to produce a good quality water in the media, is assessed and a single output, the treated water (Product/service A), generated. The sludge, as it has no added value, leaves the system as a waste. The waste has no environmental impacts as all the impacts are allocated to the single product (cf. Figure 15a). So far, as “waste” sludge is a fatal waste, its production is not charged with an environmental impact and it cannot be reused in another system.

If sludge is considered as “waste-to-product” sludge, the system (either the WWTP or the sludge management, system boundaries iii, iv or v, cf. Figure 12) has fatal cofunctions, the wastewater treatment and the nutrient, energy or material recovery (cf. Figure 15b). Energy recovery is mainly used inside the WWTP. The heat and electricity issued from sludge recovery (biogas cogeneration for example) is reused to supply the WWTP with heat and electricity, displacing those from the national grid. In such cases, the avoided burdens generated by the sludge energy recovery reduce the environmental impacts of the treated water (Product/service A). However, nutrient and material recovery implies that sludge is reused in another system. In such cases, the sludge leaves the WWTP to be reused either in agricultural systems or manufactured ones while the avoided burden generated by nutrient or material recovery reduces the environmental impacts of the treated water. So, from the moment nutrient and material recovery are modeled in LCA studies, sludge should be charged with an environmental burden.

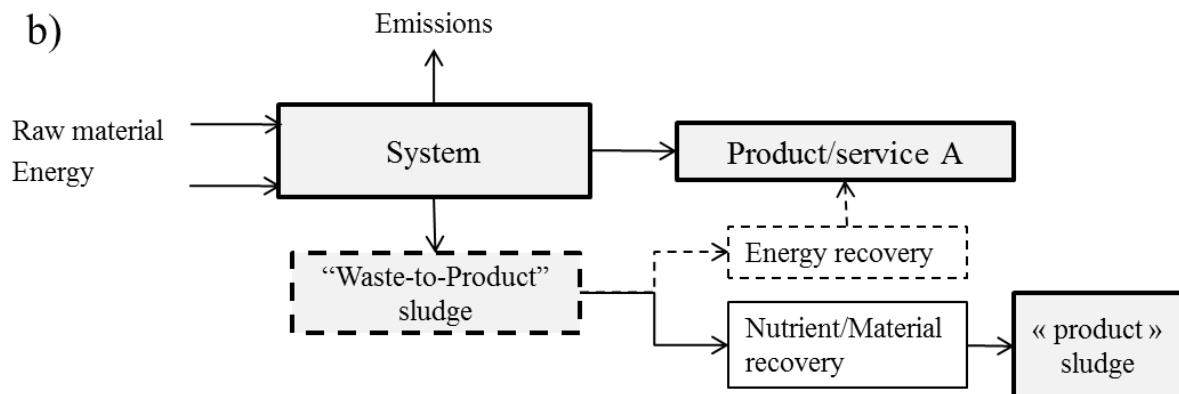
If sludge is considered as “product” sludge, sludge is considered as an output of the system with an added value as its production was oriented to reach specific characteristics to get a valuable product. Once sludge becomes a full product of the system as treated water is, each product should receive part of the environmental impact of the system (cf. Figure 15c). Hence, the environmental impacts of the system should be allocated to both products.

a)



LCA modelling for « waste » sludge : sludge is not charged with an environmental burden, all the environmental impact of the system is allocated to the product or service A. The sludge is not reused in another system.

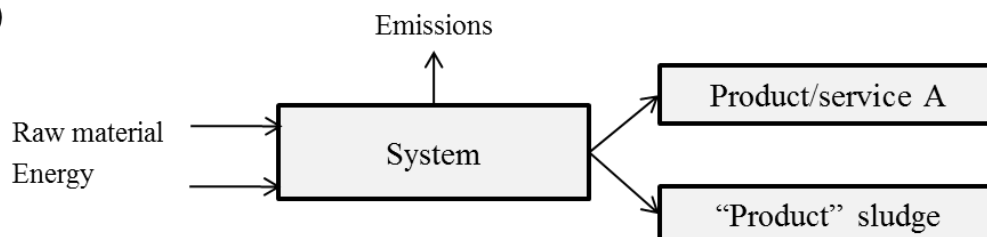
b)



LCA modelling for « waste-to-product » sludge :

- energy recovery : an avoided environmental burden is affected to the product or service A.
- nutrient /material recovery : sludge is charged with an environmental burden. The sludge can be reused in another system.

c)



LCA modelling for « product » sludge : sludge is charged with an environmental burden, all the environmental impact of the system are allocated between the product or service A and the sludge. The sludge can be reused in another system.

Figure 15. LCA modelling according to the sludge status: “ waste” sludge (a) and “waste-to-product” (b) or “product” sludge (c)

3.4.3. Next challenge for LCA modelling and research agenda

The forthcoming great challenge introduced by the paradigm shift by considering sewage sludge no longer as a waste but as a valuable product is a dual challenge.

First challenge is to define when “waste-to-product” sludge becomes “product” sludge. As new technologies are more and more developed to create added-value to sludge, the arising question is to define which technologies are creating enough added-value to get “product” sludge.

Second challenge is the allocation of an environmental burden to the sludge produced. Indeed, both treated water and “product” sludge or “waste-to-product” sludge with nutrient and material recovery are valuable outputs of the WWTP and an environmental burden must be applied to each of them.

With such an environmental burden from LCA point of view, the sludge will definitely be considered as a coproduct of the WWTP leading to a multifunctional system. As sludge production is strongly associated to water treatment efficiency, solving multifunctionality with subdivision of the multifunctional processes in monofunctional processes cannot be achieved. System expansion by subtraction of the function “to treat the wastewater” by an alternative function to preserve the function “to produce a valuable sludge-based product” can barely be reachable. Indeed, to our knowledge, no alternative function to the treatment of the wastewater without sludge production can be found. The sludge production process is indivisible to the treated water. The only way to comply with multifunctionality is to allocate by partitioning the environmental inputs and outputs between the sludge production and the water treatment. Allocate an environmental burden to the sludge is a challenging question as it needs to define allocation factors between the sludge production and the treated water for each step of the water treatment that generates sludge. Allocation factors are commonly based on a physical or economic approach. In the case of sludge production, traditional allocation factors should be hardly applicable as treated water is usually expressed in terms of volume (treated cubic meter or liter) and characterized by chemistry measurements (Chemical or Biochemical Oxygen Demand), while sludge is usually expressed in terms of mass and dryness (kg or ton produced on a raw or dry basis). As treated water has no energy content, applying an allocation factor on an energy basis is not possible. Finally, an economic allocation factor could be a possible way to allocate impacts between the treated water and the sludge produced only if a market value can be assessed for each product.

To conclude, the next research challenge is to answer the question “How to get allocation factors between the sludge production and the water treatment to affect an environmental burden to the sludge?” This constitutes an important research agenda as it implies to find new types of allocation factors as the traditional ones cannot be used.

3.5. Conclusion

As the sludge status is ambiguous and especially in the perspective of the paradigm shift by the end-of-waste European regulation, we have proposed the definition of “waste”, “waste-to-

product” and “product” status for sludge. This distinction questions the environmental assessment of wastewater systems using Life Cycle Assessment.

A critical review of 44 peer-reviewed papers focused on LCA applied to the water treatment and sewage sludge management field has been conducted to highlight the consequences on LCA system modelling addressed by the paradigm shift. Main conclusions show that according to the functions, the functional units, the allocation rules, and the boundaries of the LCA studies, sewage sludge are either considered as “waste” sludge or “waste-to-product” sludge, but very few as “product” sludge. More precisely, 70 percent of the reviewed papers already consider a “waste-to-product” status for sludge prior to a “waste” sludge status, implying that a paradigm shift is occurring but not completely achieved as sludge is more considered as a valuable resource than as a full added-value product of the WWTP.

Sludge is often considered as free of environmental burden in the studied LCAs, which is compliant for “waste” sludge and “waste-to-product” sludge with energy recovery but creates distortion in comparative LCA as system boundaries can become unequal between scenarios for “product” sludge and “waste-to-product” sludge with nutrient or material recovery.

A methodological solution to overpass this problem is to allocate an environmental burden to the sludge by using specific allocation factors between the sludge production and the water treatment only for sludge which presents an added value. This is a challenging research agenda as new types of allocation factors as well as partitioning methodology need to be developed to this joint production system.

3.6. References

Bravo, L., Ferrer, I., 2011. Life Cycle Assessment of an intensive sewage treatment plant in Barcelona (Spain) with focus on energy aspects. *Water Science & Technology* 64, 440.

Brown, S., Beecher, N., Carpenter, A., 2010. Calculator tool for determining greenhouse gas emissions for biosolids processing and end use. *Environmental Science and Technology* 44, 9509-9515.

Cao, Y.C., Pawlowski, A., 2013. Life cycle assessment of two emerging sewage sludge-to-energy systems: Evaluating energy and greenhouse gas emissions implications. *Bioresour. Technol.* 127, 81-91.

Carballa, M., Duran, C., Hospido, A., 2011. Should We Pretreat Solid Waste Prior to Anaerobic Digestion? An Assessment of Its Environmental Cost. *Environmental Science & Technology* 45, 10306-10314.

Cartmell, E., Gostelow, P., Riddell-Black, D., Simms, N., Oakey, J., Morris, J., Jeffrey, P., Howsam, P., Pollard, S.J., 2005. Biosolids A Fuel or a Waste? An Integrated Appraisal of Five Co-combustion Scenarios with Policy Analysis. *Environmental Science & Technology* 40, 649-658.

CEC, 1986. Council directive of 12 June 1986 on the protection of the environment, and in particular of the soil, when sewage sludge is used in agriculture (86/278/EEC). Official Journal of the European Communities.

CEC, 1991. Council directive of 21 May 1991 concerning urban waste water treatment (91/271/EEC). Official Journal of the European Communities.

CEC, 2000. Council directive of 23 October 2000 establishing a framework for community action in the field of water policy (2000/60/EC). Official Journal of the European Communities.

CEC, 2008. Council directive of 19 November 2008 on waste and repealing certain Directives (2008/98/EC). Official Journal of the European Communities.

Cleary, J., 2010. The incorporation of waste prevention activities into life cycle assessments of municipal solid waste management systems: methodological issues. *International Journal of Life Cycle Assessment* 15, 579-589.

Corominas, L., Foley, J., Guest, J.S., Hospido, A., Larsen, H.F., Morera, S., Shaw, A., 2013. Life cycle assessment applied to wastewater treatment: State of the art. *Water Research* 47, 5480-5492.

Curran, M.A., 2007. Co-product and input allocation approaches for creating life-cycle inventory data: a literature review. *International Journal of Life Cycle Assessment* 1/07 13, 65-78.

Dennison, F.J., Azapagic, A., Clift, R., Colbourne, J.S., 1998. Assessing management options for wastewater treatment works in the context of life cycle assessment. *Water Sci. Technol.* 38, 23-30.

Earles, J.M., Halog, A., 2011. Consequential life cycle assessment: a review. *International Journal of Life Cycle Assessment* 16, 445-453.

Ekvall, T., Assefa, G., Björklund, A., Eriksson, O., Finnveden, G., 2007. What life-cycle assessment does and does not do in assessments of waste management. *Waste Management* 27, 989-996.

Ekvall, T., Azapagic, A., Finnveden, G., Rydberg, T., Weidema, B., Zamagni, A., 2016. Attributional and consequential LCA in the ILCD handbook. *International Journal of Life Cycle Assessment* 21, 293-296.

Ekvall, T., Finnveden, G., 2001. Allocation in ISO 14041 - a critical review. *Journal of Cleaner Production* 9, 197-208.

European-Commission - Joint Research Centre - Institute for Environment and Sustainability, 2010. International Reference Life Cycle Data System (ILCD) Handbook: General guide for Life Cycle Assessment - Detailed guidance. First edition March 2010. EUR 24708 EN. Luxembourg. Publications Office of the European Union, p. 417.

Finnveden, G., 1999. Methodological aspects of life cycle assessment of integrated solid waste management systems. *Resources, Conservation and Recycling* 26, 173-187.

- Finnveden, G., Hauschild, M.Z., Ekvall, T., Guinée, J., Heijungs, R., Hellweg, S., Koehler, A., Pennington, D., Suh, S., 2009. Recent developments in Life Cycle Assessment. *Journal of Environmental Management* 91, 1-21.
- Foley, J., Haas, D.d., Hartley, K., Lant, P., 2010. Comprehensive life cycle inventories of alternative wastewater treatment systems. *Water Research (Oxford)* 44, 1654-1666.
- Gallego, A., Hospido, A., Moreira, M.T., Feijoo, G., 2008. Environmental performance of wastewater treatment plants for small populations. *Resources, Conservation and Recycling* 52, 931-940.
- Heijungs, R., Guinee, J.B., 2007. Allocation and 'what-if' scenarios in life cycle assessment of waste management systems. *Waste Management* 27, 997-1005.
- Heijungs, R., Guinée, J.B., Huppes, G., Lankreijer, R.M., Udo de Haes, H.A., Wegener Sleeswijk, A., Ansems, A.M.M., Eggels, P.G., Duin, R.v., Goede, H.P.d., 1992. Environmental life cycle assessment of products: guide and backgrounds (Part 1), Leiden, p. 97 pages. Available at: <https://openaccess.leidenuniv.nl/handle/1887/8061>
- Holden, N.M., Is "Food Waste" waste? Available at : [http://www.ucd.ie/t4cms/Is food waste waste.pdf](http://www.ucd.ie/t4cms/Is%20food%20waste.pdf)
- Hong, J., Li, X., 2011. Environmental assessment of sewage sludge as secondary raw material in cement production – A case study in China. *Waste Management* 31, 1364-1371.
- Hong, J.L., Hong, J.M., Otaki, M., Jolliet, O., 2009. Environmental and economic life cycle assessment for sewage sludge treatment processes in Japan. *Waste Management* 29, 696-703.
- Hong, J.M., Xu, C.Q., Hong, J.L., Tan, X.F., Chen, W., 2013. Life cycle assessment of sewage sludge co-incineration in a coal-based power station. *Waste Management* 33, 1843-1852.
- Hospido, A., Carballa, M., Moreira, M., Omil, F., Lema, J.M., Feijoo, G., 2010. Environmental assessment of anaerobically digested sludge reuse in agriculture: Potential impacts of emerging micropollutants. *Water Research* 44, 3225-3233.
- Hospido, A., Moreira, M., Feijoo, G., 2008. A comparison of municipal wastewater treatment plants for big centres of population in Galicia (Spain). *International Journal of Life Cycle Assessment* 13, 57-64.
- Hospido, A., Moreira, M.T., Fernández-Couto, M., Feijoo, G., 2004. Environmental performance of a municipal wastewater treatment plant. *International Journal of Life Cycle Assessment* 9, 261-271.
- Hospido, A., Moreira, M.T., Martin, M., Rigola, M., Feijoo, G., 2005. Environmental evaluation of different treatment processes for sludge from urban wastewater treatments: Anaerobic digestion versus thermal processes. *International Journal of Life Cycle Assessment* 10, 336-345.
- Houillon, G., Jolliet, O., 2005. Life cycle assessment of processes for the treatment of wastewater urban sludge: energy and global warming analysis. *Journal of Cleaner Production* 13, 287-299.

Houot, S., Pons, M.N., Pradel, M., Caillaud, M.A., Savini, I., Tibi, A., 2014. Valorisation des matières fertilisantes d'origine résiduaire sur les sols à usage agricole ou forestier. Impacts agronomiques, environnementaux, socio-économiques, Expertise scientifique collective, Inra-CNRS-Irstea (France).

Hwang, Y., Hanaki, K., 2000. The generation of CO₂ in sewage sludge treatment systems: life cycle assessment. *Water Sci. Technol.* 41, 107-113.

ISO 14040, 2006. Environmental management - Life cycle assessment - Principles and framework. International Standard Organization, p. 23.

ISO 14044, 2006. Environmental management - Life cycle assessment - Requirements and guidelines. International Standard Organization, p. 49.

Johansson, K., Perzon, M., Froling, M., Mossakowska, A., Svanstrom, M., 2008. Sewage sludge handling with phosphorus utilization: life cycle assessment of four alternatives. *Journal of Cleaner Production* 16, 135-151.

Kalbar, P.P., Karmakar, S., Asolekar, S.R., 2013. Assessment of wastewater treatment technologies: life cycle approach. *Water Environ. J.* 27, 261-268.

Lea, R.G., Amezaga, M., R. Loup, B., Mandon-Pépin, B., Stefansdottir, A., Filis, P., Kyle, C., Zhang, Z., Allen, C., Purdie, L., Jouneau, L., Cotinot, C., Rhind, S., M., Sinclair, K.D., Fowler, P.A., 2016. The fetal ovary exhibits temporal sensitivity to a 'real-life' mixture of environmental chemicals. *Nature Scientific Reports* 6, Article number: 22279. Doi:10.1038/srep22279. Available at : <http://www.nature.com/articles/srep22279>

Lederer, J., Rechberger, H., 2010. Comparative goal-oriented assessment of conventional and alternative sewage sludge treatment options. *Waste Management* 30, 1043-1056.

Legroux, J.P., Truchot, C., 2009. Bilan de dix années d'application de la réglementation relative à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées. Rapport n° 1771 CGAAER, p. 33. Available at : <http://www.sede-environnement.com/sede-water/ressources/documents/1/17111,Rapport2010CgaaerBoues-1.pdf>

Li, X.Y., Takaoka, M., Zhu, F.F., Wang, J.W., Oshita, K., Mizuno, T., 2013. Environmental and economic assessment of municipal sewage sludge management - a case study in Beijing, China. *Water Sci. Technol.* 67, 1465-1473.

Linderholm, K., Tillman, A.M., Mattsson, J.E., 2012. Life cycle assessment of phosphorus alternatives for Swedish agriculture. *Resources, Conservation and Recycling* 66, 27-39.

Liu, B.B., Wei, Q., Zhang, B., Bi, J., 2013. Life cycle GHG emissions of sewage sludge treatment and disposal options in Tai Lake Watershed, China. *Sci. Total Environ.* 447, 361-369.

Lundie, S., Ciroth, A., Huppes, G., 2007. UNEP/SETAC Life Cycle Initiative, Life Cycle Inventory (LCI), Task Force 3, Methodological Consistency: Inventory methods in LCA: towards consistency and improvement. Final Report, June 2007, p.152 pages.

Lundie, S., Peters, G.M., Beavis, P.C., 2004. Life Cycle Assessment for Sustainable Metropolitan Water Systems Planning. *Environmental Science & Technology* 38, 3465-3473.

- Lundin, M., Bengtsson, M., Molander, S., 2000. Life cycle assessment of wastewater systems: Influence of system boundaries and scale on calculated environmental loads. *Environmental Science and Technology* 34, 180-186.
- Lundin, M., Olofsson, M., Pettersson, G.J., Zetterlund, H., 2004. Environmental and economic assessment of sewage sludge handling options. *Resources, Conservation and Recycling* 41, 255-278.
- Manara, P., Zabaniotou, A., 2012. Towards sewage sludge based biofuels via thermochemical conversion - A review. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 16, 2566-2582.
- McDouglas, F., White, P., Franke, M., Hindle, P., 2001. *Integrated solid waste management : a life cycle inventory*, 2nd edition ed. Blackwell Science Ltd, Oxford.
- MEEDTL, 2009. Elements de contexte et reglementation francaise relatifs a la valorisation des boues issues du traitement des eaux usees, p. 15. Available at : http://www.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/DGALN_-_090504_lpdi_boue_synthese_internet_francais_v1.pdf
- Khunjar, W.O., Nguyen, V., Tait, S., Batstone, D.J., 2015. Technologies to Recover Nutrients from Waste Streams: A Critical Review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 45, 385-427.
- Mills, N., Pearce, P., Farrow, J., Thorpe, R.B., Kirkby, N.F., 2014. Environmental & economic life cycle assessment of current & future sewage sludge to energy technologies. *Waste Management* 34, 185-195.
- Murray, A., Horvath, A., Nelson, K.L., 2008. Hybrid life-cycle environmental and cost inventory of sewage sludge treatment and end-use scenarios: A case study from China. *Environmental science & technology* 42, 3163-3169.
- Nakakubo, T., Tokai, A., Ohno, K., 2012. Comparative assessment of technological systems for recycling sludge and food waste aimed at greenhouse gas emissions reduction and phosphorus recovery. *Journal of Cleaner Production* 32, 157-172.
- Oldfield, T., Holden, N.M., 2014. An evaluation of upstream assumptions in food-waste life cycle assessments, in: Huizenga, R.S.a.D. (Ed.), 9th International Conference on Life Cycle Assessment in the Agri-Food Sector. American Center for Life Cycle Assessment, San Francisco, California, USA.
- Pasqualino, J.C., Meneses, M., Abella, M., Castells, F., 2009. LCA as a decision support tool for the environmental improvement of the operation of a municipal wastewater treatment plant. *Environmental Science and Technology* 43, 3300-3307.
- Peters, G.M., Lundie, S., 2001. Life-cycle assessment of biosolids processing options. *J. Ind. Ecol.* 5, 103-121.
- Peters, G.M., Rowley, H.V., 2009. Environmental Comparison of Biosolids Management Systems Using Life Cycle Assessment. *Environmental science & technology* 43, 2674-2679.
- Reap, J., Roman, F., Duncan, S., Bras, B., 2008. A survey of unresolved problems in life cycle assessment. Part 1: goal and scope and inventory analysis. *Int. J. Life Cycle Assess.* 13, 290-300.

- Remy, C., Jekel, M., 2008. Sustainable wastewater management: life cycle assessment of conventional and source-separating urban sanitation systems. *Water Science & Technology* 58, 1555-1562.
- Remy, C., Lesjean, B., Waschnewski, J., 2013. Identifying energy and carbon footprint optimization potentials of a sludge treatment line with Life Cycle Assessment. *Water Sci. Technol.* 67, 63-73.
- Renou, S., Thomas, J.S., Aoustin, E., Pons, M.N., 2008. Influence of impact assessment methods in wastewater treatment LCA. *Journal of Cleaner Production* 16, 1098-1105.
- Righi, S., Oliviero, L., Pedrini, M., Buscaroli, A., Della Casa, C., 2013. Life Cycle Assessment of management systems for sewage sludge and food waste: centralized and decentralized approaches. *Journal of Cleaner Production* 44, 8-17.
- Rulkens, W., 2008. Sewage sludge as a biomass resource for the production of energy: Overview and assessment of the various options. *Energy & Fuels* 22, 9-15.
- Sablayrolles, C., Gabrielle, B., Montrejaud-Vignoles, M., 2010. Life Cycle Assessment of Biosolids Land Application and Evaluation of the Factors Impacting Human Toxicity through Plant Uptake. *J. Ind. Ecol.* 14, 231-241.
- Sandén, B. A., Karlström, M., 2007. Positive and negative feedback in consequential life-cycle assessment. *Journal of Cleaner Production* 15, 1469-1481.
- Saveyn, H., Eder, P., 2014. End-of-waste criteria for biodegradable waste subjected to biological treatment (compost & digestate): Technical proposals, JRC Scientific and Policy Reports. European Commission, p. 312.
- Spinosa, L., Ayol, A., Baudez, J.-C., Canziani, R., Jenicek, P., Leonard, A., Rulkens, W., Xu, G., van Dijk, L., 2011. Sustainable and Innovative Solutions for Sewage Sludge Management. *Water* 3, 702-717.
- Schrijvers, D. L., Loubet, P., Sonnemann, G., 2016. Developing a systematic framework for consistent allocation in LCA. *International journal of LCA*, First online: 10 March 2016, DOI 10.1007/s11367-016-1063-3, p 1-18.
- Suh, Y.J., Rousseaux, P., 2002. An LCA of alternative wastewater sludge treatment scenarios. *Resour. Conserv. Recycl.* 35, 191-200.
- Svanstrom, M., Froling, M., Modell, M., Peters, W.A., Tester, J., 2004. Environmental assessment of supercritical water oxidation of sewage sludge. *Resour. Conserv. Recycl.* 41, 321-338.
- Tarantini, M., Butol, P., Marorino, L., 2007. An environmental LCA of alternative scenarios of urban sewage sludge treatment and disposal. *Therm. Sci.* 11, 153-164.
- Tillman, A.M., Svingby, M., Lundström, H., 1998. Life cycle assessment of municipal waste water systems. *International Journal of Life Cycle Assessment* 3, 145-157.
- Uggetti, E., Ferrer, I., Molist, J., García, J., 2011. Technical, economic and environmental assessment of sludge treatment wetlands. *Water Research* 45, 573-582.

- Valderrama, C., Granados, R., Cortina, J.L., Gasol, C.M., Guillem, M., Josa, A., 2013. Comparative LCA of sewage sludge valorisation as both fuel and raw material substitute in clinker production. *Journal of Cleaner Production* 51, 205-213.
- von Münch, E., 2001. Making a business from struvite crystallisation for wastewater treatment, 2nd International Conference on the recovery of phosphorus from sewage and animal wastes, Golden Tulip Leuwehorst Conference center hotel, Noordwijkerhout, The Netherlands.
- Weidema, B., 2001. Avoiding co-product allocation in life-cycle assessment. *J. Ind. Ecol.* 4, 11-33.
- Xu, C., Chen, W., Hong, J., 2014. Life-cycle environmental and economic assessment of sewage sludge treatment in China. *Journal of Cleaner Production* 67, 79-87.
- Yoshida, H., Christensen, T.H., Scheutz, C., 2013. Life cycle assessment of sewage sludge management: A review. *Waste Manage. Res.* 31, 1083-1101.
- Zamagni, A., Guinée, J.B., Heijungs, R., Masoni, P., Raggi, A., 2012. Lights and shadows in consequential LCA. *International Journal of Life Cycle Assessment*, 17 (7), 904–918.

Appendix A. Objectives, system boundaries, functions and functional units of the reviewed papers

Reference	Obj	System boundaries	Functions	Functional unit	Allocation rules
(Cartmell et al., 2005)	1	Sludge in open-loop recycling	Not well defined: waste or fuel?	Not mentioned but results are given for 1 dry matter ton of sludge	No allocation rules
(Hong and Li, 2011)	1	Sludge in open-loop recycling	Not mentioned	1 ton of Portland cement	No allocation rules
(Hong et al., 2013)	1	Sludge in open-loop recycling	Not mentioned	1 GJ of net energy for electricity and steam production in a sludge co-incineration plant	No allocation rules
(Linderholm et al., 2012)	1	Sludge in open-loop recycling	Not mentioned	11 kg of pure P (= 25.5 kg P ₂ O ₅) spread on agricultural soils	Expansion by subtraction
(Valderrama et al., 2013)	1	Sludge in open-loop recycling	Not mentioned	Production of 1 kg of cement	No allocation rules
(Lundie et al., 2004)	2	Water treatment line	Main function : providing a water supply and wastewater collection services to domestic, industrial, commercial users, Additional functions: Nutrient recovery and energy recovery from sewage sludge, water reuse	Providing 622 GL of water per year to residential, industrials, commercial consumers at the 2021 horizon	Expansion by subtraction
(Brown et al., 2010)	3	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 dry matter Mg (ton) of produced sludge	Expansion by subtraction
(Lundin et al., 2000)	3	Water treatment line	Collecting the wastewater from the sewer systems and reducing nutrients, BOD, bacteria to acceptable levels; making nutrients available to agriculture	Sewage sludge treatment of one PCE per year	Expansion by subtraction
(Renou et al., 2008)	3	WWTP	Not mentioned	Volume of wastewater treated in a WWTP in 1 year	No allocation rules
(Bravo and Ferrer, 2011)	4	Sewage sludge treatment line	To treat the sewage sludge	100 m ³ of thickened sludge	No allocation rules
(Cao and Pawlowski, 2013)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	Treatment of 500 m ³ of raw liquid sludge per day	Expansion by subtraction
(Carballa et al., 2011)	4	Sewage sludge treatment technologies	Main function : produce some biogas, Alternative function : fertilizing with the digestate	Management of 10 l of primary and biological sludges (70 :30) collected in 2 different thickeners	Expansion by subtraction
(Dennison et al., 1998)	4	WWTP	Not mentioned	9.8 E ⁸ kg of raw wastewater treated with subsequent sludge disposal	No allocation rules
(Foley et al., 2010)	4	WWTP	Not mentioned	Treatment of 10 ml for waste water per day during 20 years and the remaining sludge in accordance to the good agricultural spreading practices	Expansion by subtraction
(Gallego et al., 2008)	4	WWTP	Wastewater treatment to reach a good water quality before releasing treated water in the receiving media	1 PE	Expansion by subtraction
(Hong et al., 2009)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 ton of dry solids	Expansion by subtraction

Reference	Obj	System boundaries	Functions	Functional unit	Allocation rules
(Hospido et al., 2010)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	Management of 10 l of primary and biological sludges (70 :30) collected in 2 different thickeners	Expansion by subtraction
(Hospido et al., 2004)	4	WWTP	Not mentioned	Amount of water treated (m ³) by a WWTP per day in a certain period of time with the subsequent disposal route	Expansion by subtraction
(Hospido et al., 2005)	4	Sewage sludge treatment line	Manage a waste	1 dry matter ton of mixed sludge	Expansion by subtraction
(Hospido et al., 2008)	4	WWTP	The treatment of wastewater	1 PE	Expansion by subtraction
(Houillon and Jolliet, 2005)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 dry matter ton of disposed sludge	Expansion by subtraction
(Hwang and Hanaki, 2000)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	Not mentioned but results are given for 1 dry matter ton of sludge	No allocation rules
(Johansson et al., 2008)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	1 dry matter ton of digested sludge (27% dryness)	Expansion by subtraction
(Kalbar et al., 2013)	4	WWTP	Not mentioned	1 PE per year	No allocation rules
(Lederer and Rechberger, 2010)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	1 ton of raw sludge	Expansion by subtraction
(Li et al., 2013)	4	WWTP	Not mentioned	Treatment of a certain amount (m ³) of wastewater per day during the entire life cycle of the WWTP (years)	No allocation rules
(Liu et al., 2013)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 dry matter ton of sludge	Expansion by subtraction
(Lundin et al., 2004)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	Manage 1 dry matter ton of sludge	Expansion by subtraction
(Mills et al., 2014)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	1 dry matter ton of sludge	Expansion by subtraction
(Murray et al., 2008)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	Not mentioned but results given for 707 000 m ³ /day of wastewater and 84 dry matter ton/days of sludge	Expansion by subtraction
(Nakakubo et al., 2012)	4	WWTP	Not mentioned	Process ability to provide service to dispose the wastes (i.e. sewage sludge and biowaste) for 100 000 inhabitants	Expansion by subtraction
(Pasqualino et al., 2009)	4	WWTP	Treatment of wastewater	1 m ³ of residual wastewater entering the WWTP	Expansion by subtraction
(Peters and Lundie, 2001)	4	Sewage sludge treatment line	To treat the sewage sludge	Treatment of the sewage sludge produced by three of the 3 biggest WWTP of Sydney	Expansion by subtraction
(Peters and Rowley, 2009)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	Manage sludge produced in 1 day by 40 000 PE (= 2 dry matter ton per day)	Expansion by subtraction
(Remy and Jekel, 2008)	4	WWTP	Main function : disposal of wastewater, Secondary functions : provision of organic fertilizer from urine and faeces and supply of electrical energy from biogas in case of faeces digestion	Disposal of biowaste and wastewater per PE per year	Expansion by subtraction
Reference	Obj	System boundaries	Functions	Functional unit	Allocation rules

(Remy et al., 2013)	4	Sewage sludge treatment line	One primary function: the disposal of sewage sludge from sedimentation (primary sludge) and from the activated sludge process (excess sludge). Secondary functions: electricity and heat supply, P fertilizer supply, resource fuel	Amount of sludge produced for 1 PE per year 1 dry matter ton of disposed sludge for disposal scenarios comparison	Expansion by subtraction
(Righi et al., 2013)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	Management of 3000 tons of biodegradable wastes (1000 t FFHW and 2000 t sludge)	Expansion by subtraction
(Sablayrolles et al., 2010)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	Agricultural land spreading of 1 dry matter ton of dewatered sludge with the same agronomic potential	Expansion by addition
(Suh and Rousseaux, 2002)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 dry matter ton of mixed sludge	No allocation rules
(Svanstrom et al., 2004)	4	Sewage sludge treatment technologies	Not mentioned	Not mentioned by result are given for 1000 kg of wet sludge	Expansion by subtraction
(Tarantini et al., 2007)	4	Sewage sludge treatment line	The disposal of sewage sludge	Disposal of 20 000 kg of sludge with the following characteristics : 1000 kg of dry matter and 700 kg of volatile matter	No allocation rules
(Tillman et al., 1998)	4	WWTP	To treat the wastewater	The wastewater treatment of one PE per year	Expansion by subtraction
(Uggetti et al., 2011)	4	Sewage sludge treatment line	Manage the sludge produced by a biological water treatment unit	1 ton of raw sludge	No allocation rules
(Xu et al., 2014)	4	Sewage sludge treatment line	Not mentioned	1 dry matter ton of sludge	No allocation rules

4. Identification des besoins de recherche et positionnement de la question de recherche développée dans la thèse

Les boues d'épuration issues du traitement des eaux usées résiduelles font actuellement l'objet d'une valorisation, essentiellement agronomique sous forme de matières fertilisantes d'origine résiduelle. Elles font également l'objet de recherches poussées dans l'optique de les transformer pour obtenir des produits à forte valeur ajoutée (bioplastiques, engrais minéraux, céramiques, biométhane, etc.).

Les conclusions de la partie précédente ont permis de mettre en évidence qu'un changement de paradigme était en cours concernant le statut de la boue et les conséquences d'un tel changement de paradigme sur la modélisation des systèmes d'assainissement évalués par la méthode d'Analyse du Cycle de Vie ont été identifiées.

Les boues sont souvent considérées comme exemptes de charge environnementale dans les ACV étudiées, ce qui est conforme lorsque les boues ont le statut « déchet » ou sont considérées comme ressources énergétiques. Or, dans la majorité des ACV étudiées, la boue est considérée comme une ressource valorisable se rapprochant d'un produit à valeur ajoutée bien que non encore considérée à part entière comme tel.

Ce changement de paradigme remet en cause l'exonération de charge environnementale dont fait l'objet la boue et fait peser des doutes sur les véritables performances environnementales des produits boue-sourcés.

En effet, si les traitements sont suffisamment poussés pour obtenir un produit à valeur ajoutée, l'exemption de charge environnementale liée à leur production peut créer des distorsions dans certaines ACV comparatives entre des boues ayant un statut de produit et les produits manufacturés qu'elles pourraient remplacer (tels que des fertilisants minéraux par exemple). Ces distorsions sont principalement liées aux limites du système qui peuvent devenir inégales entre les cycles de vie des produits évalués et à l'avantage des boues (cf. Figure 16).

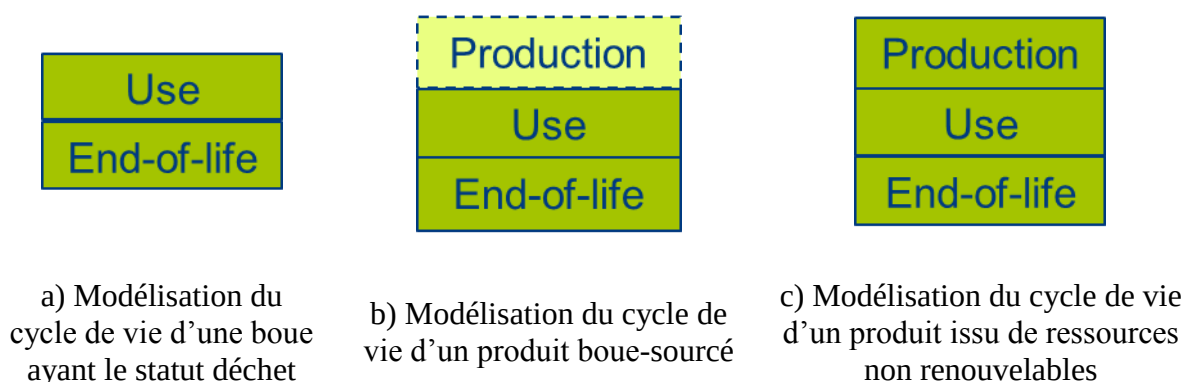


Figure 16. Différences des frontières du système en ACV entre boue « déchet » (a), boue « produit » (b) et produit issu de ressources non renouvelables (c)

Aussi, afin de pouvoir comparer sans biais les impacts environnementaux de produits boue-sourcés et de produits issus de ressources non-renouvelables, il convient d'allouer une charge environnementale à la boue notamment lorsque la production de celle-ci est sciemment contrôlée en termes de qualité et quantité en vue de sa valorisation.

La boue, en acquérant le statut de produit, devient un coproduit à part entière du traitement de l'eau usée au même titre que l'eau traitée (Amec Foster Wheeler, 2016 ; Sanz and Gwlik, 2014). La station de traitement des eaux usées devient alors une « unité » de production de boues et d'eau traitée.

Dans ces conditions, le traitement des eaux usées se modélise comme un système de production indivisible, défini ici comme un système générant de manière combinée plusieurs produits et indivisible au sens où les procédés le composant ne peuvent être subdivisés que virtuellement. En effet, dans un système de production combinée indivisible, les produits générés ne peuvent pas être individualisés au cours de leur processus de production, l'un étant toujours produit conjointement avec l'autre. Les produits supportent les mêmes coûts jusqu'à ce qu'ils atteignent un point de séparation.

Le principal besoin en recherche identifié est de savoir comment évaluer les impacts environnementaux de chacun des coproduits générés par un tel système, dans notre cas, l'eau et la boue d'épuration.

Un système de production combinée indivisible étant par nature multifonctionnel, l'affectation d'une charge environnementale à la production d'un des coproduits revient à allouer l'ensemble des impacts environnementaux du système entre les coproduits de ce système au moyen d'un facteur d'allocation.

Suite à la revue critique de la littérature menée (cf. *supra*), il s'avère que l'allocation sur des critères physiques (masse, énergie, etc.) n'est pas adaptée compte-tenu de la nature des produits obtenus : une boue concentrant les matières en suspension et riche en nutriments (azote, carbone, phosphore), exprimée généralement en tonnage de matière sèche et une eau épurée contenant peu de matières en suspension et de nutriments, exprimée généralement en mètres cube d'eau traitée. L'allocation économique ne peut être envisagée que si une valeur marchande est attribuable aux coproduits, ce qui est à l'heure actuelle rarement le cas pour des produits boue-sourcés voire déchet-sourcés (Lupton, 2017). La question de recherche posée est donc de savoir « **Comment allouer une charge environnementale entre coproduits liés d'un système indivisible en Analyse du Cycle de Vie ?** ».

La thèse se propose de résoudre ce questionnement méthodologique en proposant une méthode d'allocation basée sur la détermination d'un facteur d'allocation entre les coproduits d'un système de production combinée indivisible reposant sur les relations causales entre la conduite du procédé et l'obtention des produits obtenus. La résolution de cette question de recherche est présentée dans le chapitre suivant (Chapitre 2).

Chapitre 2 – Proposition d’une méthode d’allocation par répartition basée sur le couplage de paramètres produits et procédés pour allouer les impacts environnementaux entre coproduits d’un système indivisible

La méthodologie d'Analyse du Cycle de Vie permet l'évaluation des impacts environnementaux d'un ou plusieurs systèmes au regard du service rendu par ces derniers. Ce service rendu (encore appelé fonction), traduit qualitativement et quantitativement par l'unité fonctionnelle, doit être strictement identique pour rendre la comparaison possible. L'unité fonctionnelle est elle-même dépendante des objectifs de l'étude. La détermination des fonctionnalités des systèmes est donc une étape cruciale car elle conditionne le choix de l'unité fonctionnelle d'une part et le type de modélisation qui sera réalisé d'autre part (Ventura, 2016).

Dans la pratique, cette détermination de la fonction entraîne l'émergence de verrous méthodologiques dès lors qu'une ou plusieurs cofonctions d'un système ne sont pas retranscrites par l'unité fonctionnelle. Cette exclusion est souvent réalisée pour réduire l'unité fonctionnelle à la plus restreinte fonction que les systèmes étudiés ont en commun. Lorsque le cas se présente, la question de l'allocation de la charge environnementale du système entre ces coproduits/fonctions doit être résolue.

Cette question peut être résolue :

- soit en subdivisant le système en sous-systèmes monofonctionnels retranscrivant chacun une des cofonctions du système initial (subdivision) ;
- soit en additionnant les fonctions manquantes ou en soustrayant les fonctions additionnelles (extension des frontières du système) ;
- soit en allouant la charge environnementale du système entre les cofonctions au moyen d'un facteur d'allocation (allocation par répartition).

Le choix de l'une ou l'autre de ces méthodes d'allocation reste fortement dépendant des objectifs de l'ACV et des caractéristiques des systèmes étudiés. Chacune de ces méthodes peut donc être mise en œuvre pour résoudre le caractère multifonctionnel d'un système pour peu que cela réponde aux objectifs de l'étude et que le choix soit argumenté. Choisir une méthode d'allocation est ainsi rendu difficile par manque de consensus sur la méthode à privilégier auquel s'ajoute une complexité supplémentaire selon que la modélisation est de type attributive ou conséquentielle (Ventura, 2012; Weidema, 2017; Weidema and Schmidt, 2010).

Les ACV basées sur une approche conséquentielle ont pour objectif la modélisation des conséquences environnementales à long terme de la mise en place d'un système en prenant en compte les modifications générées principalement sur les marchés économiques. Selon Weidema (2017), ce type de modélisation est pertinent pour identifier les conséquences environnementales d'un remplacement d'un système classique *business as usual* par rapport à une alternative (un déchet remplaçant une matière première par exemple). L'approche conséquentielle est le plus souvent basée sur des modèles économiques d'équilibre général ou partiel simulant les réactions en chaîne des agents économiques face à un changement. Avec l'approche conséquentielle, la question de l'allocation est généralement résolue par l'expansion des frontières du système (Ventura, 2012; Zamagni et al., 2012).

A contrario, les ACV basées sur une approche attributive ont pour objectif d'identifier la fraction de chaque activité du système qui a contribué à la production de chaque coproduit. Il ne s'agit pas d'identifier les conséquences globales de la mise en place d'une alternative mais

de quantifier les impacts environnementaux potentiels de chacune des étapes du cycle de vie du système étudié afin d'éventuellement identifier des leviers d'action à l'échelle même du système. Ce type d'approche est souvent utilisée en écoconception à des échelles de temps relativement courtes et la modélisation du système a tout intérêt à refléter une réalité technique ou économique (Ekvall et al., 2005; Tillman, 2000; Zamagni et al., 2012). La résolution de la multifonctionnalité dans ce type d'approche peut être variée mais la méthode par répartition est une des plus utilisées car présentant une velléité de traduction des liens techniques ou économiques entre le système et ses coproduits/fonctions (Ekvall et al., 2005; Tillman, 2000).

L'enjeu de connaissance des performances environnementales d'un produit boue-sourcé relève donc d'une approche attributive dans la mesure où l'objectif est de quantifier les impacts environnementaux potentiels de chaque étape du cycle de vie du système de production et valorisation de la boue. L'allocation par répartition apparaît donc comme la méthode pertinente pour attribuer une charge environnementale à la production de la boue. L'allocation par répartition vise à répartir les flux entrants et sortants d'un système entre les coproduits/fonctions selon un même facteur d'allocation. Ce facteur d'allocation peut avoir comme ambition de refléter la réalité technique et économique du système et les phénomènes/processus à l'origine des coproduits/fonctions. Tout l'enjeu associé à cette représentativité repose donc sur la détermination des relations physiques causales retranscrites par les critères utilisés pour construire le facteur d'allocation.

Ce chapitre propose dans un premier temps de formaliser un cadre conceptuel de positionnement des différentes approches pour conduire une allocation par répartition selon leur degré de complexité. Dans un second temps, une méthode permettant de déterminer un facteur d'allocation entre les coproduits d'un système combiné indivisible (boue/eau épurée) est proposée. Elle est construite sur la base de paramètres procédés et paramètres produits reflétant les relations causales entre la conduite du procédé et l'obtention des produits obtenus.

1. Choix d'une méthode d'allocation par répartition basée sur une approche paramètre-dépendant

Après avoir défini ce qui caractérise une relation causale et les logiques de détermination des critères représentant ces relations, cette partie présente un positionnement des différentes approches identifiées pour conduire une allocation par répartition selon leur degré de complexité. Une proposition de mise en œuvre de ce développement est décrite dans le cas d'un système de production combiné indivisible selon une approche paramètre-dépendant.

1.1. Caractéristiques et logiques de détermination des relations causales

Une relation causale est définie comme un lien qualifiable et quantifiable entre les paramètres opératoires du système/procédé et les différents produits/fonctions. Selon Ekvall et Tillman (1997), les relations causales peuvent être divisées en deux catégories :

- les relations *cause-oriented* permettent d'évaluer les relations entre le système étudié et les causes qui en sont à l'origine. Une allocation basée sur des critères économiques est un exemple assez basique du *cause-oriented* car le fait d'acheter les produits vendus par une industrie est à l'origine du système de production.
- les relations *effect-oriented* permettent d'évaluer les relations entre le système étudié et ses effets, par exemple le recyclage d'un matériau produit par un système se substituant potentiellement à un matériau vierge d'un autre système.

Ces relations sont généralement basées sur la détermination de critères représentatifs d'une caractéristique des cofonctions du système. Plusieurs types de relations causales peuvent coexister au sein d'un même système rendant plus complexe la détermination des relations sur lesquelles sera basé le facteur d'allocation. La détermination des relations causales suit deux logiques distinctes. Elle peut être basée soit sur une approche technique, soit sur une approche économique. Chacune de ces approches peut s'appuyer sur la détermination de *proxy* en d'autres termes un indicateur représenté par une donnée indirecte qui permet d'approximer ou de représenter un phénomène en l'absence de donnée directe.

Dans le premier cas, la relation est déterminée par des *proxys* représentant des liens de causalité de nature physique (le terme physique incluant également les relations chimiques et biologiques). Ces proxys sont le plus souvent le contenu énergétique (pouvoir calorifique inférieur ou supérieur, entropie, enthalpie, exergie, etc.), la masse, le volume, le contenu en éléments/substances ou la composition molaire. Ces *proxys* sont définis sur la base d'une caractéristique commune des coproduits ou cofonctions.

Dans le second cas, la relation est déterminée par des *proxys* représentant une relation causale économique. Le choix du *proxy* peut ainsi être établi à partir de la valeur marchande des coproduits, généralement caractérisée par le prix du marché (déterminé sur la base d'une moyenne des prix mensuels/annuels, d'études prospectives, etc.).

La détermination des relations causales pour l'établissement d'un facteur d'allocation nécessite donc de comprendre quelles sont les relations de causalités liant chaque coproduit/fonction au système/procédé.

C'est donc sur la base des relations causales que peuvent être décrits les différentes approches possibles de construction des facteurs d'allocation par répartition.

1.2. Positionnement des différentes approches par répartition rencontrées selon leur degré de complexité

Un premier cadre conceptuel a été proposé dans cette thèse permettant de positionner chacune des méthodes d'allocation par répartition rencontrées dans la littérature au regard de leur degré de complexité.

Quatre niveaux de complexité croissante ont été identifiés en fonction du type de critère sur lequel s'appuie la construction du facteur d'allocation (cf. Figure 17) :

- 1^{er} niveau : allocation basée sur des *proxys* de nature physique ou économique
- 2^{ème} niveau : allocation basée sur une dissociation entre les activités de transformation (*transforming activities*) et les activités de marché (*market activities*), méthode proposée par le centre Ecoinvent.
- 3^{ème} niveau : allocation basée sur un calcul paramétré du facteur d'allocation appelée paramètre-dépendant
- 4^{ème} niveau : allocation basée sur une approche dynamique de modélisation du système étudié et du facteur d'allocation

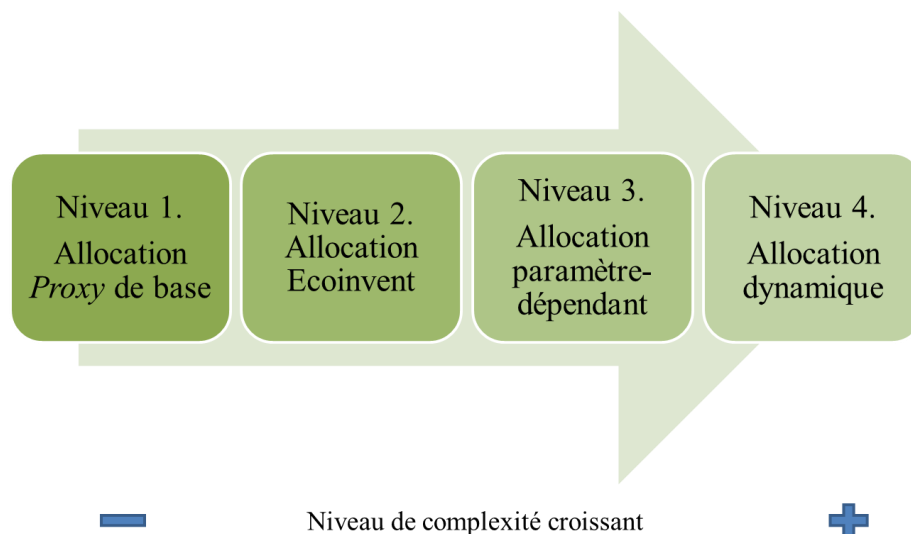


Figure 17. Positionnement des différentes approches par répartition rencontrées selon leur degré de complexité

1.2.1. Allocation basée sur des proxys de nature physique ou économique

La détermination de facteurs d'allocation à l'aide de *proxys* de nature physique ou économique est le niveau minimum attendu pour pouvoir réaliser une allocation par répartition. Il est basé sur le calcul d'un ratio entre le flux physique alloué à chaque coproduit et la somme de l'ensemble de ce flux physique. Lorsque les coproduits sont de même nature, la caractéristique commune peut ainsi être basée par exemple sur une unité massique, énergétique ou économique.

Ainsi, une allocation massique tiendra compte uniquement des masses de produits et coproduits. Si le procédé conduit à la production d'une masse m de produit P et m' de coproduit CP, l'allocation massique pour le produit P est donnée par le ratio $m / (m + m')$.

Une allocation énergétique sera basée sur le contenu énergétique du produit et des coproduits (pouvoir calorifique inférieur, exergie, etc). Si le contenu énergétique d'un produit P et coproduit CP équivaut respectivement à E MJ par kg de produit et E' MJ par kg de coproduit, l'allocation énergétique pour le produit P est donnée par le ratio $m \times E / (m \times E + m' \times E')$.

Enfin, une allocation économique sera basée sur la valeur marchande (prix du marché) du produit et des coproduits. Si la valeur marchande est de V euros par kg de produit P et V' euros par kg de coproduit CP, l'allocation économique pour le produit P peut être donnée par la valeur marchande pondérée par la masse du produit. Ainsi, l'allocation sera obtenue par le ratio $m \times V / (m \times V + m' \times V')$.

Dans le cas où les coproduits sont de nature différente, le choix du critère commun devient plus complexe. Pour pallier cette complexité de choix, la communauté scientifique en ACV préconise de conduire une analyse de sensibilité des méthodes d'allocation utilisées notamment dans le domaine :

- des systèmes de production agricoles (Ayer et al., 2007; Boschiero et al., 2015; Brankatschk and Finkbeiner, 2014; Cederberg and Stadig, 2003; Mackenzie et al., 2017; Nguyen et al., 2012; Thoma et al., 2013; van der Werf and Nguyen, 2015; Verge et al., 2016),
- du secteur de la construction (Chen et al., 2010; Huang et al., 2012; Pushkar and Verbitsky, 2016; Van den Heede and De Belie, 2012),
- des systèmes de production de bioénergie (Chatterjee et al., 2015; Cherubini et al., 2011; D'Avino et al., 2015; Karka et al., 2015; Malca and Freire, 2004, 2006; Sandin et al., 2015; Tsiropoulos et al., 2013; Wang et al., 2004),
- du secteur industriel (Alvarez-Gaitan et al., 2014; Sun et al., 2017)

Dans ces systèmes, sont généralement comparés les impacts environnementaux obtenus selon que les *proxys* soient de nature physique et économique.

1.2.2. Allocation proposée par le centre Ecoinvent

Les concepteurs de la base de données Ecoinvent proposent dans la version 3 (initiée en 2013) une modélisation différente des systèmes en ACV. La différence de modélisation repose sur une dissociation entre les activités de transformation (*transforming activities*) et les activités de marché (*market activities*).

Dans le cas d'activités de transformation multifonctionnelles, lorsque la modélisation des systèmes est de type attributionnelle, deux types de modélisation sont proposées : l'approche *cut-off by classification* et l'approche *allocation at the point of substitution*.

L'approche *cut-off by classification* repose sur une classification à dire d'experts des flux sortants comme « sous-produit allouable », « matériel recyclable » ou « déchet » (Weidema et al., 2013; Wernet et al., 2016). Selon leur classification, ces flux sont traités différemment. Les sous-produits allouables sont répartis entre les autres produits selon des facteurs d'allocation spécifiques au système (relations physiques, exergie, valeur marchande ou masse). Les matériaux recyclables sortent du système qui les a produit sans charge environnementale et aucun impact ou bénéfice ne leur sont alloués (cf. Figure 18).

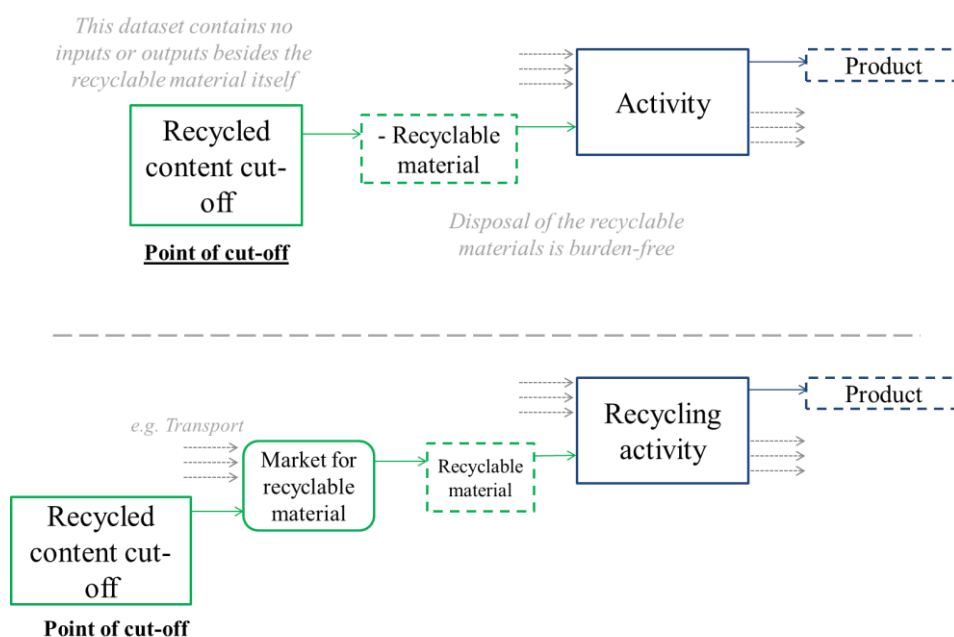


Figure 18. Approche cut-off by classification pour les matériaux recyclables proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)

Les déchets sont envoyés dans une activité de traitement (*treatment activity*) et les impacts de ce traitement sont alloués en totalité à l'activité qui a produit le déchet (cf. Figure 19).

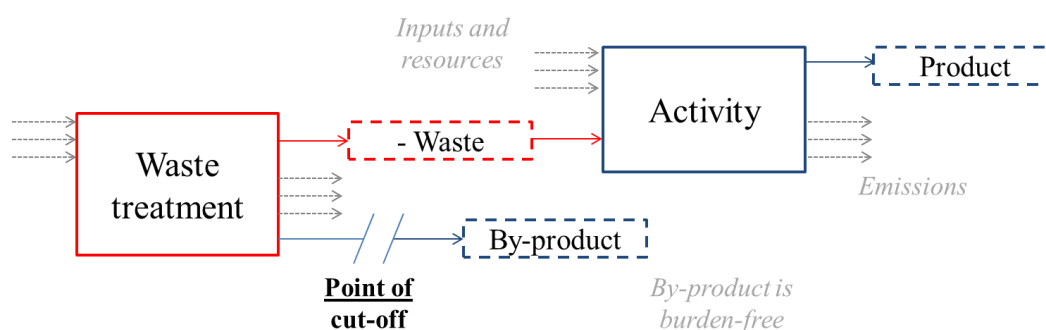


Figure 19. Approche cut-off by classification pour les déchets proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)

L'approche *allocation at the point of substitution* est définie comme « le moment où le sous-produit peut substituer, sans traitement complémentaire, un produit de référence en tant que flux entrant d'une autre activité » (Weidema, 2017; Weidema et al., 2013; Wernet et al., 2016). Cette approche utilise l'expansion des frontières des systèmes de production pour éviter l'allocation au sein de ces systèmes. Elle implique que les activités de traitement sont allouées aux activités qui ont produit le matériau (déchet ou sous-produit) ayant besoin d'être traité (cf. Figure 20).

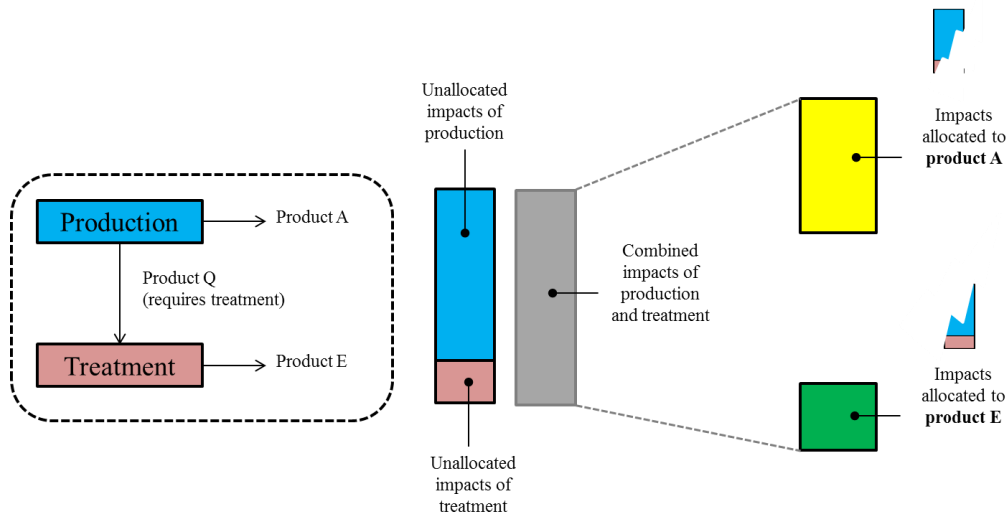


Figure 20. Approche allocation at the point of substitution proposée dans la version 3 d'Ecoinvent (tirée de Wernet et al., 2016)

Selon Weidema and Schmidt (2010), la méthode d'allocation par répartition scinde le système initial en plusieurs sous-systèmes et que le seul bilan maintenu est celui donné par le facteur d'allocation. Ainsi, un facteur d'allocation basé sur un critère massique conservera uniquement les bilans massiques, un critère basé sur le contenu énergétique conservera uniquement les bilans énergétiques tandis qu'un facteur d'allocation basé sur un critère économique ne conservera ni l'un ni l'autre de ces bilans. Afin de conserver les équilibres massiques et énergétiques, la notion d'*allocation correction data sets* ou de *resources correction flow* a été introduite dans la base de données Ecoinvent pour corriger les déséquilibres des flux de ressources et de métaux lorsqu'une allocation économique est utilisée. La Figure 21 donne un exemple d'*allocation correction data sets* sur la base du contenu carbone.

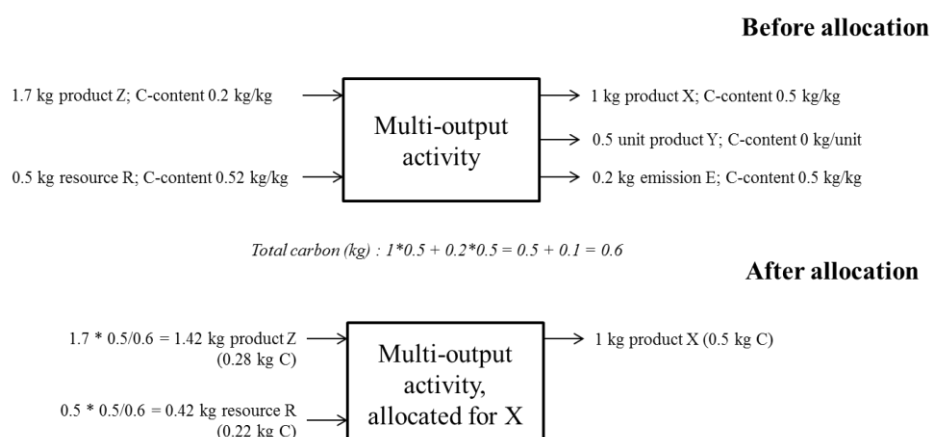


Figure 21. Exemple d'allocation correction data set sur la base du contenu carbone (tiré de Weidema et al., 2013)

Cette proposition de modélisation des systèmes et de détermination des méthodes d'allocation par Ecoinvent ne rencontre toutefois pas de consensus au sein de la communauté des praticiens de l'ACV.

1.2.3. Allocation basée sur un calcul paramétré du facteur d'allocation

Peu de références dans la littérature décrivent l'approche paramètre-dépendant. Lorsque ces références existent, les méthodes d'allocation sont généralement basées sur la détermination de paramètres permettant de caractériser les relations physiques causales inhérentes au processus de production.

Dans les systèmes de production agricoles, ces relations peuvent être de nature « biologique » et mettre en œuvre des mécanismes physiologiques aussi bien pour les animaux que pour les végétaux. Ces relations reposent sur :

- l'existence d'une relation causale entre le mix alimentaire des animaux d'élevage et leur production (lait, veaux, viande, laine). Ces critères se basent sur les besoins en protéine et énergie pour l'alimentation des animaux nécessaires à la fabrication des différents coproduits (Cederberg and Stadig, 2003; Cottle and Cowie, 2016; Mackenzie et al., 2017; Nguyen et al., 2013 ; Wiedemann et al., 2015).
- l'existence d'une relation causale entre les mécanismes physiologiques impliqués dans la croissance des plantes et les produits générés. Ce coût de construction de la biomasse des plantes est ainsi basé sur les teneurs en carbohydrates, protéines, lipides, lignine et matières minérales (van der Werf and Nguyen, 2015).

Dans le cas où le fonctionnement d'un système et la production des coproduits sont fortement dépendants d'un flux entrant, l'allocation peut être basée sur les relations causales existantes entre ce flux entrant et la genèse des produits. A titre d'exemple, Sun et al. (2017) ont établi des relations causales entre la répartition de la consommation d'énergie au sein d'un processus de production de métaux selon la quantité d'énergie consommée au sein de chaque processus composant le système.

Enfin, les relations causales sur lesquelles est basé le facteur d'allocation peuvent dépendre à la fois de paramètres liés au fonctionnement des procédés (appelés paramètres procédés) et à la genèse des produits (appelés paramètres produits) (Azapagic and Clift, 1999). Selon ces auteurs, le fonctionnement et la structure du système dictent sa modélisation et l'existence de relations linéaires ou non linéaires entre les paramètres et les produits.

Ainsi, la détermination d'une relation causale peut vite s'avérer complexe selon le système étudié, car cela nécessite notamment de définir un facteur d'allocation sur la base de plusieurs paramètres reflétant les caractéristiques du système étudié. La complexité de mise en œuvre de cette méthodologie reposera alors sur la manière de combiner ces paramètres pour produire un facteur d'allocation pertinent.

1.2.4. Allocation basée sur une approche dynamique de modélisation du facteur d'allocation

Le dernier niveau de complexité possible pour l'allocation par répartition repose sur la construction d'un facteur d'allocation selon une approche dynamique. Une approche dynamique nécessite de modéliser le fonctionnement intrinsèque du processus au regard des paramètres qui le compose et ce de manière non-statique (classiquement la modélisation des systèmes en ACV sont le plus souvent à l'équilibre). Le facteur d'allocation permet alors de refléter dans son calcul toute variation dans le fonctionnement du processus lié à une variation des paramètres. Ce type de modélisation dynamique du facteur d'allocation est une approche relativement complexe et très peu voire pas usitée à notre connaissance à ce jour.

1.3. Choix du type d'allocation par répartition dans le cas d'un système de production combiné indivisible : application à la production de boue

La construction d'un facteur d'allocation pour un système de production combinée indivisible repose sur la détermination des relations causales pertinentes entre le procédé et les coproduits/fonctions. Toutefois, pour qu'un système de production combinée soit indivisible et que la multifonctionnalité d'un tel système puisse être résolue, ce système doit répondre à quatre principes :

- Le système (ou procédé) doit être composé d'un ou plusieurs processus connus et/ou identifiables.
- Chaque processus contribue à la production de chaque produit de manière indissociable *a priori* mais la quantité produite peut varier de manière indépendante.
- On doit pouvoir être dans la capacité de faire un lien quantitatif entre chaque processus et les flux entrants et sortants du processus.
- Il doit être possible d'identifier pour chaque processus le(s) paramètre(s) clé(s) permettant de répartir quantitativement la contribution du processus à la production de chaque produit.

Malgré le changement de paradigme identifié dans le Chapitre 1, la revue de littérature ACV effectuée ne présente aucune réflexion sur la détermination d'un facteur d'allocation permettant d'allouer les impacts environnementaux à la production de la boue sur la base de relations physiques causales pour les produits boue-sourcés. Ce constat est également valide plus largement pour les produits déchets-sourcés.

La détermination des critères définissant ces relations causales est rendue complexe par la complexité du système lui-même. La boue est en effet produite au cours de différents processus de traitement ayant pour objectif d'éliminer la matière organique (le carbone), l'azote et le phosphore de l'eau usée. La construction du facteur d'allocation nécessite donc des critères permettant de rendre compte de ces phénomènes complexes. Une allocation par répartition selon une approche dynamique est difficile à mettre en œuvre en première approche et les modèles disponibles permettant une modélisation dynamique du traitement de l'eau usée (type Activated Sludge Model) sont peu adaptés à cet exercice. Le choix de l'allocation par répartition

selon une approche paramètre-dépendant apparaît le plus adapté pour représenter les phénomènes complexes inhérents au processus d'élimination des macronutriments à l'origine de la production de boues d'épuration urbaines. Toutefois, l'approche paramètre-dépendant passe nécessairement par une formalisation mathématique du facteur d'allocation afin de pouvoir combiner entre eux les paramètres le constituant.

Dans la partie suivante, l'article accepté pour publication dans *Journal of Cleaner Production* décrit la construction mathématique d'un facteur d'allocation basé sur des paramètres procédés et produits représentatifs du fonctionnement du système de traitement de l'eau.

2. Proposition d'un facteur d'allocation basé sur des paramètres produits et procédés pour évaluer les impacts environnementaux de la production de produits boue-sourcés

L'article ci-après est la version auteur de l'article publié en ligne dans *Journal of Cleaner Production* le 13 octobre 2017.



Constructing an allocation factor based on product- and process-related parameters to assess environmental burdens of producing value-added sludge-based products



Marilys Pradel ^{a, e, *}, Lynda Aissani ^{b, c}, Jean-Pierre Canler ^d, Jean-Christophe Roux ^a, Jonathan Villot ^e, Jean-Christophe Baudez ^{a, f}, Valérie Laforest ^e

^a Irstea, UR TSCF, Domaine des Palaquins, 40 Route de Chazeuil, 03150, Montoldre, France

^b Irstea, UR OPAAIE, 17 Avenue de Cucillé, CS 64427, 35044, Rennes Cedex, France

^c Université Bretagne Loire, France

^d Irstea, UR MALY, Centre de Lyon-Villeurbanne, 5 Rue de la Doua, CS70077, FR-69626, Villeurbanne Cedex, France

^e Université de Lyon, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, CNRS, UMR 5600 EVS, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2 France

^f Luxembourg Institute of Science and Technology, Environmental Research and Innovation Department, 41, Rue du Brill, L-4422, Belvaux, Luxembourg

<https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2017.10.112>

0959-6526/© 2017 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Constructing an allocation factor based on product- and process-related parameters to assess environmental burdens of producing value-added sludge-based products

Marilys Pradel^{a,e*}, Lynda Aissani^{b,c}, Jean-Pierre Canler^d, Jean-Christophe Roux^a, Jonathan Villot^e, Jean-Christophe Baudez^{a,f}, Valérie Laforest^e

^a Irstea, UR TSCF, Domaine des Palaquins, 40 route de Chazeuil, 03150 MONTOLDRE, France, marilys.pradel@irstea.fr, jean-christophe.roux@irstea.fr

^b Irstea, UR OPAALE, 17 avenue de Cucillé, CS 64427, 35044 Rennes Cedex, France, lynda.aissani@irstea.fr,

^c Université Bretagne Loire, France,

^d Irstea, UR MALY, centre de Lyon-Villeurbanne, 5 rue de la Doua, CS70077, FR-69626 Villeurbanne Cedex, France, jean-pierre.canler@irstea.fr

^e Université de Lyon, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, CNRS, UMR 5600 EVS, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2 France, valerie.laforest@mines-stetienne.fr, jonathan.villot@mines-stetienne.fr

^f Luxembourg Institute of Science and Technology, Environmental Research and Innovation Department, 41, rue du Brill, L-4422 Belvaux, Luxembourg, jean-christophe.baudez@list.lu

*Corresponding author: telephone: (+33) 470 474 426, fax: (+33) 470 474 411, marilys.pradel@irstea.fr

Abstract

Sludge is slowly moving away from providing basic by-products and towards providing value-added products (e.g. fertilisers); therefore, it is no longer perceived as waste but as a product. Consequently, wastewater treatment plants become multifunctional systems that produce two coproducts that are given a second life: sludge and “clean” water. An allocation factor in Life Cycle Assessment can partition environmental burdens of wastewater treatment between these two products, but doing so remains highly challenging. To address this challenge, we followed a four-step procedure to develop an allocation factor using a mesoscopic approach and process- and product-related parameters in a mathematical model. The first two steps consisted of determining and mathematically representing process- and product-related parameters and their associations to define a global allocation factor. The third step consisted of constructing a corrective inventory matrix to adjust the global allocation factor, since inventory flows can be specific to certain processes. The last step consisted of mathematical modelling of the final corrected allocation factor. Based on the parameters chosen, the global allocation factor equalled 45% for sludge and 55% for water. A sensitivity analysis was performed to assess the robustness of the sludge allocation factor, which varied from 39-49%. The allocation factor developed reflects technological performances of the system and considers environmental impacts of sludge production to assess environmental impacts of value-added sludge-based products.

Keywords

Allocation factor, product-related parameter, process-related parameter, sludge, wastewater treatment, mathematical modelling

2.1. Introduction

Reuse and recovery of matter or energy from municipal and industrial waste streams has gained increasing interest in the context of circular economy (CEC, 2017; MEEM, 2016) and the European Waste Framework Directive (CEC, 2008). The total amount of waste produced by domestic sources in France in 2015 was estimated at 33 million tons, which represents 14% of the total volume produced in Europe (Eurostat, 2017). Within this waste, wastewater sludge has potential utility, as it is a valuable source of organic matter and macronutrients such as nitrogen (N), phosphorus (P) and potassium. Two main approaches are used to manage wastewater sludge in a more sustainable manner (Cieřlik et al., 2015; Wang et al., 2008; Yoshida et al., 2013): “sludge-to-energy”, which recovers energy, and “resource recovery”, which recovers matter or nutrients. Depending on the technology used, both approaches provide sludge-based value-added products. Research on sludge-to-energy approaches has increased over the past 10 years (Mills et al., 2014; Rulkens, 2008; Tyagi and Lo, 2013). The most common include:

- anaerobic digestion to produce biogas, which is converted into heat or electricity using a cogeneration system (Bond et al., 2012; Cao and Pawlowski, 2012), or purified into biomethane, which is injected into the natural gas network.
- biohydrogen production (Angenent et al., 2004; De Gioannis et al., 2013; Kalinci et al., 2009; Mudhoo et al., 2011).
- thermal conversion of sludge via pyrolysis or gasification to produce bio-oil or biodiesel (Bridle and Pritchard, 2004; Fonts et al., 2012). It also provides value-added products such as ceramsite (Xu et al., 2008) and adsorbents (Hadi et al., 2015; Smith et al., 2009).
- biofuel production (Kargbo, 2010; Manara and Zabaniotou, 2012; Siddiquee and Rohani, 2011).

Among nutrient recovery processes, P recovery is documented most frequently (Egle et al., 2015; Mehta et al., 2015). P can be recovered either via anaerobic stripping of sludge liquor by precipitating or crystallising phosphate as struvite or calcium phosphate or via anaerobic digestion of sludge after separating sludge particles and further treatment of the sludge liquor (Rahman et al., 2014). Thermal conversion can also recover P from sludge by producing biochar, which is a by-product of pyrolysis (Bridle and Pritchard, 2004).

While some of these technologies exist only at laboratory or pilot scales, others are fully functional at the industrial scale, and there is growing willingness to increase the sustainability of sludge management via recovery processes and potentially marketable value-added products. Life Cycle Assessment (LCA) is often performed to assess environmental impacts of these ambitious sludge management systems (Johansson et al., 2008; Lederer and Rechberger, 2010; Mills et al., 2014; Remy, 2015). In these LCA studies, sludge is modelled mainly as waste, even when added-value products are produced. Thus, sludge is considered to have no environmental burden, which creates a distortion in comparative LCA. Reflecting on consequences for LCA of the paradigm shift in which sludge is considered a product instead of waste, Pradel et al. (2016) highlighted that system boundaries among scenarios become unequal when “product” sludge or “waste-to-product” sludge (after matter or nutrient recovery) is compared to fossil-based products such as chemical fertilizers. In LCA studies that compare sludge-based products

to fossil or non-waste alternatives, the functional unit (i.e. the value to which LCA results are related to) focuses on a value-added product. In the paradigm shift, upstream processes of sludge production must be considered. Although sludge is a natural result of cleaning wastewater in wastewater treatment plants (WWTPs), it is not considered in the functional unit. To address this issue, environmental burdens must be allocated to sludge when treatments are oriented to produce value-added products. Doing so is challenging, however, because allocation factors must separate the environmental burdens of wastewater treatment between sludge and clean water for each process in the WWTP.

This article describes development of an allocation factor that partitions environmental burdens between sludge and treated water. Following a section on the allocation procedure in LCA and the mathematical calculations, the method for constructing this allocation factor based on process- and product-related parameters is described. Following this is a discussion on the limits and robustness of the allocation factor developed and choosing and determining the process- and product-related parameters. Several perspectives are provided on the possible use of this allocation method within the LCA allocation procedure.

2.2. Allocation procedure in LCA

LCA guidelines describe general principles for allocation (Heijungs and Suh, 2002; ISO, 2006a, b; ILCD Handbook, 2010), which are based on three main methodological points: definition of allocation factors (section 2.1.), the unit process considered (section 2.2), and how allocation is quantified through mathematical modelling (section 2.3).

2.2.1. Constructing allocation factors based on relevant causal relationships

Standards such as ISO 14044 and the ILCD Handbook state “where allocation cannot be avoided, the inputs and outputs of the system should be partitioned between its different products or functions in a way that reflects the underlying physical relationships between them; i.e. they should reflect the way in which the inputs and outputs are changed by quantitative changes in the products or functions delivered by the system”. Therefore, allocation should be based on causal relationships. Ekvall and Tillman (1997) developed two categories of causal relationships: cause-oriented (between a system and its causes) and effect-oriented (between a system and its effects). We considered only the former because they help establish a relation between process functioning and product creation, which is appropriate for sludge production from wastewater treatment.

In practice, burdens are partitioned by identifying the relevant fractions of matter/energy (“input”) and emissions/waste (“output”) that should be allocated to each of the coproducts (Weidema, 2017). These fractions are called “allocation factors” or “partitioning coefficients” (Chen et al., 2010; Suh et al., 2010), the former of which we use hereafter.

Allocation factors are defined/supported by quantitative, measurable criteria that are usually based on relative amounts of each product, measured in units (i.e. partitioning criteria) such as mass, energy content or monetary value (Suh et al., 2010). Choosing appropriate criteria is

controversial because no consensus exists on which ones are the most suitable (Curran, 2007a,b; ILCD Handbook, 2010). As illustrated by Hanes et al. (2015), “mass allocation works well in manufacturing processes but cannot be applied to energetic outputs⁴, such as electricity; energetic allocation is not intuitive for products not commonly quantified according to energy content; and economic allocation is problematic for products that are typically treated as waste and products with volatile prices.”

Allocation factors should be designed in accordance with unique characteristics of each system and following “relevant physical relationships” (Pelletier et al., 2015). A relevant physical relationship is, for example, a physical property that represents the primary function defined for the coproduct considered and that is a reasonable common denominator for allocation among coproducts. In this way, the model directly quantifies environmental consequences of the function based on physical relationships between inputs and outputs (Marvuglia et al., 2010; Pelletier et al., 2015). Food production systems illustrate allocation factors that are based on physical relationships between system characteristics (Mackenzie et al., 2017). For example, allocation factors can be based on biophysical criteria such as metabolic energy flow or biological processes in livestock systems (IDF, 2010), or on the energy required to produce biomass (van der Werf and Nguyen, 2015). Food and Agriculture Organization guidelines (FAO, 2014) provide allocation factors for agricultural products and manure that consider the latter a coproduct instead of waste.

Industrial systems provide other examples. In the chemical industry, allocation factors are usually based on molar relationships (i.e. stoichiometry and molecular weights), enthalpy or exergy (Alvarez-Gaitan et al., 2013). According to Azapagic and Clift (1999a,b; 2000), the performance of an industrial system is based on product- and process-related parameters. These authors used linear programming to model physical relationships based on these parameters in a boron production system to model infinitesimal variations in outputs to determine “marginal allocation coefficients”.

For wastewater treatment, it is not relevant to base allocation factors on energy or economics. Because treated water has no energy content, energetic allocation would result in no allocation, while economic allocation would function only when both sludge and treated water had a market value (Pradel et al., 2016).

Treated water is usually measured by its volume (cubic meter or litre) and described by chemical parameters (e.g. chemical oxygen demand (COD), biochemical oxygen demand), while sludge is usually measured by its mass and dryness (kg or ton produced on a raw- or dry-matter basis). As treated water can also be measured by its mass (e.g. ton released per day or year), mass allocation would favour treated water over sludge because nearly all of the mass released is water. Indeed, a WWTP releasing 40 000 tons of water and producing 10 tons of sludge per year will have a 100:0 mass allocation factor so that all the burdens will be allocated to clean water. Therefore, mass allocation is not appropriate for water treatment when both sludge and water are produced because it does not reflect the function of the system.

⁴ “energetic outputs” refers to energy products.

Traditional allocation factors for wastewater treatment have several disadvantages because they do not reflect system function or the potential to increase the efficiency of sludge production. The novelty of the present study is the development of an allocation factor that is based on process- and product-related parameters that circumvent these disadvantages. Because these parameters reflect process performance, any technological improvement in the latter will be mirrored in environmental impacts of each coproduct. Process-related parameters are operational or technical parameters that influence the functioning of the process to which they are related (e.g. temperature, pressure, reagent use efficiency). In contrast, product-related parameters are intrinsic parameters that directly influence product creation and composition within a process. Product-related parameters are specific to a process and are based on physical, chemical, biological or technical characteristics. Parameters based on a product's stoichiometric characteristics or specific macro-element capture rate can be used as product-related parameters. Indeed, from the moment the macro-element capture rate increases the concentration of an expected element in a product, it becomes a product-related parameter.

2.2.2. Using a macroscopic to microscopic approach to determine an allocation factor

Kim and Overcash (2000) highlighted that the definition of the unit process strongly influences the resulting allocation factors. The unit process can be defined from the largest process (i.e. the entire manufacturing system) – a “macroscopic” approach – to the smallest one (i.e. an operational engineering unit) – a “microscopic” approach. In the macroscopic approach, the process is not subdivided; thus, a single allocation factor is applied to all sub-processes regardless of their function. It is not feasible, however, to use either approach to determine an allocation factor for sludge production. The macroscopic approach requires mass, energy or economic allocation, none of which, as mentioned, is appropriate. The microscopic approach, in contrast, models each operational engineering unit, making it difficult and time consuming to determine an allocation factor for each unit based on causal relationships.

An intermediate approach is “quasi-microscopic” (Kim and Overcash, 2000) (i.e. mesoscopic), in which the unit process refers to each sub-process, which can be combined or joint, physically separated or fully separated. This approach divides a process into sub-processes to identify underlying physical relationships (i.e. process- and product-related parameters) more easily. A sub-process includes all steps involved in manufacturing one product within a process. This approach is useful for identifying key issues related to a product or function and the sub-process concerned. Using the mesoscopic approach to determine an allocation factor is more suitable for sludge production because wastewater treatment is easily subdivided into sub-processes, each of which produces sludge. These sub-processes can be removal of carbon (C), N and P.

2.2.3. Mathematical modelling used in allocation procedure

Mathematical modelling that considers a system's characteristics is often used to quantify allocation factors. Given system complexity and the mathematical structure of LCA, mathematical modelling takes the form of a matrix to address allocation in the Life Cycle Inventory (LCI) (Heijungs and Frischknecht, 1998; Heijungs and Suh, 2002). Matrices have

been used to perform allocation when connecting LCA and Input-Output analysis (Majeau-Bettez et al., 2014; Suh et al., 2010) and to address the multifunctional problem caused by non-common products (Jung et al., 2013). Other authors have highlighted the ill-posed problem of allocation using the matrix notation (Cruze et al., 2014a; Hanes et al., 2015) or have improved the matrix-based approach by using regression with rectangular coefficient matrices (Cruze et al., 2014b; Marvuglia et al., 2010). Others have developed the matrix-based approach to improve uncertainty analysis of multifunctional systems using sensitivity coefficients (Jung et al., 2014; Wang and Work, 2014) or to assess uncertainty propagation in fuzzy LCI models (Heijungs and Tan, 2010).

As summarised by Heijungs (2010), the “inventory problem” refers to scaling all unit processes in the system in a way that exactly produces the reference flow (or functional unit). Scaling is performed in the LCI. The following generic formula is commonly used (Hanes et al., 2015; Heijungs and Suh, 2002; Jung et al., 2013):

$$g = B \cdot A^{-1} \cdot f \text{ (Eq. 1)}$$

where vector g refers to LCI results (i.e. environmental flows, as rows in a single column), B is the intervention matrix (with environmental flows as rows and processes as columns), A^{-1} is the technology matrix (with processes as rows and economic flows as columns), and vector f is the functional unit defined in the goal and scope (with economic flows as rows in a single column).

Multifunctional processes have more products than processes, which makes matrix A is rectangular; consequently, matrix A^{-1} does not exist, and Eq. 1 cannot be applied. One solution is to expand matrix A using partitioning allocation so that it will represent monofunctional processes and become square. An allocation factor (C) (Jung et al., 2014) can be used to convert matrices A and B into their allocated forms A_* and B_* .

When allocation factor C is used to partition economic and environmental flows, Eq. 1 becomes:

$$g_* = B_* \cdot A_*^{-1} \cdot f \text{ (Eq. 2)}$$

Allocated inventory results g_* are then converted into environmental impacts (h_*) by multiplying them by a matrix of characterisation factors (Q):

$$h_* = Q \cdot g_* \text{ (Eq. 3)}$$

Jung et al. (2014) argued that allocation factor C is a potential source of uncertainty, and Hanes et al. (2015) argued that it can be calculated from common partitioning criteria or other criteria. The purpose of mentioning these articles was to explore a theoretical allocation procedure. The purpose of the present study was to determine a value for allocation factor C for wastewater treatment. Therefore, we developed a mathematical model, based on process- and product-related parameters and a mesoscopic approach, to allocate environmental burdens between sludge and treated water.

2.3. Constructing an allocation factor for wastewater treatment

It was first necessary to identify sub-processes involved in wastewater treatment and the related process- and product-related parameters used to construct the allocation factor.

2.3.1. Modelling a wastewater treatment plant

A WWTP generally consists of two processes that treat wastewater and sludge, respectively. For the former, the most common one is the aerobic activated sludge process. In its most complete form, wastewater is progressively cleaned in three sub-processes, according to a mesoscopic approach, to remove organic C, N and P before being released into the environment.

Organic C is removed by bacteria, whose growth and decay degrade soluble organic matter. The bacteria grow by using oxygen to consume the organic matter. Autolysis of bacteria causes them to decay, which also uses oxygen. During their growth, bacteria also consume ammonium (NH_4^+) and P. The remaining N is removed by nitrification, oxidation of ammonia (NH_4^+) to nitrite (NO_2^-) and nitrate (NO_3^-), and denitrification, reduction of NO_2^- and NO_3^- into nitrogen gas (N_2) (Degrémont, 2005). P that is not assimilated within bacteria (i.e. “normal” biological P removal (NBPR)) can be removed by two processes: chemical precipitation and enhanced biological P removal (EBPR). When NBPR is unable to decrease P concentrations below legal thresholds, chemical precipitation is required. It consists of adding chemical salts to produce chemical sludge such as iron (III) phosphate or aluminium phosphate when ferric chloride or aluminium sulphate is respectively used. EBPR is similar to NBPR but includes an anaerobic phase before the aerobic phase. Sludge from EBPR has higher P concentration (6%) than that from NBPR (1.5%). Together, the three sub-processes of C, N and P removal produce biological sewage sludge (Figure 22). Afterwards, the environmental impacts of sludge treatment are fully allocated to the sludge-based product.

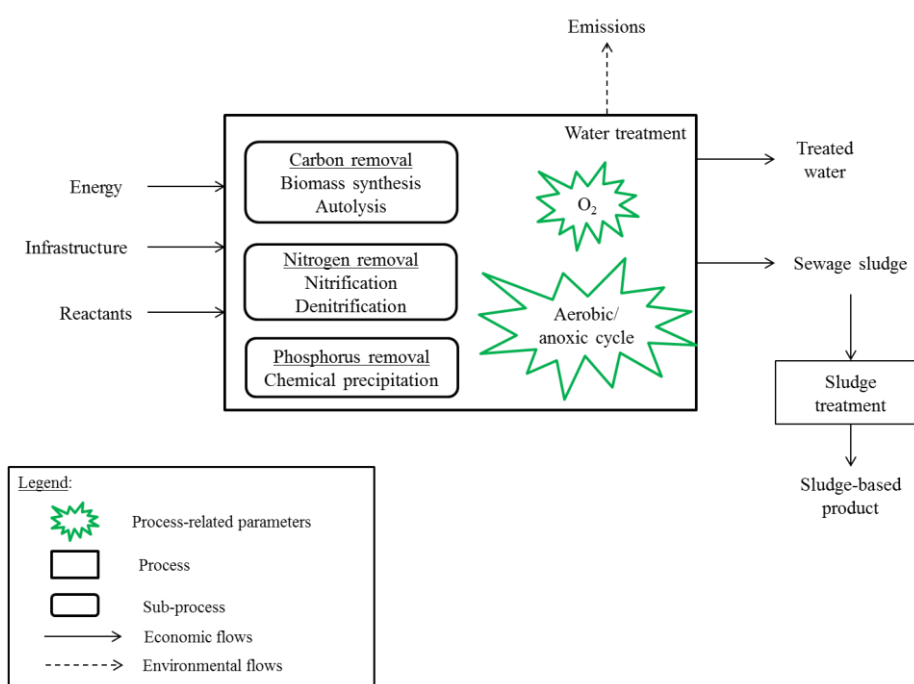


Figure 22. Wastewater treatment system modelling

Afterwards, the environmental impacts of sludge treatment are fully allocated to the sludge-based product.

2.3.2. *Determining which parameters to use to construct the allocation factor*

This section presents how process- and product-related parameters are determined. After a brief description, a wastewater treatment case study is used to explain and illustrate the calculation of the process- and product-related parameters.

Process-related parameters

Description

A process-related parameter can be specific to only one sub-process or can contribute to several sub-processes. In the latter case, its contributions among sub-processes can be weighted by a ratio that equals the proportion of each process-related parameter used by each sub-process in the entire process. The ratio is calculated by dividing the value of a characteristic (e.g. mass, volume) involved in each sub-process by the total value of the characteristic involved in the entire system.

The process-related parameter is noted j and ranges from 1 to n . The sub-process is noted k and ranges from 1 to p . The relation between the sub-process and the process-related parameter is noted $\beta_{j,k}$. $\beta_{j,k}$ is calculated according to Eq. 4 and refers to the ratio used to partition each process-related parameter j between each sub-process k using it.

$$\beta_{j,k} = \frac{Q_{j,k}}{\sum_{k=1}^p Q_{j,k}} \text{ (Eq. 4)}$$

where $Q_{j,k}$ is the value of the process-related parameter used by each sub-process k , and $\sum_{k=1}^p Q_{j,k}$ is the total value of process-related parameters used by all sub-processes k .

When a process-related parameter contributes to only one sub-process, $\beta_{j,k}$ equals 1. When it contributes to several sub-processes, $\beta_{j,k}$ ranges from 0 to 1 (exclusive), and the sum of $\beta_{j,k}$ equals 1.

Wastewater treatment process-related parameters

According to expert opinion, oxygen demand (OD) and the shift between aerobic and anaerobic periods are the process-related parameters that most influence these processes of wastewater treatment.

OD equals the amount of oxygen required during C and N removal. In contrast, P removal does not require oxygen because the bacteria have already assimilated oxygen. Values for calculating each process-related parameter are provided in Table 2 and detailed in Supplementary Information (cf. Annexe 1). Values come from literature and are related to standard oxygen requirement for C and N removal. OD of C removal equals that used for direct oxidation of

organic matter (via bacterial growth) and indirect oxidation from bacterial autolysis (decay) (Degrémont, 2005). OD of N removal equals that used to oxidise NH_4^+ during nitrification. The OD ratio (β_{OD} , Eq. 5) for C and N equals the OD for the removal of each nutrient ($\text{OD}_{\text{nutrient removal}}$) divided by the total OD (OD_{total}).

$$\beta_{OD} = \frac{\text{OD}_{\text{nutrient removal}}}{\text{OD}_{\text{total}}} \quad (\text{Eq. 5})$$

To optimise C and P removal and nitrification (which require oxygen) and denitrification (which requires a lack of oxygen), wastewater is subjected to alternating aerobic and anaerobic periods (AAP). AAP is most effective when the aerobic period lasts 16 h, leaving 8 h in the 24 h cycle for complete denitrification (J.-P. Canler, Irstea, pers. comm.). AAP ratios for the four C, N and P removal processes (β_{AAP} , Eq. 6) are calculated to partition the 24 h cycle. They equal the proportion of the complete cycle under an aerobic condition ($\%_{\text{aerobic period}}$) divided by the number of sub-processes under that condition ($n_{\text{aerobic operation}}$) plus the proportion of the complete cycle under an anaerobic condition ($\%_{\text{anoxic period}}$) divided by the number of sub-processes under that condition ($n_{\text{anoxic operation}}$).

$$\beta_{AAP} = \frac{\%_{\text{aerobic period}}}{n_{\text{aerobic operation}}} + \frac{\%_{\text{anoxic period}}}{n_{\text{anoxic operation}}} \quad (\text{Eq. 6})$$

Table 2. Mathematical notation and values for process-related parameters

Process-related parameters	Notation	Variables	Value used and range of variation (in brackets) ^a			Equation used	Value for each related subprocess		
			Carbon removal	Nitrogen removal	Phosphorus removal		Carbon removal (C)	Nitrogen removal (N)	Phosphorus removal (P)
Oxygen demand	β_{OD}	Direct oxidation	0.64 (0.533-0.746)	-	-	Eq. 5	$\beta_{OD,C}$	$\beta_{OD,N}$	$\beta_{OD,P}$
		Indirect oxidation	0.76 (0.516-0.816)	0.85 (0.6375-0.85)	-		0.622	0.378	0
		Nitrification	-	-	-				
Alternation of the aerobic and anoxic period	β_{AAP}	Aerobic period	16 h (15 h-18 h)	16 h (15 h-18 h)	16 h (15 h-18 h)	Eq. 6	$\beta_{APP,C}$	$\beta_{APP,N}$	$\beta_{APP,P}$
		Anoxic period	-	8 h (6 h-9 h)	-		0.222	0.556	0.222

^a Values for oxygen demand are expressed in kg O₂/kg BOD₅

Product-related parameters

Description

As a sub-process can produce two or more coproducts simultaneously, product-related parameters, like process-related parameters, can be integrated into the allocation factor via ratios, in this case based on physical, chemical or stoichiometric properties. The sub-process is noted k and ranges from 1 to p . Coproducts of the sub-process are noted r and range from 1 to q . The relation between sub-processes and products is based on the product-related parameter and is codified with a α symbol. The ratio ($\alpha_{k,r}$) is calculated according to Eq. 7.:

$$\alpha_{k,r} = \frac{Q_{k,r}}{\sum_{k=1}^p Q_{k,r}} \quad (\text{Eq. 7})$$

where $Q_{k,r}$ is the value of product-related parameters used to generate each product r , and $\sum_{k=1}^p Q_{k,r}$ is the total value of product-related parameters used by the sub-process k .

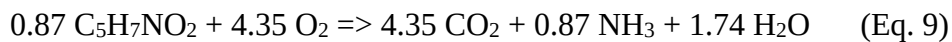
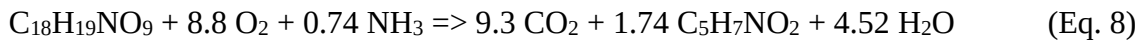
When a product-related parameter contributes to only one product, $\alpha_{k,r}$ equals 1. When it contributes to several coproducts, $\alpha_{k,r}$ ranges from 0 and 1 (exclusive), and the sum of $\alpha_{k,r}$ equals 1.

Wastewater treatment product-related parameters

Sludge production resulting from C and N removal is based on stoichiometric equations, while that from P removal is based on chemical precipitation and bacterial assimilation. Values and equations used to calculate each product-related parameter were determined according to expert opinion (Table 3 and Supplementary Information (cf. Annexe 1)).

Carbon removal

Average compositions of organic matter in wastewater and sludge were assumed to be $C_{18}H_{19}NO_9$ and $C_5H_7NO_2$, respectively (Deronzier et al., 2001; Hahn, 2012). Bacteria degrade organic matter via growth (Eq. 8) and decay (endogenous respiration) (Eq. 9):



The product-related parameter for C removal (α_C) is based on the C contents of sludge and wastewater, and the amount of sludge produced per gram of COD eliminated ($m_{C,sludge}$). After calculating $m_{C,sludge}$, α_C is calculated as $m_{C,sludge}$ times the proportions of C in sludge ($\%_{C,sludge}$) and wastewater ($\%_{C,wastewater}$) per g of COD eliminated ($m_{C,wastewater}$):

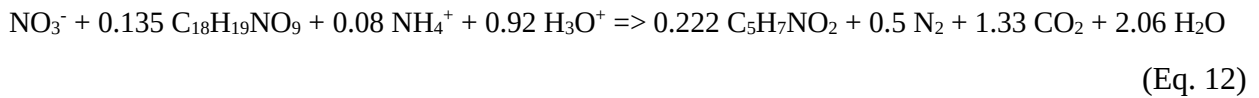
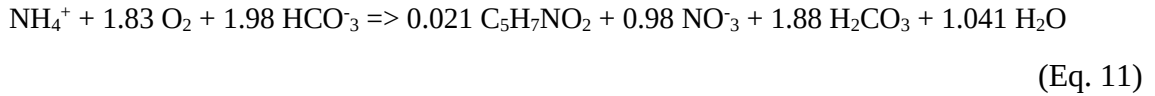
$$\alpha_C = \frac{m_{C,sludge} \cdot \%_{C,sludge}}{m_{C,wastewater} \cdot \%_{C,wastewater}} \quad (\text{Eq. 10})$$

$$\text{with } m_{C,sludge} = \frac{1.74 \cdot m_{biomass}}{(n_{O_2,decay} + n_{O_2,synthesis}) \cdot 32} \text{ expressed in g/g COD}$$

where $n_{O_2,decay}$ is moles of O_2 for decay, $n_{O_2,synthesis}$ refers to the moles of O_2 for growth, $m_{biomass}$ refers to the biomass molar mass (i.e. sludge), and 1.74 refers to the moles of sludge in Eq. 8.

Nitrogen removal

Nitrification and denitrification produce sludge according to the following stoichiometric equations (Eq. 11 and 12, respectively) (Deronzier et al., 2001; Qasim, 1998):



These two equations are used to calculate the product-related parameter for sludge production from N removal (α_N , Eq. 13). As N removal requires an organic substrate, the corresponding ratio is based on the N and C contents of sludge compared to total N and C output. It is the sum of the number of N moles from biomass produced from nitrification ($n_{N,sludge}$) and the number of C and N moles from biomass produced from denitrification ($n_{C,N,sludge,DN}$). This sum is then divided by the total number of C and N moles produced from denitrification, assuming a 0.98 correction factor (i.e. amount of NO_3^- -N produced from nitrification, $n_{C,N,total}$).

$$\alpha_N = \frac{n_{N,sludge} + n_{C,N,sludge,DN}}{n_{C,N,total}} \quad (Eq. 13)$$

$$\text{with } n_{C,N,sludge,DN} = n_{N,NO_3} \cdot \left((n_{c,biomass} + n_{n,biomass}) \cdot n_{DN,sludge} \right)$$

$$\text{and } n_{C,N,total} = n_{C,N,sludge,DN} + n_{N,NO_3} \cdot \left((n_{n,N_2} \cdot n_{DN,N_2}) + n_{DN,CO_2} \right)$$

where n_{N,NO_3} is moles of NO_3^- from nitrification, $n_{N,sludge}$ is moles of biomass from nitrification, n_{DN,N_2} is moles of N_2 from denitrification, n_{DN,CO_2} is moles of CO_2 from denitrification, $n_{DN,sludge}$ is moles of sludge from denitrification, $n_{c,biomass}$ is the number of C atoms in the biomass, $n_{n,biomass}$ is the number of N atoms in the biomass, and n_{n,N_2} is the number of N atoms in N_2 .

Phosphorus removal

Sludge produced from phosphorus removal is the results from two operations of the phosphorus assimilation within the bacteria (both NBPR and EBPR can be considered) and an additional chemical precipitation. Additional chemical precipitation is required when phosphorus removal is not sufficient to meet the required phosphorus concentrations to be released within the natural media. P assimilation ($RE_{assimilation}$) depends on the COD:P ratio of incoming wastewater and the food-to-mass (F:M) ratio. $RE_{assimilation}$ ranges from 20-60% at a F:M ratio of 0.1, depending

on the COD:P ratio and whether NBPR or EBPR is performed (Stricker and Héduit, 2010). We assumed a value of 30%, which corresponds to NBPR (J.-P. Canler, Irstea, pers. comm.). Chemical precipitation of P ($RE_{chemical}$) uses chemical salts. We assumed only an iron-based reactant because it is commonly used in water treatment. $RE_{chemical}$ (Eq. 14) is a function of P concentration of incoming wastewater and the molar Fe:P ratio (range = 0.25-4.00) (Canler and Choubert, 2007).

$$RE_{chemical} = (27.717 \cdot \ln(molar\ Fe:P\ ratio) + 50.776)/100 \quad (Eq. 14)$$

The product-related parameter for sludge production from P removal (α_P , Eq. 15) equals $RE_{assimilation}$ plus $RE_{chemical}$, assuming a molar Fe:P ratio of 1.8 because chemical precipitation of P required 70% efficiency:

$$\alpha_P = RE_{assimilation} + ((1 - RE_{assimilation}) \cdot RE_{chemical}) \quad (Eq. 15)$$

Table 3. Mathematical notation and values for product-related parameters

Process-related parameters	Notation	Variables	Value used and range of variation (in brackets)	Equation used	Value for each related product	
					Sludge ^a	Water ^b
Carbon content ratio α_C	$n_{O_2,decay}$	Moles of O ₂ for decay	4.35 (4.015-6.55)	Eq. 10	$\alpha_{C,sludge}$ 0.451	$\alpha_{C,water}$ 0.549
	$n_{O_2,synthesis}$	Moles of O ₂ for biomass synthesis	8.8			
	$m_{biomass}$	Biomass molar mass	113			
	$\%_{C,sludge}$	Proportion of C into the biomass	(5*12)/113			
	$m_{C,wastewater}$	quantity of COD eliminated (g)	1			
	$\%_{C,wastewater}$	Proportion of C into wastewater	(18*12)/393			
Nitrogen and carbon content ratio α_N	n_{N,NO_3}	Moles of NO ₃ ⁻ from nitrification	0.98 (0.294-0.98)	Eq. 13	$\alpha_{N,sludge}$ 0.365	$\alpha_{N,water}$ 0.635
	$n_{N,sludge}$	Moles of biomass from nitrification	0.021 (0.0063-0.021)			
	n_{DN,N_2}	Moles of N ₂ from denitrification	0.5 (0.425-0.5)			
	n_{DN,CO_2}	Moles of CO ₂ from denitrification	1.33 (1.1305-1.33)			
	$n_{DN,sludge}$	Moles of biomass from denitrification	0.222 (0.1887-0.222)			
	$n_{c,biomass}$	Nb of carbon atom into biomass	5			
	$n_{n,biomass}$	Nb of nitrogen atom into biomass	1			
	n_{n,N_2}	Nb of nitrogen atom into N ₂	2			
Phosphorus assimilation and chemical precipitation α_P	$RE_{assimilation}$	Removal efficiency by assimilation	0.3 (0.2-0.4)	Eq. 15	$\alpha_{P,sludge}$ 0.769	$\alpha_{P,water}$ 0.231
	Fe/P molar ratio		1.8 (1.5-2)			

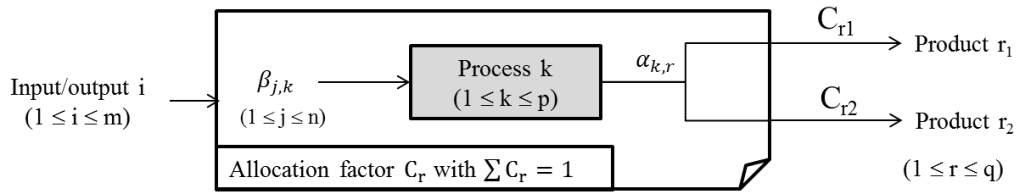
^a Value for sludge is obtained according to the equation in Table 3,

^b Value for water is obtained so that the total of each α is equal to 1.

2.3.3. Constructing the allocation factor C_{sludge}

Combining these independent process- and product-related parameters ($\beta_{j,k}$ and $\alpha_{k,r}$, respectively; Figure 23a) for coproducts r yields the allocation factor C_r , which we applied to the wastewater treatment case study (Figure 23b). C_r was developed in a four-step procedure: mathematically representing process- and product-related parameters (step 1), constructing a global allocation factor C_g , (step 2), determining a corrective inventory matrix I (step 3) and finalising C_r (step 4).

a) General framework



b) Illustrative case for wastewater treatment

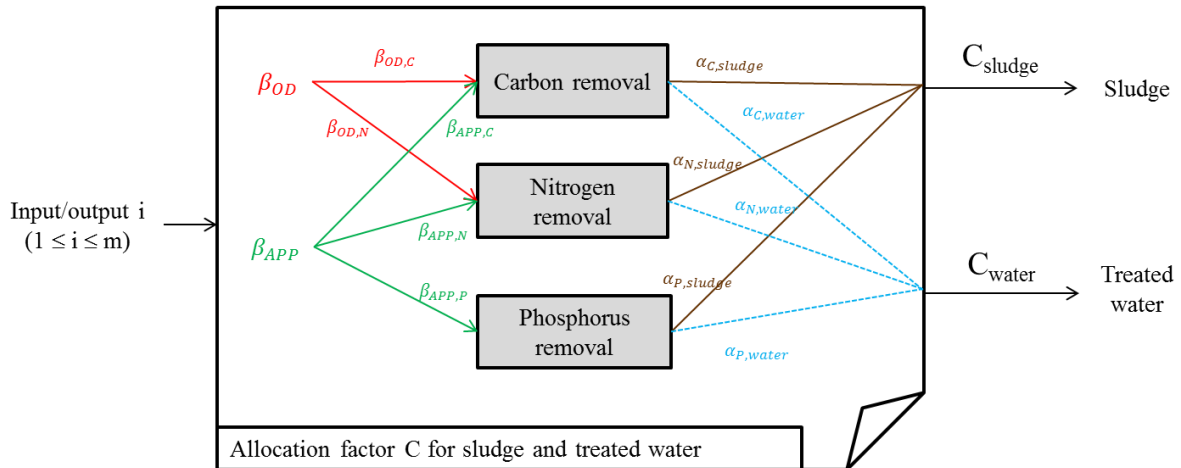


Figure 23. General framework of the construction of allocation factor C_r . (a) and application to wastewater treatment (b)

Step 1. Mathematical representation of process- and product-related parameters

Equations

The process-related parameter influences each sub-process k ($\beta_{j,k}$), and the product-related parameter influences the creation of each coproduct r ($\alpha_{k,r}$). Process-related parameters are expressed as the sum of their contribution ratios to each sub-process k (Eq. 16).

$$\delta_k = \sum_{j=1}^n \beta_{j,k} \quad (\text{Eq. 16})$$

As ratios must range from 0 to 1, δ_k is scaled down by dividing it by the total number of process-related parameters n , which makes δ'_k a single-row matrix (Eq. 17):

$$\delta'_k = \frac{\sum_{j=1}^n \beta_{j,k}}{n} \quad (\text{Eq. 17}) \quad \text{with } \sum_{k=1}^p \delta'_k = 1$$

Product-related parameters are represented in matrix P , with terms $\alpha_{k,r}$:

$$P = \begin{pmatrix} \alpha_{1,1} & \dots & \alpha_{1,r} & \dots & \alpha_{1,q} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \alpha_{k,1} & \dots & \alpha_{k,r} & \dots & \alpha_{k,q} \\ \vdots & \ddots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \alpha_{p,1} & \dots & \alpha_{p,r} & \dots & \alpha_{p,q} \end{pmatrix} \text{ with } 1 \leq r \leq q \text{ and } 1 \leq k \leq p$$

Application to wastewater treatment parameters

For wastewater treatment, the contribution ratio of each process-related parameter of each sub-process was then calculated using the process-related parameter calculated in the previous section (Table 2):

$$\delta'_C = \frac{\beta_{OD,C} + \beta_{AAP,C}}{n} = 0.422; \delta'_N = \frac{\beta_{OD,N} + \beta_{AAP,N}}{n} = 0.467; \delta'_P = \frac{\beta_{AAP,P}}{n} = 0.111$$

Thus, $\delta'_k = (0.422 \quad 0.467 \quad 0.111)$

Next, the contribution ratio of each product-related parameter was calculated (Table 3):

$$P = \begin{pmatrix} \alpha_{C,\text{sludge}} & \alpha_{C,\text{water}} \\ \alpha_{N,\text{sludge}} & \alpha_{N,\text{water}} \\ \alpha_{P,\text{sludge}} & \alpha_{P,\text{water}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0.451 & 0.549 \\ 0.365 & 0.635 \\ 0.769 & 0.231 \end{pmatrix}$$

Step 2. Constructing a global allocation factor C_g

The global allocation factor C_g was constructed by multiplying δ'_k by matrix P (Eq. 18). The result is a matrix composed of $\delta'_k \alpha_{k,r}$ terms that allocates each environmental burden to the product and sub-process from which it originated.

$$C_g = \delta'_k \cdot P = \delta'_k \alpha_{k,r} \quad (\text{Eq. 18})$$

$$\text{with } 1 \leq k \leq p, 1 \leq r \leq q \text{ and } \sum_{k=1}^p \sum_{r=1}^q (\delta'_k \alpha_{k,r}) = 1$$

C_g took the following form for wastewater treatment:

$$C_g = \begin{pmatrix} 0.191 & 0.232 \\ 0.170 & 0.296 \\ 0.085 & 0.026 \end{pmatrix}$$

Step 3. Determining a corrective inventory matrix I

Economic and environmental flows are used or created by one or more sub-processes, while others are used or generated by the entire process (i.e. all sub-processes). A corrective inventory matrix I, with terms $\lambda_{i,k}$, is created to adjust C_g by specifying whether inputs/outputs i (range = 1-m, in rows) are used or created by sub-processes k (range = 1-p, in columns). Matrix I contains only ones and zeros, the formers indicate inputs/outputs i are used or created by sub-process k, the latter they are not.

LCI data (Table 4) came from a French WWTP that can treat up to 140 000 population equivalents and are provided for the annual production of 3 120 000 kg dry matter of sludge, which yields 25 317 kg of P. Matrix I had five rows for flows of electricity, infrastructure, reactants, and CO₂ and N₂O emissions and three columns for C, N and P removal sub-processes. Because the first two flows were used within all sub-processes and the other three were specific

to P, C, and N removal, respectively, matrix I took the form: $I = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}$.

Table 4. Inventory data used to illustrate the corrective inventory matrix and the environmental burdens of wastewater treatment considered as two mono-functional processes (annual data given for the production of 25 317 kg of P leaving the WWTP as sludge). C_{sludge} refers to the allocation factor for sludge production.

	Sludge production	Treated water production
Economic flows (Ec)		
Electricity (in kWh)	3 527 855 * C_{sludge}	3 527 855 * (1 – C_{sludge})
Infrastructure resources (in p) ^a	0.033 * C_{sludge}	0.033 * (1 – C_{sludge})
Reactants (in liter)	36 500 * C_{sludge}	36 500 * (1 – C_{sludge})
Sludge (in kg dry matter)	3 120 000	
Treated water (in m ³)		9 830 000
Environmental flows (Ev)		
CO ₂ (in kg)	1 431 586 * C_{sludge}	1 431 586 * (1 – C_{sludge})
N ₂ O (in kg)	1 133 * C_{sludge}	1 133 * (1 – C_{sludge})

^a Infrastructure resources refer to the construction of buildings and equipment used for each process unit (p), life time is assumed to be 30 years.

Step 4. Finalising allocation factor C_r

Allocation factor C_r was finalised by multiplying the global allocation factor (C_g) by matrix I (Eq. 19):

$$C_{i,r} = I \cdot C_g \quad (\text{Eq. 19})$$

As the sum of allocation factors of each input/output i must equal 1, C_r was scaled down by dividing each element in a row by the sum of each row in matrix $C_{i,r}$ (Eq. 20):

$$C_r = \frac{C_{i,r}}{\sum_{r=1}^q C_{i,r}} \quad (\text{Eq. 20})$$

The corrected allocation factor C_r results in a matrix in which rows represent allocation factors for each input/output i and columns represent allocation factors for each coproduct.

For wastewater treatment, the first and second columns in matrix C_r represented corrected allocation factors for sludge (C_{sludge}) and treated water (C_{water}), respectively:

$$C_{i,r} = \begin{bmatrix} 0.446 & 0.554 \\ 0.446 & 0.554 \\ 0.085 & 0.026 \\ 0.191 & 0.232 \\ 0.170 & 0.296 \end{bmatrix}, \text{ thus, } C_r = \begin{bmatrix} 0.45 & 0.55 \\ 0.45 & 0.55 \\ 0.77 & 0.23 \\ 0.45 & 0.55 \\ 0.37 & 0.63 \end{bmatrix} \text{ leading to } C_{\text{sludge}} = \begin{bmatrix} 0.45 \\ 0.45 \\ 0.77 \\ 0.45 \\ 0.36 \end{bmatrix} \text{ and } C_{\text{water}} = \begin{bmatrix} 0.55 \\ 0.55 \\ 0.23 \\ 0.55 \\ 0.63 \end{bmatrix}$$

Thus, based on the LCI, the C_{sludge} matrix indicated the percentages of environmental burdens that should be allocated to sludge production: 45% of electricity and infrastructure resources, 77% of reactant resources, 45% of CO₂ emissions and 36% of N₂O emissions.

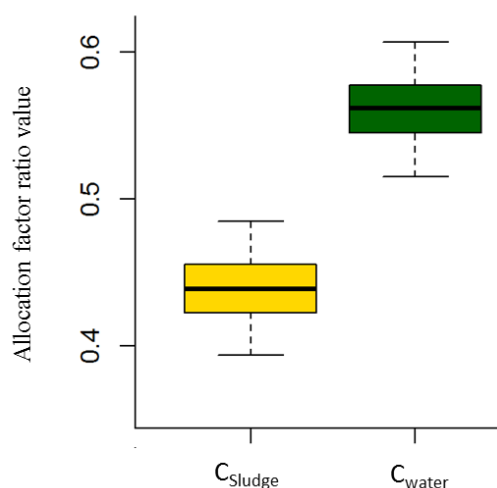
2.3.4. Robustness of allocation factor C_{sludge} for sludge production

Sensitivity analysis was performed for allocation factor C_{sludge} to assess the latter's relevance for sludge production. C_{sludge} equals the sum of global allocation factors C_g for sludge (i.e. first column of matrix C_g) and is equivalent to the value calculated when inputs/outputs of all sub-processes are used (i.e. $C_{\text{sludge}} = 0.45$). The sensitivity analysis focused on 11 variables used to calculate process- and product-related parameters (Table 2 and Table 3). Supplementary Information provides detailed explanation of how each one's range of variation was determined (cf. Annexe 1).

A complete factorial experimental design was performed using R software (Isoz and Kolani, 2017) to assess the robustness of C_{sludge} in response to variation in these 11 variables and the relative influence of these 11 variables on it. The complete factorial design resulted in 3¹¹ possible combinations, which yielded many values for C_{sludge} (box plot representation, Figure 24a). Minimum and maximum values of C_{sludge} , which had a median value of 0.437, varied by no more than 10%, mainly because the nature of the parameters caused them to have small ranges of variation. Statistical analysis of the influence of parameters on C_{sludge} indicated that the stoichiometric parameters used for N or P removal had little influence. Only the number of moles of oxygen used for bacterial decay ($n_{O_2, \text{decay}}$) had an influence (Figure 24b), decreasing

C_{sludge} as $n_{O2,decay}$ increased. However, the range of variation in $n_{O2,decay}$ varied C_{sludge} by only 3%. Thus, the C_{sludge} calculated seemed relevant within the range of values used.

a) Box plot results



	Min	1st quartile	Median	3rd quartile	Max
C_{sludge}	0.389	0.425	0.437	0.450	0.489
C_{water}	0.511	0.550	0.563	0.575	0.611

b) Main effects plot for C_{sludge}

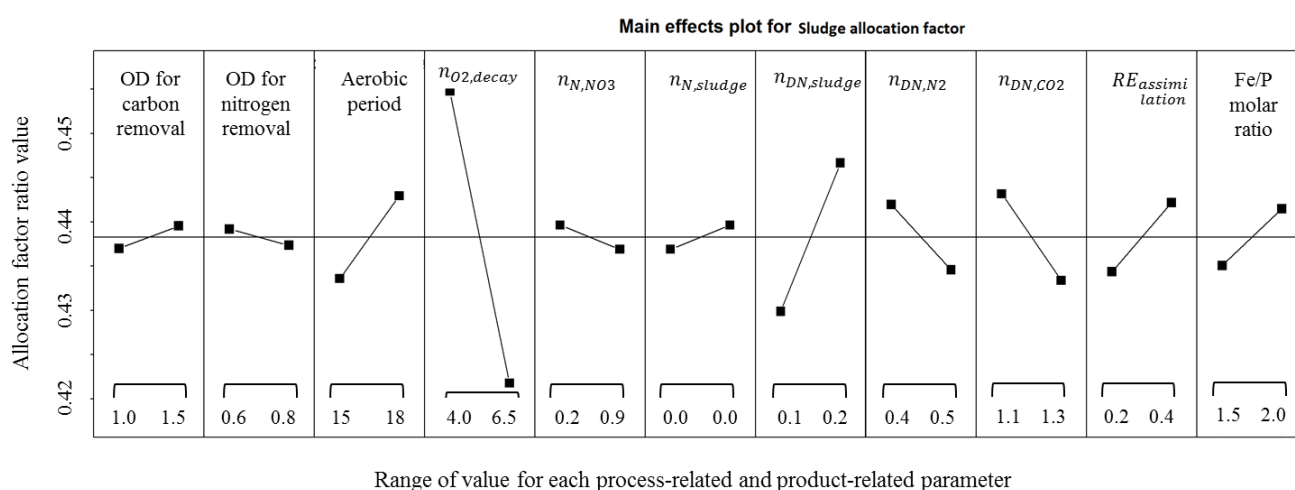


Figure 24. Sensitivity analysis results for the allocation factor C_{sludge} for sludge production with (a) box plot representation of the % of the allocation value for each coproduct, (b) the effect of the range of variability for each parameter on the allocation factor result

2.3.5. Benefits of the method for LCA allocation

The allocation factor developed in this study can be used as-is in LCA of sludge production when assessing environmental impacts of sludge-based products. However, in practice, using it requires more mathematical modelling. LCI flows (Table 4) can be represented as a square matrix (I') that contains zeros except for diagonal elements, each of which represents a flow (i.e. electricity, infrastructure resources, reactants, and CO₂ and N₂O emissions, respectively). This matrix must be multiplied by allocation factor C_r (Eq. 20) so that the resulting matrix has a shape that can replace $B_* \cdot A_*^{-1}$ in Eq. 2. In the wastewater treatment case study:

$$I' = \begin{bmatrix} 3\,527\,855 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.033 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 36\,500 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1\,431\,586 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1\,133 \end{bmatrix}$$

and Eq. 2 can be transformed as follows:

$$g_* = I' \cdot C_r \cdot f \quad (\text{Eq. 21})$$

The allocated inventory flow g_* for sludge production is calculated by considering that the vector f represents the scaled functional unit (i.e. if 25 317 kg of P are produced and the functional unit is set to 1 kg of P, f equals 3.95E-05):

$$g_* = \begin{bmatrix} 3\,527\,855 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.033 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 36\,500 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1\,431\,586 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1\,133 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 0.45 \\ 0.45 \\ 0.77 \\ 0.45 \\ 0.36 \end{bmatrix} \cdot [3.65E - 05] = \begin{bmatrix} 62.15 \\ 5.8E - 07 \\ 1.10 \\ 25.56 \\ 0.016 \end{bmatrix}$$

This simplified mathematical modelling is one way to assess environmental impacts of sludge production using a technology-oriented allocation factor.

2.4. Discussion

The importance of modelling the system and determining the process- and product-related parameters and their values are key issues in determining the developed allocation factor, and are therefore discussed below.

2.4.1. Importance of system modelling in constructing C_{sludge}

Allocation factors depend strongly on how the system is modelled. The allocation factor for sludge production was based on a mesoscopic approach to consider the sub-processes that produce sludge. This approach allows for accurate description of system functioning because the process- and product-related parameters focus on operational process functioning and product creation, respectively. This approach is technologically oriented, and performances of wastewater treatment and mechanisms involved in sludge production are reflected in the allocation factor. Dividing the system into sub-processes, however, required a wastewater

treatment expert to adequately identify and model the sub-processes as individual unit processes.

The WWTP was modelled as an aerobic activated sludge process, for which the allocation factor calculated is valid. Other biological processes are available to treat wastewater, however, such as attached growth systems, or extensive processes such as reed bed filters. Validating the allocation factor for sludge production requires in-depth analysis of such systems to identify whether the process- and product-related parameters are also valid for these systems and the allocation factor developed.

2.4.2. Determining the process- and product-related parameters used to construct C_{sludge}

Two critical steps are necessary to construct allocation factor C_{sludge} : (i) identifying the process- and product-related parameters and (ii) determining their values and how to calculate $\alpha_{k,r}$ and $\beta_{j,k}$ ratios.

Identifying parameters

From a mathematical viewpoint, there is no limit to the number of process- and product-related parameters that can be used to construct the allocation factor. Identifying these parameters is extremely important because they must be relevant and reflect the process performances. This requires selecting the parameters that influence process functioning and product creation the most. Because the process functioning is well known, the parameters can be identified with a qualitative or quantitative mechanistic approach. In the present study, the most relevant process- and product-related parameters were identified with a qualitative method that required the help of experts in corresponding technical and scientific domains. This approach ensures that appropriate parameters are used, but remains subjective because they are based on expert opinion. A quantitative method, based on process modelling, is more appropriate when the allocation factor is used to optimise processes to reduce their environmental impacts. Examples include (i) activated sludge models (Henze et al., 2000), (ii) a data-driven approach that identifies useful patterns and models using algorithms based on statistics and artificial intelligence (Wei, 2013), and (iii) empirical modelling based on artificial neural networks and multivariate polynomial regression (Raduly et al., 2015).

Determining parameter values

Once parameters are identified, the second key issue is to determine their values. In the present study, standard values from legislation for P removal and those used to calculate WWTP capacity for C and N removal were considered under the supervision of technical experts. This enables using the allocation factor for wastewater treatment systems similar to the system modelled. The allocation factor can be used as-is in LCA studies without further calculations. These standard values, however, do not consider characteristics that may be specific to certain wastewater treatment processes. This might be restrictive if the allocation factor is used with the aim of decreasing environmental impacts of sludge-based products. In this context,

parameter values should come from measurements and model predictions in priority, then on expert opinion and literature data.

2.4.3. Robustness of C_{sludge}

Determining the allocation factor comes with uncertainties. Uncertainties occur when real process operations are simplified and processes are subdivided. Identifying parameters and determining their values is also a source of uncertainty in calculating the allocation factor. Further uncertainty occurs in assuming that relationships between process- and product-related parameters are linear. Linear modelling is common in LCA because process models are developed for an average operating status without considering time dependencies and substance-specific wastewater composition. It may thus oversimplify modelling of processes technologies (Köhler et al., 2007).

To decrease the uncertainty in determining product- and process-related parameters, uncertainty analysis is recommended for the chosen parameters and the calculated ratios to highlight the robustness of the allocation factor and the most influent parameters. Determination of $\alpha_{k,r}$ and $\beta_{j,k}$ requires more caution if the allocation factor varies greatly when the process- or product-related parameters vary. If the allocation factor varies little, it can be argued that determination of these process- and product-related parameters is relevant and the allocation factor is robust.

2.5. Conclusion

This study used a modelling approach to allocate environmental burdens of wastewater treatment between sludge and treated water based on the technological efficiency of the treatment processes. The approach considers possible links between processes and products according to their respective related parameters to calculate an allocation factor following a matrix-based approach. Technical and scientific expert opinions were used to determine these parameters to base allocation factor calculation on realistic data not founded on arbitrary choices. Two process-related parameters and three product-related parameters were identified and combined to calculate the allocation factor for sludge production. The allocation factor was approximately 45% and ranged from 39-49% depending on the values of each parameter in the calculation. Finally, determining these parameters requires careful consideration to avoid uncertainty. Specific models, experimental results, and expert opinion can provide relevant values for each process- and product-related parameter.

2.6. References

Alvarez-Gaitan, J.P., Peters, G.M., Short, M.D., Schulz, M., Moore, S., 2013. Understanding the impacts of allocation approaches during process based life cycle assessment of water treatment chemicals. *Integrated Environmental Assessment and Management* 10, 87-94.

- Angenent, L.T., Karim, K., Al-Dahhan, M.H., Domiguez-Espinosa, R., 2004. Production of bioenergy and biochemicals from industrial and agricultural wastewater. *Trends in Biotechnology* 22, 477-485.
- Azapagic, A., Clift, R., 1999a. Allocation of environmental burdens in co-product systems: Product-related burdens (Part 1). *The International Journal of Life Cycle Assessment* 4, 357-369.
- Azapagic, A., Clift, R., 1999b. Allocation of environmental burdens in multiple-function systems. *Journal of Cleaner Production* 7, 101-119.
- Azapagic, A., Clift, R., 2000. Allocation of environmental burdens in co-product systems: Process and product-related burdens (part 2). *The International Journal of Life Cycle Assessment* 5, 31-36.
- Bond, T., Brouckaert, C.J., Foxon, K.M., Buckley, C.A., 2012. A critical review of experimental and predicted methane generation from anaerobic codigestion. *Water Science and Technology* 65, 183-189.
- Bridle, T.R., Pritchard, D., 2004. Energy and nutrient recovery from sewage sludge via pyrolysis. *Water Science and Technology* 50, 169-175.
- Canler, J.P., Choubert, J.M., 2007. Les clarifloculateurs plus particulièrement utilisés en traitement tertiaire, Dossier technique, FNDAE n°35, p. 80.
- Cao, Y., Pawlowski, A., 2012. Sewage sludge-to-energy approaches based on anaerobic digestion and pyrolysis: Brief overview and energy efficiency assessment. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 16, 1657-1665.
- CEC, 2008. Council directive of 19 November 2008 on waste and repealing certain Directives (2008/98/EC). *Official Journal of the European Communities*.
- CEC, 2017. Report from the commission to the European parliament, the council, the European economic and social committee and the committee of the regions on the implementation of the Circular Economy Action Plan. European Commission, p. 14.
- Chen, C., Habert, G., Bouzidi, Y., Jullien, A., Ventura, A., 2010. LCA allocation procedure used as an incitative method for waste recycling: An application to mineral additions in concrete. *Resources, Conservation and Recycling* 54, 1231-1240.
- Cieřlik, B.M., Namieřnik, J., Konieczka, P., 2015. Review of sewage sludge management: standards, regulations and analytical methods. *Journal of Cleaner Production* 90, 1-15.
- Cruze, N.B., Goel, P.K., Bakshi, B.R., 2014a. Allocation in life cycle inventory: partial set of solutions to an ill-posed problem. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 19, 1854-1865.
- Cruze, N.B., Goel, P.K., Bakshi, B.R., 2014b. Revisiting least squares techniques for the purposes of allocation in life cycle inventory. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 19, 1733-1744.

- Curran, M.A., 2007a. Co-product and input allocation approaches for creating life cycle inventory data: a literature review. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 12, 65-78.
- Curran, M.A., 2007b. Studying the effect on system preference by varying coproduct allocation in creating life-cycle inventory. *Environmental Science & Technology* 41, 7145–7151.
- De Gioannis, G., Muntoni, A., Poletti, A., Pomi, R., 2013. A review of dark fermentative hydrogen production from biodegradable municipal waste fractions. *Waste Management* 33, 1345-1361.
- Degrémont, 2005. *Memento technique de l'eau*. Dixième édition. Lavoisier SAS.
- Deronzier, G., Schétrite, S., Racault, Y., Canler, J.P., Liénard, A., Héduit, A., Duchène, P., 2001. *Traitement de l'azote dans les stations d'épuration biologique des petites collectivités*, Document technique FNDAE n°25, p. 79.
- Egle, L., Rechberger, H., Zessner, M., 2015. Overview and description of technologies for recovering phosphorus from municipal wastewater. *Resources, Conservation and Recycling* 105, Part B, 325-346.
- Ekvall, T., Tillman, A.-M., 1997. Open-loop recycling: Criteria for allocation procedures. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 2, 155-162.
- Eurostat, 2017. European statistical database. <http://ec.europa.eu/eurostat/data/database>
- FAO, 2014. Environmental performance of animal feeds supply chains. Available at: http://www.fao.org/fileadmin/user_upload/benchmarking/docs/LEAP_Anima_feeds_DRAFT.pdf. April 2017).
- Fonts, I., Gea, G., Azuara, M., Abrego, J., Arauzo, J., 2012. Sewage sludge pyrolysis for liquid production: A review. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 16, 2781-2805.
- Hadi, P., Xu, M., Ning, C., Lin, C.S.K., McKay, G., 2015. A critical review on preparation, characterization and utilization of sludge-derived activated carbons for wastewater treatment. *Chemical Engineering Journal* 260, 895-906.
- Hahn, H., 2012. *Chemical Water and Wastewater Treatment V*, 8th Gothenburg Symposium September 07-09, 1998 Springer Science & Business Media, Prague, Czech Republic, p. 414.
- Hanes, R.J., Cruze, N.B., Goel, P.K., Bakshi, B.R., 2015. Allocation games: addressing the ill-posed nature of allocation in life-cycle inventories. *Environmental Science & Technology* 49, 7996-8003.
- Heijungs, R., 2010. Sensitivity coefficients for matrix-based LCA. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 15, 511-520.
- Heijungs, R., Frischknecht, R., 1998. A special view on the nature of the allocation problem. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 3, 321-332.
- Heijungs, R., Suh, S., 2002. *The computational structure of life cycle assessment*, Kluwer, Dordrecht.

- Heijungs, R., Tan, R.R., 2010. Rigorous proof of fuzzy error propagation with matrix-based LCI. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 15, 1014-1019.
- Henze, M., Gujer, W., Mino, T., van Loosdrecht, M., 2000. Activated Sludge Models ASM1, ASM2, ASM2d and ASM3, IWA Task Group on Mathematical Modelling for Design and Operation of Biological Wastewater Treatment. IWA Publishing, p. 122.
- IDF, 2010. A common carbon footprint approach for dairy In: *Bull. Int. Dairy.*, p 445.
- ILCD Handbook, 2010. ILCD Handbook: General guide for Life Cycle Assessment - Detailed guidance, p. 417.
- ISO, 2006a. ISO 14040 - Environmental management - Life cycle assessment - Principles and framework.
- ISO, 2006b. ISO 14044 - Environmental management - Life cycle assessment - Requires and guidelines.
- Isoz, V., Kolani, D., 2017. R - statistical software, one software to Rule them all - Cookbook, p. 1662.
- Johansson, K., Perzon, M., Froling, M., Mossakowska, A., Svanstrom, M., 2008. Sewage sludge handling with phosphorus utilization: life cycle assessment of four alternatives. *Journal of Cleaner Production* 16, 135-151.
- Jung, J., von der Assen, N., Bardow, A., 2013. Comparative LCA of multi-product processes with non-common products: a systematic approach applied to chlorine electrolysis technologies. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 18, 828-839.
- Jung, J., von der Assen, N., Bardow, A., 2014. Sensitivity coefficient-based uncertainty analysis for multi-functionality in LCA. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 19, 661-676.
- Kalinci, Y., Hepbasli, A., Dincer, I., 2009. Biomass-based hydrogen production: A review and analysis. *International Journal of Hydrogen Energy* 34, 8799-8817.
- Kargbo, D.M., 2010. Biodiesel Production from Municipal Sewage Sludges. *Energy & Fuels* 24, 2791-2794.
- Kim, S., Overcash, M., 2000. Allocation Procedure in Multi-Output Process: An Illustration of ISO 14041. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 5, 221-228.
- Köhler, A., Hellweg, S., Recan, E., Hungerbühler, K., 2007. Input-dependent life-cycle inventory model of industrial wastewater-treatment processes in the chemical sector. *Environmental Science & Technology* 41, 5515-5522.
- Lederer, J., Rechberger, H., 2010. Comparative goal-oriented assessment of conventional and alternative sewage sludge treatment options. *Waste Management* 30, 1043-1056.
- Mackenzie, S.G., Leinonen, I., Kyriazakis, I., 2017. The need for co-product allocation in the life cycle assessment of agricultural systems-is "biophysical" allocation progress? *The International Journal of Life Cycle Assessment* 22, 128-137.

- Majeau-Bettez, G., Wood, R., Strømman, A.H., 2014. Unified theory of allocations and constructs in life cycle assessment and input-output analysis. *Journal of Industrial Ecology* 18, 747-770.
- Manara, P., Zabaniotou, A., 2012. Towards sewage sludge based biofuels via thermochemical conversion - A review. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 16, 2566-2582.
- Marvuglia, A., Cellura, M., Heijungs, R., 2010. Toward a solution of allocation in life cycle inventories: the use of least-squares techniques. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 15, 1020-1040.
- MEEM, 2016. Économie circulaire - Les avancées de la loi de transition énergétique pour la croissance verte - Plan de réduction et de valorisation des déchets 2025 - Contribution à la stratégie nationale de transition vers l'économie circulaire, p. 28.
- Mehta, C.M., Khunjar, W.O., Nguyen, V., Tait, S., Batstone, D.J., 2015. Technologies to Recover Nutrients from Waste Streams: A Critical Review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 45, 385-427.
- Mills, N., Pearce, P., Farrow, J., Thorpe, R.B., Kirkby, N.F., 2014. Environmental & economic life cycle assessment of current & future sewage sludge to energy technologies. *Waste Management* 34, 185-195.
- Mudhoo, A., Forster-Carneiro, T., Sanchez, A., 2011. Biohydrogen production and bioprocess enhancement: A review. *Critical Reviews in Biotechnology* 31, 250-263.
- Pelletier, N., Ardente, F., Brandão, M., De Camillis, C., Pennington, D., 2015. Rationales for and limitations of preferred solutions for multi-functionality problems in LCA: is increased consistency possible? *The International Journal of Life Cycle Assessment* 20, 74-86.
- Pradel, M., Aissani, L., Villot, J., Baudez, J.-C., Laforest, V., 2016. From waste to added value product: towards a paradigm shift in life cycle assessment applied to wastewater sludge – a review. *Journal of Cleaner Production* 131, 60-75.
- Qasim, S.R., 1998. *Wastewater Treatment Plants: Planning, Design, and Operation*. Second Edition, CRC Press.
- Raduly, B., Capodaglio, A.G., Vacari, D.A., 2015. Empirical modelling of wastewater treatment processes - An approach to model reduction and integration, p. 7. Available at: http://apuss.insa-lyon.fr/CityNet/paper_botond_raduly.pdf
- Rahman, M.M., Salleh, M.A.M., Rashid, U., Ahsan, A., Hossain, M.M., Ra, C.S., 2014. Production of slow release crystal fertilizer from wastewaters through struvite crystallization – A review. *Arabian Journal of Chemistry* 7, 139-155.
- Remy, C., 2015. Life Cycle Assessment of selected processes for P recovery from sewage sludge, sludge liquor, or ash, Report from P-Rex project, p. 86.
- Rulkens, W., 2008. Sewage sludge as a biomass resource for the production of energy: Overview and assessment of the various options. *Energy & Fuels* 22, 9-15.

- Siddiquee, M.N., Rohani, S., 2011. Lipid extraction and biodiesel production from municipal sewage sludges: A review. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 15, 1067-1072.
- Smith, K.M., Fowler, G.D., Pullket, S., Graham, N.J.D., 2009. Sewage sludge-based adsorbents: A review of their production, properties and use in water treatment applications. *Water Research* 43, 2569-2594.
- Stricker, A.E., Héduit, A., 2010. Phosphore des eaux usées - Etat des lieux et perspectives, Rapport final, Onema-Cemagref, p. 54.
- Suh, S., Weidema, B.P., Schmidt, J.H., Heijungs, R., 2010. Generalized make and use framework for allocation in life cycle assessment. *Journal of Industrial Ecology* 14, 335-353.
- Tyagi, V.K., Lo, S.-L., 2013. Sludge: A waste or renewable source for energy and resources recovery? *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 25, 708-728.
- van der Werf, H.M.G., Nguyen, T.T.H., 2015. Construction cost of plant compounds provides a physical relationship for co-product allocation in life cycle assessment. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 20, 777-784.
- Wang, H., Brown, S.L., Magesan, G.N., Slade, A.H., Quintern, M., Clinton, P.W., Payn, T.W., 2008. Technological options for the management of biosolids. *Environmental Science and Pollution Research* 15, 308-317.
- Wang, R., Work, D., 2014. Application of robust optimization in matrix-based LCI for decision making under uncertainty. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 19, 1110-1118.
- Wei, X., 2013. Modelling and optimization of wastewater treatment process with a data-driven approach. University of Iowa. Available at : <http://ir.uiowa.edu/cgi/viewcontent.cgi?article=4788&context=etd>
- Weidema, B., 2017. In Search of a Consistent Solution to Allocation of Joint Production. *Journal of Industrial Ecology*, 11.
- Xu, G., Zou, J., Li, G., 2008. Ceramsite Made with Water and Wastewater Sludge and its Characteristics Affected by SiO₂ and Al₂O₃. *Environmental Science & Technology* 42, 7417-7423.
- Yoshida, H., Christensen, T.H., Scheutz, C., 2013. Life cycle assessment of sewage sludge management: A review. *Waste Manage. Res.* 31, 1083-1101.

3. Conclusion

La constitution d'un facteur d'allocation permettant d'allouer les impacts environnementaux du traitement de l'eau usée entre la boue et l'eau épurée a été proposée dans ce chapitre.

Ce facteur d'allocation, reposant sur des paramètres produits et procédés, permet de rendre compte des relations physiques causales du système. Le choix des paramètres et les valeurs associées est basé sur une approche mécaniste qualitative. L'ensemble des critères et les valeurs associées ont été définis à dire d'expert sur la base d'une connaissance poussée du fonctionnement du procédé de traitement de l'eau usée et des phénomènes physico-chimiques à l'origine des produits générés (élimination de la matière organique, de l'azote et du phosphore).

La méthode de constitution du facteur d'allocation proposée pour le traitement de l'eau usée et la production de boue peut également être appliquée pour tout système de production combinée indivisible mettant en œuvre des procédés de séparation (qu'ils soient biologiques, physiques, chimiques, thermique, etc.). Un exemple d'application de la méthode est proposé sur un système de séparation thermique, le raffinage du pétrole, en Annexe 2.

Dans le cas où cette méthode devrait être transposée à des systèmes de production combinée indivisible mettant en œuvre des procédés de séparation générant des produits déchet-sourcés, les paramètres produits et procédés doivent pouvoir être déterminés de manière pertinente. Ceci peut se faire soit qualitativement en s'appuyant sur des experts du domaine concerné connaissant parfaitement le fonctionnement de ces procédés de séparation, soit en s'appuyant sur des méthodes quantitatives de détermination des paramètres (modèles, algorithmes statistiques, etc.).

Le facteur d'allocation proposé dans ce chapitre permet d'évaluer dorénavant les impacts environnementaux liés à la production et au traitement de la boue et de comparer les impacts environnementaux des produits boue-sourcés à des produits pétro- ou minéro-sourcés de même nature.

Dans le chapitre suivant, cette méthodologie a été mise en œuvre grâce à la réalisation d'une ACV comparative. Cette ACV comparative a pour objectif d'évaluer l'intérêt environnemental de produire des fertilisants phosphatés boue-sourcés en comparaison à un fertilisant phosphaté de référence issu de ressources non renouvelables.

Chapitre 3 – Analyse du Cycle de Vie de produits fertilisants phosphatés boue-sourcé et comparaison aux fertilisants issus de ressources non renouvelables

Ce chapitre présente un exemple d'application de la méthode développée dans cette thèse. La structure de ce chapitre est limitée à l'article scientifique soumis dans *Resources, Conservation and Recycling* en août 2017 décrivant cette application. Une Analyse du Cycle de Vie a été conduite pour comparer les impacts environnementaux de fertilisants phosphatés boue-sourcés à ceux issus de ressources non renouvelables.

Un résumé du contenu de l'article est présenté ci-dessous :

Résumé

Le phosphore est une ressource non renouvelable indispensable à la vie. Le pic de production du phosphore est attendu en 2030 avec pour conséquence un épuisement de la ressource d'ici 75 à 100 ans. Étant donné que cet élément ne peut être fabriqué à partir de sources alternatives mais il peut être récupéré ou réutilisé à partir de plusieurs sources. Il est donc extrêmement important d'explorer tout approvisionnement potentiel en phosphore, y compris à partir des eaux usées urbaines. La récupération du phosphore des boues d'épuration peut fournir de nouveaux engrais phosphatés qui peuvent remplacer l'engrais phosphaté minéral au fil du temps. Cet article vise à identifier si la production d'engrais phosphaté à partir des boues d'épuration urbaine est plus durable du point de vue environnemental que la production d'engrais phosphatés à partir de ressources non renouvelables, à savoir les roches phosphatées. Afin de comparer les impacts environnementaux des produits à base de boues avec leur alternative fossile ou non renouvelable, la production des boues est considérée en allouant une partie des charges environnementales de la filière de traitement des eaux usées à la production de boues. Les résultats obtenus avec la méthode de caractérisation CML2001 mettent en évidence que les engrais à base de boues semblent moins respectueux de l'environnement que les engrais phosphatés minéraux. La contribution de la charge environnementale associée à la production de la boue peut alourdir l'impact environnemental des produits boues-sourcés qui apparaîtraient moins impactants que les engrais minéraux si les boues étaient considérées comme des déchets, c'est-à-dire sans charge environnementale. Enfin, même si le processus de récupération permet de préserver la ressource minérale de phosphore, l'équilibre reste défavorable aux produits boues-sourcés en raison des rendements de récupération du phosphore limités, de la faible teneur en phosphore des boues et du besoin élevé en énergie et réactifs pour permettre la récupération du phosphore.

L'article ci-après est la version auteur de l'article soumis dans *Resources, Conservation and Recycling* en août 2017. Les Word and Excel Supplementary Informations associés à cet article sont présentés respectivement en Annexes 3 et 4.

Une analyse de sensibilité a été conduite à l'aide de la méthode Monte Carlo pour chacun des scénarios évalués dans ce chapitre mais n'a pas été intégré dans l'article présenté. Cette analyse de sensibilité a révélé une faible sensibilité des résultats aux variations des paramètres procédés et des paramètres produits utilisés pour le calcul du facteur d'allocation. Ces résultats s'expliquent par les faibles plages de variation utilisées pour cette analyse de sensibilité (Cf. Annexe 5).

Assessing environmental impacts of phosphate fertilizer production from wastewater sludge and phosphate ore – A life cycle assessment perspective

Marilys Pradel^{a,d,*}, Lynda Aissani^{b,c}, Jonathan Villot^d Jean-Christophe Baudez^{a,e}, Valérie Laforest^d

^a Irstea, UR TSCF, Domaine des Palaquins, 40 route de Chazeuil, 03150 MONTOLDRE, France, marilys.pradel@irstea.fr

^b Irstea, UR OPAALE, 17 avenue de Cucillé, CS 64427, 35044 Rennes Cedex, France, lynda.aissani@irstea.fr

^c Université Bretagne Loire, France,

^d Université de Lyon, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, CNRS, UMR 5600 EVS, 158 cours Fauriel, 42023 Saint-Etienne Cedex 2 France, valerie.laforest@mines-stetienne.fr, jonathan.villot@mines-stetienne.fr

^e Luxembourg Institute of Science and Technology, Environmental Research and Innovation Department, 41, rue du Brill, L-4422 Belvaux, Luxembourg, jean-christophe.baudez@list.lu

*Corresponding author: telephone: (+33) 470 474 426, fax: (+33) 470 474 411, marilys.pradel@irstea.fr

Abstract

Phosphorus is a non-renewable resource essential for life. According to projections, peak in phosphorus demand will occur in 2030 and phosphorus should run out within 75 – 100 years. As this element cannot be manufactured from alternative sources, it is therefore of great concern and extremely important to explore any potential supply of phosphorus, including recovery from human excreta and urban wastewater. Phosphorus recovery from wastewater sludge can partially reduce the pressure on mineral phosphate fertilizer over time. This paper aims at highlighting if producing phosphate fertilizer from wastewater sludge is more environmentally sustainable than producing phosphate fertilizers from non-renewable resources, i.e. phosphate rocks. To compare the environmental impacts of sludge-based fertilizers with its fossil alternative, the upstream production of sludge is considered by partially allocating the wastewater treatment line environmental burdens to sludge production.

The results provided with CML2001 characterization method highlight that sludge-based fertilizers appear less environmental friendly than mineral phosphate fertilizer. The contribution of the upstream burden associated to sludge production can weight down the environmental impact of sludge-based products compared to those of mineral fertilizer. Finally, even if the recovery process makes it possible to preserve the phosphorus mineral resource, the balance remains unfavorable to the sludge-based products due to limited yields of phosphorus recovery, low phosphorus content of the sludge, and high need of energy and reagents to achieve phosphorus recovery.

Keywords

Life Cycle Assessment, phosphorus recovery, sludge-based fertilizers, mineral phosphate fertilizers, allocation

1. Introduction

Phosphorus (P) is an essential mineral resource for life development of plant, animal and humans and is therefore a vital element for life. Phosphorus is also a key component of mineral fertilizers as around 148 million tons of phosphate rock is currently used per year and 90% of global demand for phosphorus is for food production (Cordell et al., 2009). With the rapid growth of world population (estimated at 9 billion people by the mid of this century), an increasing demand for food and therefore for fertilizers is expected worldwide (Sorensen et al., 2015; Steen, 1998). However, mineral phosphorus is a non-renewable resource that cannot be substituted by another element for its primary application in fertilizer production. Reserves of phosphate rocks are found almost worldwide but 90% of the global phosphate reserves are controlled by only five countries (Morocco/Western Sahara (37%), China (26.6%), South Africa (9.7%), the United States (7.8%), and Jordan (5.8%)) so that the availability of this resource is subject to high geopolitical risks. Moreover, mineral phosphorus extraction will peak around 2030. Then the production will decrease and global reserves should start to run out within 75 – 100 years so that no more mineral phosphorus will be available at the end of the 21st century (Rosemarin et al., 2009). With the decline of the quality of reserves, the phosphate rock prices will drastically increase. The last twenty years, prices went up by 273% due to the increasing costs of extraction, processing and shipping (The World Bank, 2017). A direct impact will be an increase of the cost of producing food (Cordell et al., 2009; Rosemarin et al., 2009).

It is therefore of great concern and extremely important to explore any potential supply of phosphorus considering these constraints. Phosphorus cannot be manufactured from alternative sources but it can be recovered or reused from several sources, including human excreta. Almost 98% of the ingested phosphorus end up in wastewater and accumulate in sewage sludge (Kalmykova et al., 2015), making them an attractive resource for phosphorus recovery. Mineral and organic phosphorus can be found in sludge which can be directly applied on soil as organic fertilizer (Houot et al., 2014). However, due to several constraints (presence of metallic trace element and organic pollutant, social acceptability, etc.), new technologies are developed to extract and recover P from sludge. The production of these sludge-based phosphate fertilizers can be used with accurate safety on agricultural soils. According to Egle et al. (2015), the most promising P recovery technologies in terms of efficiency occur before and after anaerobic digestion and from sewage sludge ashes, mainly in the form of magnesium-ammonium-phosphate (struvite) or calcium phosphates (CaP).

An unsolved question remains to know what the global environmental impact of P-recovery from sludge is, compared to rock extraction. Some studies attempt to assess the environmental impact of sludge used as phosphate fertilizer based on Life Cycle Assessment. Johansson et al. (2008) and Linderholm et al. (2012) compared four alternative routes of sludge handling with phosphorus utilization as fertilizer on agricultural soils while Bradford-Hartkle et al. (2015) compared the environmental benefits and burdens of phosphorus recovery as struvite from dewatering return liquors in four centralized system. In these comparative LCAs, phosphorus recovery from sludge is more seen as an alternative waste treatment than a sludge-based fertilizer production and its production is therefore considered free of environment burden. In

this context, phosphorus recovery from supercritical water oxidation appeared to be the best option for Johansson et al. (2008). Direct land application of sewage sludge was the most efficient option in terms of energy and greenhouse gases emission due to the beneficial association with nitrogen in sludge for Linderholm et al. (2012). Phosphorus recovery from struvite precipitation resulted in a positive environmental impact due to power and chemical use offset by operational savings and avoided fertilizer production for Bradford-Hartkle et al. (2015).

However, Pradel et al. (2016, 2018) highlighted that once the sludge treatment look at producing sludge-based products with high-added value, sludge can no longer be seen as a waste but as a coproduct of the wastewater treatment plant. In comparative LCA case studies between sludge-based product and its fossil or non-waste alternative, the system boundaries will therefore be equal only by fully considering the life cycle of sludge-based products in the same manner than for mineral fertilizers. By considering the environmental impact of the upstream production of sludge, this paper aims at highlighting if producing phosphate fertilizer from wastewater sludge is more sustainable from an environmental point of view than producing phosphate fertilizers from non-renewable resources, i.e. phosphate rocks. To reach this goal, a Life Cycle Assessment is conducted for three sludge-based product scenarios. The goal and scope definition, the inventory data and the characterization method used for each scenario are presented in the material and methods section. Results are followed by a discussion on the overall impact of each scenario and the consequences of the allocation of an environmental burden to sludge production.

2. Material and methods

LCA is a four-step procedure based on international standards (ISO, 2006a, b). The first step consists in the definition of the goal and scope of the study, i.e., the system to be studied, its boundaries, functions, and the related functional unit (the reference all the inventory data are related to), the allocation methods used and the assumptions made. The second step is the life cycle inventory (LCI) during which all the inputs (raw material, energy) and outputs (emissions) related to each process in the system are listed and considered. The third step is the life cycle impact assessment (LCIA) which links the inputs and outputs of the system with their environmental impacts. In the final step, the results are interpreted according to the goal, the system boundaries and the assumptions that were considered.

2.1. Goal and Scope definition

In the current case, LCA is used to assess and analyze the production of phosphate fertilizer from renewable resources and non-renewable ones, respectively sewage sludge from two different wastewater treatment plants and phosphate rocks. The system boundaries, the function unit and the scenario studied are described in the following subsections.

2.1.1. System boundaries

The system includes all the processes involved in the sludge-based and mineral phosphate fertilizer production. System boundaries for sludge-based products consider both the sludge production and its treatment in a product and non-waste perspective. Impact of sludge production is assessed as a part of the wastewater treatment by the mean of an allocation factor, as defined by Pradel et al. (2018). Allocation factor C is used to partition the environmental impact between treated water and sludge production. Only sludge production is considered in the system boundaries. Sludge treatment is a chain of different steps depending on the considered scenario: thickening, anaerobic digestion, dewatering, struvite precipitation, storage, and incineration (cf. Figure 25).

The system boundaries for mineral phosphate fertilizer refer to the production of triple super phosphate and include phosphate rock and phosphoric acid production as commonly used in the fertilizer manufacturing.

For each process, the inflows and outflows of the nitrogen, carbon and phosphorus mass balance have been quantified, as well as the system's inputs (consumption of energy, reagents, fuel) and outputs (emissions to air, water and soil). Infrastructure resources have also been considered and referred to the construction of buildings and equipment used for each process unit. Dismantlement was not included.

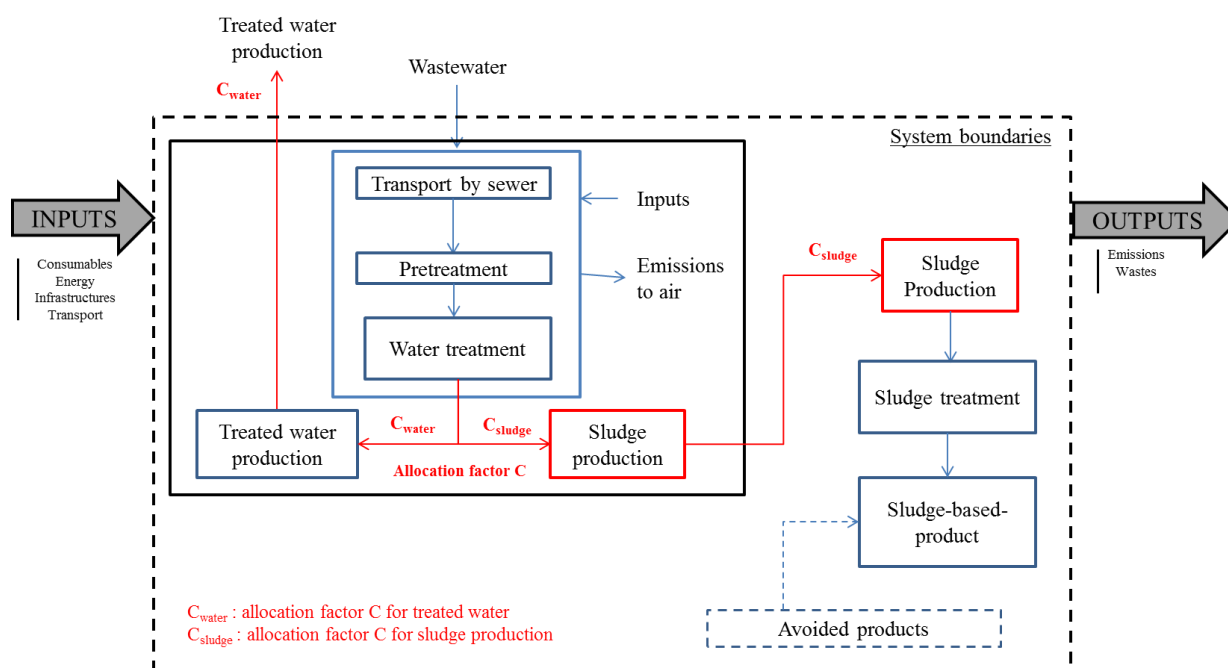


Figure 25. System boundaries of the LCA study for sludge-based products

2.1.2. Functional unit

The primary function of the studied systems is the production of phosphate fertilizer from sludge or from phosphate ore. The functional unit was therefore defined as “*the annual production of 1 kg of phosphorus ready to be used as a fertilizer*”.

The environmental impacts of sludge-based products were assessed for three scenarios providing 1 kg of P: dewatered sludge (S1), digested dewatered sludge (S2A) and struvite (S2B). These scenarios are compared to a reference scenario (Sref) providing 1 kg of P as triple super phosphate.

However, the system of sludge-based phosphorus presents some additional functions defined by energy and nutrient recovery. The first additional function is the production of heat and electricity through biogas recovery from anaerobic digestion (S2 option A and B). Heat is used to maintain the digester at its operating temperature while generated electricity is used within the wastewater treatment plant and reduces the amount of external electricity from the grid. The second additional function is the production of additional nutrient (N and K) to enrich the fertilizers. Indeed, in addition to phosphorus, sludge contains significant amounts of nitrogen and carbon while struvite only contains ammonium.

To compare sludge-based products with mineral phosphate fertilizer, system expansion by subtracting the abovementioned additional functions has been conventionally chosen, which led us to include avoided products (cf. Figure 25). As energy is reused within the system, only the additional nutrients contained in sludge-based product have been subtracted.

2.1.3. Description of the scenarios

Triple super phosphate (Sref) results from the reaction of phosphate rock originated from Morocco with phosphoric acid. In the final product, the phosphorus must be supplied as 70% acid and 30% rock. After mining, phosphate rock is processed (crushed, washed, dried, etc.) and supplied a dry-rock with 33% P_2O_5 . Phosphoric acid is produced using the dihydrate wet process method that dissolves phosphate rock with sulfuric acid and is composed of 50.7% by weight of P_2O_5 per kg of acid produced. Once processed, triple super phosphate reaches a composition of 48% P_2O_5 (Althaus et al., 2007; Nemecek and Kägi, 2007).

The dewatered sludge (S1) is provided by a wastewater treatment plant with a capacity of 140 000 population equivalent (WWTP1). The wastewater treatment line is composed of an anaerobic basin followed by an aeration basin with both aerobic and anoxic zones. This wastewater treatment configuration allows an enhanced biological phosphorus removal and nitrogen removal by nitrification and denitrification. The wastewater treatment line produces biological sludge that will produce sludge-based product. The impacts of the wastewater treatment line are allocated to sludge production according to an allocation factor described in section 2.1.2.1. Biological sludge is then thickened using a flotation thickener, dewatered with a press filter and stored.

Digested dewatered sludge (S2A) and struvite (S2B) are provided by a wastewater treatment plant with a capacity of 300 000 population equivalent (WWTP2). The wastewater treatment

line is composed of a pretreatment step where the particulate organic carbon is recovered in a primary settler in the form of primary sludge. The wastewater is then treated under both aerobic and anoxic conditions so that nitrogen can be removed by nitrification and denitrification and biological sludge is produced. As for S1, the impacts of the wastewater treatment line are both allocated to primary sludge and biological sludge production according to their respective allocation factor. After being respectively thickened by gravity and with centrifugal thickeners before entering the anaerobic digester, primary and biological sludge are blended with a ratio of 65:35. Two options for sludge-based products are then assessed. In the first option (S2A), digested sludge is dewatered with a press-filter and stored. In the second option (S2B), struvite is recovered from digested sludge using Gifhorn® process and the remaining sludge is incinerated (cf. Figure 26).

In Figure 26, red and green processes refer respectively to biological and primary sludge production that carries part of the environmental burden from wastewater treatment (dotted process) by the mean of an allocation factor C, C1 and C2.

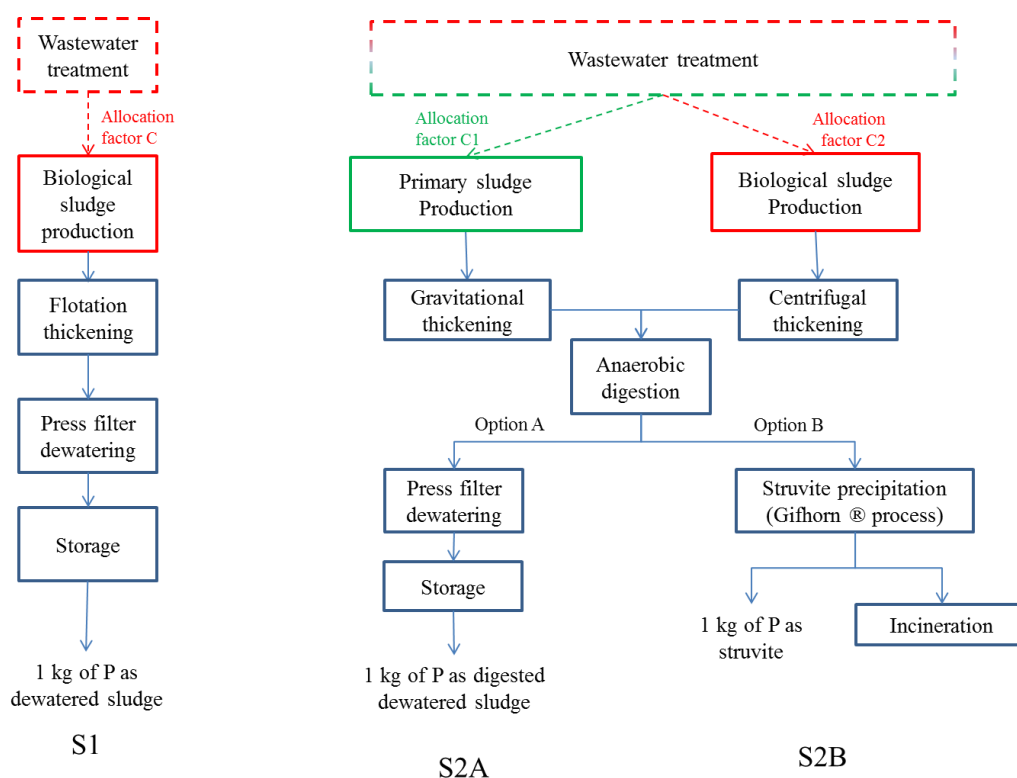


Figure 26. Scenario description for sludge-based products

2.2. Life Cycle Inventory

The mineral phosphate fertilizer scenario (Sref) is based on the triple superphosphate production taken from the Ecoinvent v2.2 database. Sludge-based phosphate fertilizer scenarios were modeled based on two French wastewater treatment plants (WWTPs). The main characteristics of these WWTPs are reported in Table 5.

The inventory input data for sludge-based scenarios were modeled using the Ecoinvent V2.2 database (Ecoinvent Professional database, 2007). Flowcharts are described in detail in Excel sheet Supporting Information (cf. Annexe 4). Calculations of infrastructure resources (including sewer network, wastewater and sludge treatment) for sludge-based products scenarios are based on a 30-year life time for wastewater and sludge treatment infrastructure resources and on a 50-year life time for sewer network. These calculations are detailed in the Word Supporting Information (cf. Annexe 3). Life cycle inventory input and output data are respectively summarized in Table 6 and Table 7.

Table 5. Average influent, average effluent and general characteristics for each wastewater treatment plant

	WWTP 1	WWTP 2
General characteristics		
Amount of treated wastewater	26 932 m ³ .d ⁻¹	38 975 m ³ .d ⁻¹
Person Equivalent (PE)	140 000	300 000
Sludge production from water treatment (on a dry matter basis)	Biological sludge: 6.03 t.d ⁻¹	Primary sludge: 5.58 t.d ⁻¹ Biological sludge: 3.57 t.d ⁻¹
Biogas production from sludge digestion	-	2,161 Nm ³ .d ⁻¹
Final product	Dewatered sludge	S2A: digested dewatered sludge S2B: struvite
Amount of phosphorus produced in final product	69.36 kg.d ⁻¹	S2A: 98.10 kg.d ⁻¹ S2B: 48.75 kg.d ⁻¹
Influent characteristics		
Chemical Oxygen Demand (COD)	475.10 mg.l ⁻¹	475.46 mg.l ⁻¹
Total Kjeldahl Nitrogen (TKN)	36.68 mg.l ⁻¹	44.59 mg.l ⁻¹
Total Phosphorus (TP)	6.21 mg.l ⁻¹	5.85 mg.l ⁻¹
Total Suspended Solids (TSS)	228.75 mg.l ⁻¹	221.60 mg.l ⁻¹
Total Organic Carbon (TOC) ^a	125.03 mg.l ⁻¹	125.12 mg.l ⁻¹
Effluent characteristics		
Chemical Oxygen Demand (COD)	18.23 mg.l ⁻¹	27.99 mg.l ⁻¹
Total Kjeldahl Nitrogen (TKN)	2.31 mg.l ⁻¹	6.63 mg.l ⁻¹
Total Phosphorus (TP)	2.45 mg.l ⁻¹	2.18 mg.l ⁻¹
Total Suspended Solids (TSS)	9.78 mg.l ⁻¹	9.06 mg.l ⁻¹
Total Organic Carbon (TOC) ^a	5.88 mg.l ⁻¹	9.03 mg.l ⁻¹

^a Total organic carbon (TOC) is calculated based on a COD/COT ratio value. This value is set at 3.8 for influent and at 3.1 for effluent (Rocher et al., 2016)

Table 6. Life cycle inventory input data for three scenarios (S1, S2A and S2B)

Inputs ^f	Unit	S1 ^c	S2A ^d	S2B ^d
Sewer network ^a	p ^b	7.90 E-07 × C	5.59 E-07 × (C1+C2)	1.12 E-06 × (C1+C2)
Pretreatment ^a	p	3.95 E-05 × C	2.79 E-05 × (C1+C2)	5.62 E-05 × (C1+C2)
Wastewater treatment line ^c				
Infrastructure resources ^a	p	1.32 E-06 × C	9.31 E-07 × (C1+C2)	1.87 E-06 × (C1+C2)
Electricity	kWh	139.35 × C	133.13 × (C1+C2)	267.90 × (C1+C2)
Sludge treatment line				
Thickening (flotation, gravity, centrifugal)				
Infrastructure resources	p	1.32 E-06	9.31 E-07	1.87 E-06
Electricity	kWh	12.86	7.83	15.76
Polymers	kg	-	0.073	0.147
Anaerobic digestion				
Infrastructure resources	p	-	18.62 E-07	3.74 E-06
Electricity	kWh	-	13.17	26.50
Grease (from primary treatment)	kg	-	5.28	10.62
Soft salt	kg	-	0.0012	0.0024
Dewatering				
Infrastructure resources	p	1.32 E-06	9.31 E-07	1.87 E-06
Electricity	kWh	4.42	8.62	-
Polymers	kg	-	0.524	-
Lime	kg	34.40	-	-
FeCl ₃	kg	18.41	-	-
HCl	g	0.038	-	-
Struvite precipitation ^e				
Infrastructure resources	p	-	-	3.74 E-06
Electricity	kWh	-	-	11.64
H ₂ SO ₄	kg	-	-	18.87
Na ₂ S	kg	-	-	20.19
NaOH	kg	-	-	13.58
Mg(OH) ₂	kg	-	-	1.30
Polymers	kg	-	-	1.054
Storage				
Electricity	kWh	0.497	-	-
Avoided products				
Ammonium nitrate	kg	-0.887	-2.03	-0.315
Peat	kg	-5.38	-2.26	-

^a Sewer network, pretreatment and infrastructures resources for water and sludge treatment are detailed in the Word Supplementary Information

^b Refer to the infrastructure unit for each process

^c Data from Renou et al. (2006) for S1

^d Data from Irstea (2016) for S2 (option A and B)

^e Data from Jossa and Remy (2015)

^f Values are presented per FU, i.e. production of 1 kg of P as sludge or struvite. Allocation factor C, C1 and C2 are used to allocate impacts of sewer network, pretreatment and water treatment line to sludge production (x refers to the multiplication sign).

Table 7. Life cycle inventory output data for three scenarios (S1, S2A and S2B)

Outputs ^c	Unit	S1	S2A	S2B
Products				
Dewatered sludge	kg _{TS}	123.24	-	-
Digested dewatered sludge	kg _{TS}	-	51.88	-
Struvite	kg	-	-	8.20
Wastewater treatment line – Emissions to air^a				
CO ₂	kg	56.55 × C	36.93 × (C1+C2)	74.32 × (C1+C2)
N ₂ O	kg	0.045 × C	0.056 × (C1+C2)	0.112 × (C1+C2)
N ₂	kg	17.84 × C	17.14 × (C1+C2)	34.48 × (C1+C2)
Sludge treatment line – Emissions to air				
Thickening (flotation, gravity, centrifugal)^b				
CH ₄	kg	0.322	0.166	0.334
CO ₂	kg	0.887	0.458	0.921
N ₂ O	kg	0.187	0.10	0.20
Anaerobic digestion – biogas leakage				
CH ₄	kg	-	1.25	2.51
CO ₂	kg	-	1.85	3.73
N ₂	kg	-	0.06	0.12
Anaerobic digestion – biogas flare				
CO ₂	kg	-	33.80	68.02
N ₂	kg	-	0.37	0.75
Anaerobic digestion – cogeneration				
CO ₂	kg	-	13.81	27.78
CO	kg	-	0.010	0.021
NO _x	kg	-	0.010	0.021
VOC	kg	-	0.002	0.004
SO _x	kg	-	0.0037	0.0075
Dewatering and struvite precipitation^b				
NH ₃	kg	0.0049	0.225	0.453
Storage^b				
CH ₄	kg	3.76	2.55	-
CO ₂	kg	10.36	7.04	-
N ₂ O	kg	0.111	0.174	-
NH ₃	kg	0.0025	0.117	-

^a Emissions were calculated from transfer coefficient provided in the Word Supplementary Information

^b Emissions factor for thickening, dewatering and storage where taken from Gourdet et al. (2017)

^c Values are presented per FU, i.e. production of 1 kg of P as sludge or struvite. Allocation factor C, C1 and C2 are used to allocate impacts of sewer network, pretreatment and water treatment line to sludge production (x refers to the multiplication sign).

2.2.1. Inventory data for sludge production

Inventory data from sludge treatment are provided in this section. The inventory data from sewer network and wastewater treatment line as well as the allocation factor used to allocate those inventory data to sludge production are also provided in the following subsections.

Data from sewer network and wastewater treatment line

Life cycle inventory data for sewer network for WWTP2 were provided by the treatment plant owner. As no data were available for WWTP1, it was assumed that the length of the network was proportional to the population (half the network of WWTP2). LCI data for sewer network were then modelled according to Risch et al. (2015). LCI data of wastewater treatment line were taken from Renou (2006) for WWTP1 (S1) and from technical documents provided by the treatment plant owner for WWTP2 (S2 option A and B). Life cycle inventory output data for wastewater treatment line is composed of emissions. These emissions were calculated according to the nitrogen, carbon and phosphorus mass balances using transfer coefficients from literature and expert opinion (Doka, 2007). The detail of the mass balances calculation is reported in Figure 32 in the Word Supporting Information (cf. Annexe 3).

Allocation factors

The determination of environmental burdens of wastewater treatment line to be allocated between sludge and water production has been done according to the method proposed by Pradel et al. (2018). This method defines an allocation factor based on process- and product-related parameters that reflect the technological performances of the wastewater treatment line. Calculation follows the four-step procedure proposed by the authors. The first and second steps consist in the determination and the mathematical formalization of process and product-related parameters and their association to define a global allocation factor. The third step is devoted to the construction of a corrective inventory matrix so that the global allocation factor will be adjusted by considering that inventory flows are in some cases specific to processes. The last step consists in the mathematical modelling of the final corrected allocation factor. Detailed calculation of the allocation factors used for S1, S2 (option A and B) are provided in the Excel sheet Supporting Information (cf. Annexe 4). A synthesis of these allocation factors is presented in Table 8.

Table 8. Allocation factors used to allocate the impact of inventory data to sludge and water production

Life Cycle inventory data concerned by the allocation factors	Allocation factors used for S1		Allocation factors used for S2 (option A and B)		
	Biological sludge (C)	Water	Primary sludge (C1)	Biological sludge (C2)	Water
Sewer network	0.45	0.55	0.58	0.18	0.24
Pretreatment	0.45	0.55	0.58	0.18	0.24
Wastewater treatment					
Primary treatment infrastructure	0	0	0.58	0.18	0.24
Secondary treatment infrastructure	0.45	0.55	0	0.42	0.58
Electricity	0.45	0.55	0	0.42	0.58
CO ₂	0.45	0.55	0	0.45	0.55
N ₂	0.37	0.63	0	0.37	0.63
N ₂ O	0.37	0.63	0	0.37	0.63

2.2.2. Inventory data for sludge treatment

Inventory data used for sludge treatment are provided for each process involved in the following subsection. Sludge treatment process performances and assumptions used to calculate emissions from the sludge treatment mass balance for S1, S2A and S2B are reported Table 17 and Table 18 in the Word Supporting Information (cf. Annexe 3).

Thickening

Because very few data have been found for flotation thickening, emissions from flotation were calculated considering the same emission factors than those of gravitational thickening. No emissions were modeled for centrifugal thickening. Methane, nitrous oxide and carbon dioxide emission factors for flotation and gravitational thickening come from Gourdet et al. (2017) and are reported in the Word Supplementary Information (cf. Annexe 3). Centrifugation thickening uses polymers comprising 50% nitric acid and 50% acrylonitrile as reagents.

Anaerobic digestion

Mesophilic anaerobic digestion process (37°C) has been considered in S2 (option A and B). Greases from pretreatment are used as an input for anaerobic digestion. Biogas lost (due to leakage leading to methane and biogenic carbon dioxide emissions to air) is estimated to 10% (upper value from IPCC, 2006). The amount of “net biogas” (i.e. not lost) is flared for 71% and cogenerated for 29%. It is assumed that all the methane contained in the biogas is transformed into CO₂ and then emitted into the air along with nitrogen and sulfur oxides generated by biogas combustion (RDC Environnement, 2007; INERIS, 2002). This process is characterized by different additional emissions including NO_x, SO_x, CO and non-methane volatile organic compounds (NMVOC).

Dewatering

Dewatering is processed in S1 and S2A scenarios using a press filter. However, sludge is conditioned with lime and iron (III) chloride in S1 while it is conditioned with polymers comprising 50% nitric acid and 50% acrylonitrile as reagents in S2A. Ammonium emissions for dewatering process are taken from Gourdet et al. (2017).

Storage

After dewatering, the sludge is stored for six months in a concrete area located in the WWTP. Sludge storage is characterized by emissions of NH_3 , N_2O , CH_4 and CO_2 . Emission factors for storage are taken from Gourdet et al. (2017).

Struvite precipitation

Struvite precipitation modeling is based on the Gifhorn® process assessed in the P-Rex project (Jossa and Remy, 2015). In the Gifhorn® process, digested sludge is directly acidified to pH 4.5 by adding H_2SO_4 in a first reactor, thus by dissolving $\text{PO}_4\text{-P}$ into the liquor which is chemically bound to the sludge. At this pH, considerable amounts of metals (Fe, but also heavy metals) are also mobilized into the sludge liquor. To prevent the transfer of Fe and heavy metals into the final P product, dissolved metals are precipitated as sulfides in a second step, by adding Na_2S . NaOH is also added to raise the pH to 5.6. Leached sludge is then dewatered in a centrifuge with polymer addition, so that highly loaded liquor and sludge are separated. In a second reactor, precipitation of the P product in liquor is initiated by small dosing of $\text{Mg}(\text{OH})_2$ to supply additional Mg and raise the pH to 9, eventually dosing NaOH for pH control. Due to the liquor composition at Gifhorn®, the P product is precipitated and recovered as struvite ($\text{NH}_4\text{MgPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$).

Incineration

The dewatered low-phosphorus sludge leaving the Gifhorn® process in S2B is sent to a municipal solid waste incinerator. The GaBi model provided by Déchaux et al. (2017) was used to model the sludge incineration impacts. This model has been chosen because of its representativeness of a French incinerator and because the waste characterization can be adapted to the case study.

2.3. Life Cycle Impact Assessment

Once the LCI was completed, the scenario was modeled with GaBi® v6 LCA software. GaBi® software has been used as energy and mass balances should be equilibrated in LCA and this software allows tracing mass and energy flows as well as a parameterized modeling. The potential environmental impacts of each scenario were assessed using a classical midpoint characterization method, CML 2001 (January 2016) (Guinée et al., 2002).

3. Results and discussion

Results are expressed for 1 kg of phosphorus produced as dewatered sludge (S1), digested dewatered sludge (S2A), struvite (S2B) and triple superphosphate (Sref). The results are analyzed in a global way and explained in section 3.1. The contribution of sludge production is identified and its weight for each scenario is discussed in section 3.2. A discussion is finally provided concerning the potential of phosphorus recovery from wastewater sludge in section 3.3. LCA results for each scenario are provided within the Excel sheet Supporting Information (cf. Annexe 4).

3.1. Impact of sludge-based and mineral phosphate fertilizers

An overview of impact contribution for each scenario is presented in this section followed by an in-depth analysis of the contributions to sludge-based product environmental impacts.

3.1.1. General overview of impact contribution for each scenario

Figure 27 shows the respective contribution of triple superphosphate production (Sref) and sludge production and treatments (S1, S2 option A and B) for each CML2001 impact category. Avoided impacts due to nutrient substitution in S1, S2A and S2B scenarios are represented with a negative value. Results are presented using the most contributing scenario as 100% reference.

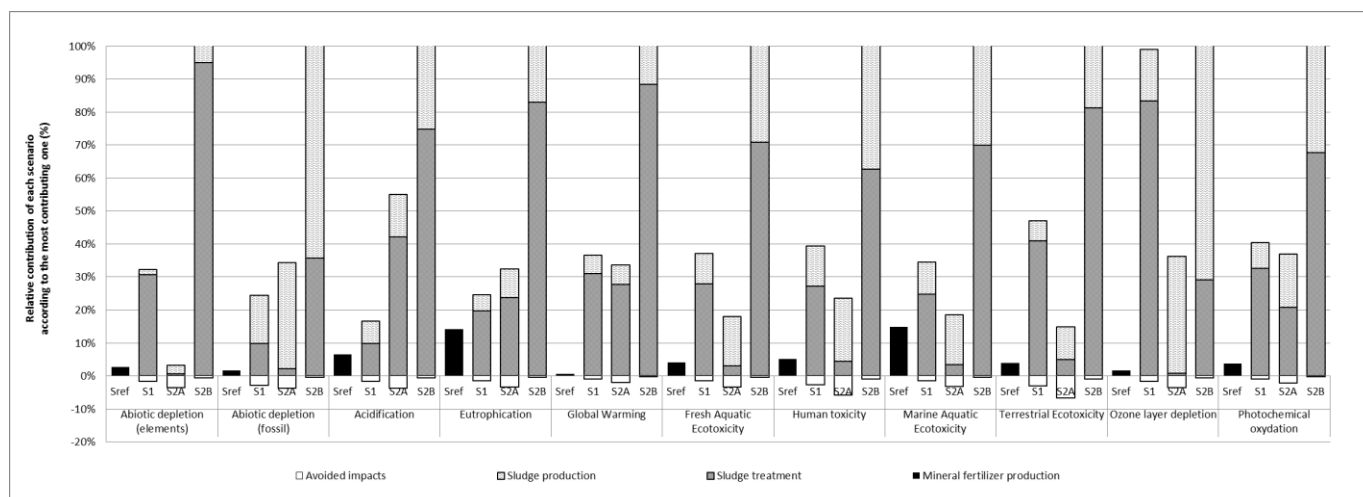


Figure 27. LCIA results for four scenarios (Sref, S1, S2A and S2B) from CML2001 characterization method

The hierarchy in the contribution for each scenario changes according to the impact category. Four main tendencies are highlighted. For Abiotic Depletion (elements), the reference scenario has a contribution equivalent to S2A but drastically lower than S1 and S2B. For Abiotic Depletion (fossil), Acidification and Eutrophication, the reference scenario has the lowest contribution followed by S1, S2A and S2B. For Global Warming and Photochemical Oxidation, S1 and S2A have equivalent contribution but their contributions are lower than S2B and greater

than the reference scenario. Finally, for toxicity impacts (Fresh, Marine and Terrestrial Ecotoxicity and Human Toxicity) and Ozone Layer Depletion, S2B has the highest contribution followed by S1, S2A and Sref.

Whatever the environmental impact, the struvite precipitation scenario (S2B) has always the highest contribution while triple superphosphate (Sref) the lowest. The reference scenario (Sref) only represents 2 to 15% of the struvite precipitation scenario (S2B), while dewatered sludge (S1) and digested dewatered sludge (S2A) represent 18 to 99 % and 4 to 55% respectively. Avoided impact are relatively low for S1 and S2B scenarios and do not offset the impact of sludge production and treatment. However, avoided impacts for S2A scenario are greater than environmental burdens associated to sludge production and treatment for Abiotic Depletion (elements). They even can offset sludge treatment impacts for Abiotic Depletion (fossil), the four toxicity impact categories and Ozone Layer Depletion.

3.1.2. In-depth analysis of contribution to sludge-based product environmental impacts

Figure 28 represents the process contribution from sludge production and treatment for each impact category. The dotted line refers to sludge treatment processes, the continuous line to sludge production processes. The nature of the contribution for each impact is synthetized in Table 9. Dewatering process used in S1 scenario presents the heaviest contribution for all the impact categories except for Global Warming due to the use of reactants, essentially FeCl_3 . Dinitrogen monoxide emitted from thickening contributes to Global Warming and Eutrophication while methane released during sludge storage contributes to Global Warming and Photochemical Oxidation. The environmental burdens allocated to the sludge production mainly come from the sewer network for both Abiotic Depletion (fossil) and Acidification while electricity used during biological treatment contributes to the Acidification impact category.

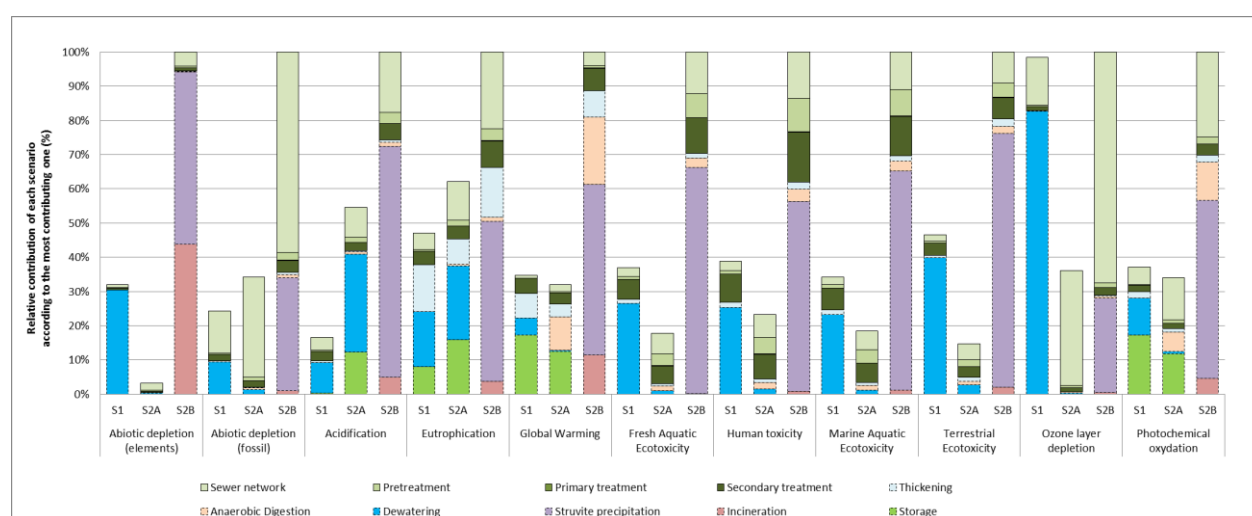


Figure 28. LCIA results without avoided impact scores from CML2001 characterization method for each sludge-based scenario (S1, S2A and S2B)

The primary sludge and biological sludge enter the sludge treatment with the same environmental load in the S2 scenario. However, the treatment proceeded to recover phosphorus in option B presents a bigger impact than option A as lot of reactants are used in the Gifhorn® process for struvite precipitation. A direct consequence is the heavier impact of sludge production in S2A scenario than in S2B scenario for all categories except Acidification, Eutrophication and Global Warming. Acidification and Eutrophication impacts for S2A are explained by the ammonia and dinitrogen oxide emissions during thickening, dewatering and storage processes. Global Warming is explained by carbon dioxide emitted when biogas is flared and cogenerated and by methane leakage. Both biogenic and fossil CO₂ emissions are considered for Global Warming in order to make results more transparent as recommended by the ILCD Handbook (European Commission, 2010). The Gifhorn® process used in S2B scenario contributes the most to all impact categories except for Ozone Layer Depletion and Abiotic Depletion (fossil). The bitumen used within the sewer network explains these two impacts. The cement used in the incineration plant in the S2B scenario explains the impact of Abiotic Depletion (element).

Table 9. Main contributing processes for LCIA results of each sludge-based scenario (S1, S2A and S2B)

Impact category	Scenario	Step (in % of total scenario value)	Process (in % of the step)	Input or output flow (in % of the process)	Nature (in % of the flow)
Abiotic Depletion (elements)	S1	Treatment (95%)	Dewatering (100%)	Reactant (99%)	FeCl ₃ (99%)
	S2A	Production (84%)	Sewer network (76%)	Sanitary ceramics (70%)	-
	S2B	Treatment (95%)	Gifhorn® process (53%) Incineration (46%)	Reactant (100%) Infrastructure (98%)	NaOH (46%), NaS (43%) Cement (100%)
Abiotic Depletion (fossil)	S1	Production (60%)	Sewer network (84%)	Bitumen (89%)	-
		Treatment (40%)	Dewatering (96%)	Reactants (97%)	FeCl ₃ (57%), Lime (43%)
	S2A	Production (94%)	Sewer network (91%)	Bitumen (89%)	-
		Production (64%)	Sewer network (91%)	Bitumen (89%)	-
	S2B	Treatment (36%)	Gifhorn® process (93%)	Reactants (99%)	MgCl ₂ (41%), NaS (32%), NaOH (18%)
Acidification	S1	Production (41%)	Sewer network (54%) Biological treatment (40%)	Bitumen (82%) Electricity (93%)	
		Treatment (59%)	Dewatering (91%)	Reactants (99%)	FeCl ₃ (76%), Lime (24%)
		Treatment (77%)	Dewatering (68%) Storage (29%)	Emissions to air (97%) Emissions to air (100%)	NH ₃ (100%) NH ₃ (100%)
	S2B	Treatment (74%)	Gifhorn® process (91%)	Reactants (99%)	H ₂ SO ₄ (35%), NaS (43%)
Eutrophication	S1	Treatment (80%)	Thickening (36%) Dewatering (43%)	Emissions to air (96%) Reactants (96%)	N ₂ O (100%) FeCl ₃ (92%)
			Dewatering (48%) Storage (35%)	Emissions to air (94%) Emissions to air (100%)	NH ₃ (100%) NH ₃ (57%), N ₂ O (43%)
	S2A	Treatment (73%)	Dewatering (48%) Storage (35%)	Emissions to air (94%) Emissions to air (100%)	NH ₃ (100%) NH ₃ (57%), N ₂ O (43%)
			Gifhorn® process (70%)	Reactants (99%)	MgCl ₂ (23%), NaS (37%), NaOH (33%)
	S2B	Treatment (66%)	Gifhorn® process (70%)	Reactants (99%)	MgCl ₂ (23%), NaS (37%), NaOH (33%)
Global warming	S1	Treatment (85%)	Thickening (24%) Storage (59%)	Emissions to air (98%) Emissions to air (100%)	N ₂ O (83%) CH ₄ (73%), N ₂ O (20%)
			Anaerobic digestion (37%)	Biogas valorization (58%) Biogas leakage (40%)	CO ₂ (100%) CH ₄ (100%)
	S2A	Treatment (82%)	Anaerobic digestion (37%) Storage (47%)	Biogas valorization (58%) Emissions to air (100%)	CO ₂ (100%) CH ₄ (68%), N ₂ O (25%)
			Anaerobic digestion (22%)	Biogas valorization (58%) Biogas leakage (40%)	CO ₂ (100%) CH ₄ (100%)
	S2B	Treatment (89%)	Anaerobic digestion (22%) Gifhorn® process (56%)	Biogas valorization (58%) Biogas leakage (40%) Reactants (100%)	CO ₂ (100%) CH ₄ (100%) MgCl ₂ (88%)
Toxicity and Ecotoxicity impacts	S1	Treatment (75%)	Dewatering (96%)	Reactants (98%)	FeCl ₃ (98%)
	S2A	Production (78%)	Sewer network (39%)	Bitumen (54%) Sanitary ceramics (33%)	- -
			Biological treatment (26%)	Electricity (98%)	-
	S2B	Treatment (71%)	Gifhorn® process (95%)	Reactants (98%)	NaS (41%), NaOH (38%)
Ozone layer depletion	S1	Treatment (84%)	Dewatering (96%)	Reactants (98%)	FeCl ₃ (95%)
	S2	Production (98%)	Sewer network (95%)	Bitumen (89%)	-
	S3	Production (71%)	Sewer network (95%)	Bitumen (84%)	-
Photochemical oxidation	S1	Treatment (81%)	Dewatering (36%) Storage (58%)	Reactants (98%) Emissions to air (100%)	Lime (60%), FeCl ₃ (40%) CH ₄ (100%)
			Sewer network (83%)	Bitumen (84%)	-
	S2	Production (44%) Treatment (56%)	Anaerobic digestion (61%) Storage (29%)	Biogas leakage (93%) Emissions to air (100%)	CH ₄ (100%) CH ₄ (100%)
			Gifhorn® process (75%)	Reactants (99%)	MgCl ₂ (41%), NaS (30%)
	S3	Treatment (70%)	Gifhorn® process (75%)	Reactants (99%)	MgCl ₂ (41%), NaS (30%)

3.2. Consequence of the allocation of environmental burdens for sludge production

The contribution of sludge production to the overall scenario greatly depends on the scenario itself (cf. Table 10). Sludge production for dewatered digested sludge (S2A) presents the most important contribution (higher than 80%) for six impact categories while this contribution is less than 25% for three of them. However, the contribution of sludge production for dewatered sludge (S1) and struvite (S2B) is not that much impacting. Indeed, it is smaller than 40% for S1 for all categories except for Abiotic Depletion (fossil) and smaller than 30% for S2B for all categories except for Abiotic Depletion (fossil) and Ozone Layer Depletion. Whatever the sludge-based scenario, sludge production presents a bigger impact than sludge treatment for Abiotic Depletion (fossil) and a lower impact for Eutrophication and Global Warming.

The possibility to allocate environmental burdens to sludge production allows a more accurate environmental impact assessment for sludge-based phosphate fertilizers compared to non-renewable one. Indeed, in the case of scenario S2A, if no environmental burden is allocated to sludge production, the environmental benefits are higher for digested dewatered sludge than for triple superphosphate for six of the eleven impact categories. These categories are impacted by the nitrogenous emissions, greater during sludge production than during the production of triple super phosphate.

Nevertheless, the production of sludge-based phosphate fertilizer appears less environmental friendly than the production of phosphate fertilizer from non-renewable resources.

Table 10. Contribution of sludge production step for each sludge-based scenario in % of total scenario impact (without avoided impact)

Impact category ^a	S1	S2A	S2B
Abiotic Depletion (elements)	4.50%	84.10%	9.78%
Abiotic Depletion (fossil)	<u>60.59%</u>	93.86%	<u>60.50%</u>
Acidification	40.39%	23.58%	16.45%
Eutrophication	19.92%	15.72%	14.20%
Fresh Aquatic Ecotoxicity	24.02%	82.85%	28.82%
Human Toxicity	29.43%	81.08%	28.37%
Marine Aquatic Ecotoxicity	26.81%	82.12%	16.06%
Ozone Layer Depletion	16.96%	97.94%	<u>64.39%</u>
Photochemical Oxidation	20.33%	49.61%	25.56%
Terrestrial Ecotoxicity	12.72%	66.84%	4.98%
Global Warming	15.39%	19.60%	10.66%

^a Bold number means a contribution for sludge production higher than 75% of the total value for the scenario, underlined number means a contribution comprises between 50 and 75%, normal number means a contribution comprises between 25 and 50%, italic number means a contribution less than 25%.

3.3. Improving the environmental impact of sludge-based phosphate fertilizers

To explain these bad results, several reasons can be put forward. First, the poor phosphorus recovery efficiency of the studied processes combined with the important use of reactant to recover phosphorus from wastewater sludge penalizes sludge-based fertilizers. Secondly, it was assumed that sludge-based fertilizers have the same fertilizing potential than phosphate fertilizer. However, this is a strong assumption that needs to be deepened. Finally, the possibility of reducing the non-renewable resources depletion by recovering phosphorus from wastewater sludge is barely considered in LCIA methods.

3.3.1. Increasing phosphorus recovery potential with less reactants

The wastewater entering WWTP1 has an average composition of 61 017 kg phosphorus per year. The total amount of phosphorus recovered in dewatered sludge is 25 317 kg allowing a 41% phosphorus recovery rate for S1. The wastewater entering WWTP2 has a higher phosphorus influent mass flow with 83 220 kg of phosphorus per year to be treated. The amount of phosphorus in digested dewatered sludge is 35 805 kg while it is only 17 793 kg for struvite. The phosphorus recovery rate is therefore higher for digested dewatered sludge (43%, S2A) than for struvite (21%, S2B). Each scenario has a different need of reactants to recover 1 kg of phosphorus reported in Table 11.

Table 11. Amount of reactant needed to recover 1 kg of phosphorus for each scenario

Sref	S1	S2A	S2B
2.2 kg phosphoric acid	18.4 kg FeCl ₃	0.5 kg polymer	13.6 kg NaOH
0.7 kg phosphate rock	34.4 kg of lime		18.9 kg H ₂ SO ₄
			20.2 kg Na ₂ S
			1.3 kg Mg(OH) ₂

The low phosphorus recovery rate for S2B can be explained by two main reasons. Firstly, only 49% of the phosphorus contained in digested sludge is recovered and precipitated as struvite. Secondly, the remaining phosphorus is captured within the dewatered sludge and sent to incineration. 22% of influent phosphorus is therefore lost during the incineration process as no other phosphorus recovery process is used.

Struvite precipitation has the lowest phosphorus recovery rate and the highest consumption of reactants and so the highest environmental impacts. Triple super phosphate (Sref) and dewatered digested sludge (S2A) have the highest phosphorus recovery rate and the lowest consumption of reactants and so the lowest environmental impacts. These results have been confirmed by other authors. Thus, Bradford-Hartkle et al. (2015) compared the environment benefits of phosphorus recovery from sludge using LCA and highlighted that depending on the technology used, phosphorus recovery does not necessarily present a net environmental benefit, as it does not necessarily offset the resources consumed in the process. Linderholm et al. (2012) highlighted that struvite precipitation is not as costly for the environment as phosphorus

recovered from ash and confirm that a minor part of phosphorus in wastewater is captured in the struvite. However, besides its high environmental impacts, struvite precipitation is one of the most suitable option of phosphate recovery in terms of purity, growth criteria, dewatering properties and phosphate and ammonia efficiency according to Chowbury et al. (2017) citing Muster et al. (2013).

In order to improve the environmental impacts of sludge-based fertilizers, it is therefore of great importance to have high phosphorus recovery rate while using the less reactant as possible. Chemical reactants are generally used to acidify the media allowing a solubilization of the phosphorus in sludge. An alternative to this chemical acidification could be an enhancement of biological acidification using organic substrate for the development of acidifying bacteria (Capdevielle et al., 2016; Guilayn et al., 2017). Another solution would be to combine several struvite precipitation processes at different levels of the sludge treatment (i.e. during anaerobic digestion and from ashes) so that the total phosphorus from wastewater sludge can be recovered. However, as phosphorus recovery efficiency shall be limited, another solution could be the provision of sludge-based fertilizer with a high quality to replace the mineral fertilizer with at least the same agronomical efficiency.

3.3.2. Providing a sludge-based fertilizer with the same agronomical potential than mineral fertilizer

The scenarios compared in this work are based on the assumption that sludge-based and mineral fertilizers have the same fertilizing potential. This assumption considers that phosphorus is 100% available for plants whatever its mineral or organic form. This assumption is commonly used in LCA studies in the field of wastewater treatment when mineral fertilizer is used to subtract the additional fertilizing function of sludge (Linderholm et al., 2012; Murray et al., 2008; Niero et al., 2014) even if several other authors use a 70% value for phosphorus availability (Carballa et al., 2011; Gallego et al., 2008; Hospido et al., 2010). Although mineral phosphorus fertilizer is more directly plant-available in the short term than sludge (which needs some time for mineralization in soil), it can be stated that this fertilizing value is the same in a long-term perspective. For this reason, further investigations need to be done to compare the environmental impacts of sludge-based and mineral phosphate fertilizer in an agronomic perspective by considering their effective fertilizing value at both the short and long term.

3.3.3. Towards a relevant assessment of phosphorus recovery for Abiotic Depletion impact category

The phosphorus resource depletion can be assessed with only two characterization methods, CML 2001 and a method recommended by ILCD Handbook, Resource depletion, mineral, fossils and renewables, midpoint (V1.09). Phosphorus resource is converted in antimony equivalent (Sb_{eq}) so that 1 kg of phosphorus respectively equals 5.52×10^{-6} kg Sb_{eq} for CML2001 (Abiotic Depletion elements category) and 6.21×10^{-5} kg Sb_{eq} for ILCD. These characterization factors are below the calculated median of the characterization factors of 174 substances for

CML2001 (median sets at 1.91E-05) and 150 substances for ILCD Handbook method (median sets at 5.69E-04).

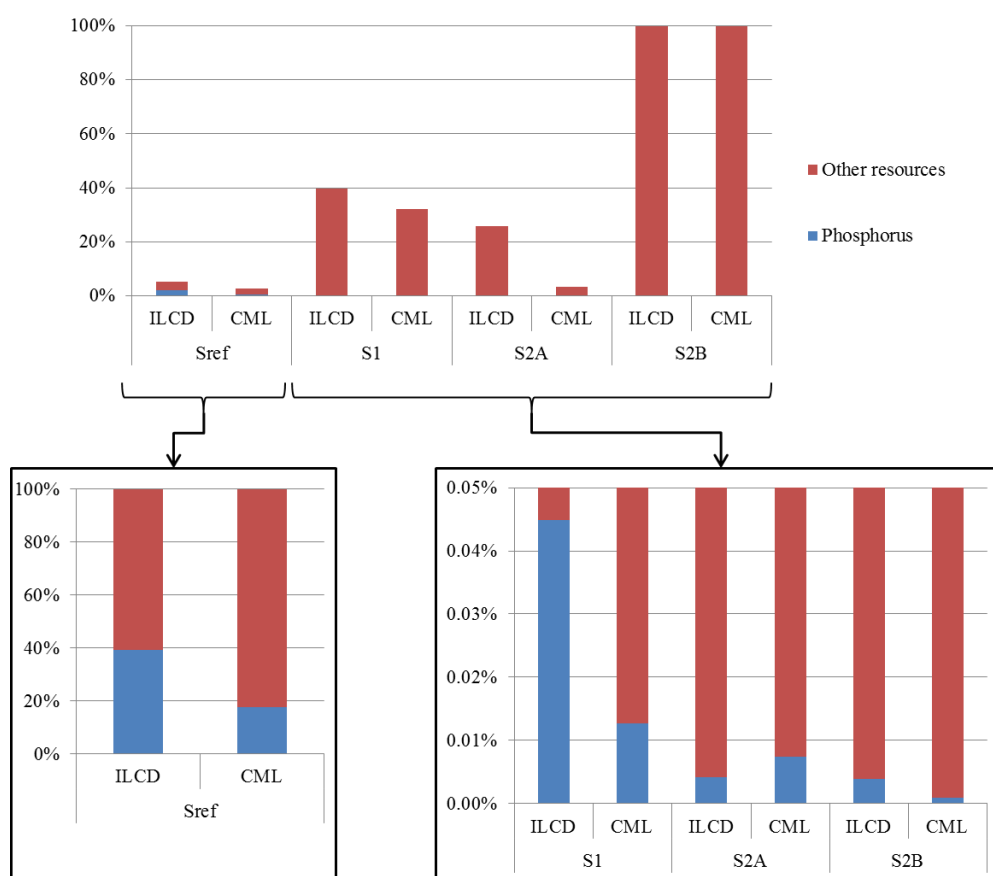


Figure 29. Comparison of the contribution of phosphorus consumption to resources depletion impact category from CML2001 and the method recommended by ILCD Handbook for the four scenarios

A comparison of the contribution of phosphorus depletion to other resources depletion for each scenario highlights that the impact score of only phosphorus depletion for the mineral fertilizer scenario (Sref) is logically higher than those for sludge-based scenarios. For the reference scenario, almost 40% of the resources depletion originates in phosphorus depletion for ILCD method while this contribution fails to 18% with CML 2001. The phosphorus depletion for sludge-based scenarios is close to zero meaning that these scenarios do not deplete the mineral phosphorus resources (cf. Figure 29). Nevertheless, the benefits of phosphorus recovery are not highlighted within the results because other more critical resources are consumed in sludge-based scenario counterbalancing the saving non-renewable phosphorus. The use of these two characterization methods highlighted that phosphorus resource criticality is not consensual and should be better considered. It is a real issue for the environmental assessment of renewable phosphorus and questions the validity of Life Cycle Assessment studies aiming at recover phosphorus.

4. Conclusion

Three alternative ways to produce sludge-based products are assessed and compared to the production of triple super phosphate using LCA: dewatered sludge, digested dewatered sludge, and struvite. To compare these products within the same system boundaries than the reference mineral fertilizer in a product perspective, the upstream environmental impact of sludge production is included by allocating part of the wastewater treatment to sludge production. The environmental impacts are then assessed using CML2001 characterization method.

The results highlight that whatever the impact category, the production of 1 kg of phosphorus as triple super phosphate presents less environmental impacts than the production of 1 kg of phosphorus from wastewater sludge. The struvite production presents the highest environmental contribution due to the use of reactants to dissolve and precipitate the phosphorus contained in sludge. The digested dewatered sludge presents the lowest impact. However, sludge production counterbalances the low environmental impact of sludge treatment so that digested dewatered sludge appears more impacting than triple superphosphate.

The limited yields of phosphorus recovery associated with a low phosphorus content of the sludge and a high need of energy and reagents to achieve phosphorus recovery are responsible for the weak environmental performances of sludge-based scenarios. However, their environmental performances could be reduced if a good combination is found between phosphorus recovery efficiency and the need of reactant allowed by the phosphorus recovery technologies.

The production of sludge-based fertilizers initially aims at reducing mineral phosphorus resource depletion. However, the phosphorus extraction depletes other resources that can be more critical than phosphorus one. The resources criticality is therefore a great concern and should be better integrated in Life Cycle Impact Assessment.

5. Acknowledgements

The authors kindly thank their colleagues Jean-Pierre Canler and Guillermo Baquerizo from the MALY Research Unit at IRSTEA for providing data on the WWTP2.

6. References

- Althaus, H.J., Hischier, R., Osses, M., Primas, A., Hellweg, S., Jungbluth, N., Chudacoff, M., 2007. Life Cycle Inventories of Chemicals. Ecoinvent report n°8. p. 957.
- Bradford-Hartke, Z., Lane, J., Lant, P., Leslie, G., 2015. Environmental Benefits and Burdens of Phosphorus Recovery from Municipal Wastewater. *Environmental Science & Technology* 49(14), 8611-8622.
- Capdevielle, A., Sýkorová, E., Béline, F., Daumer, M.L., 2016. Effects of organic matter on crystallization of struvite in biologically treated swine wastewater. *Environmental Technology (United Kingdom)* 37(7), 880-892.

Carballa, M., Duran, C., Hospido, A., 2011. Should We Pretreat Solid Waste Prior to Anaerobic Digestion? An Assessment of Its Environmental Cost. *Environmental Science & Technology* 45(24), 10306-10314.

Chowdhury, R.B., Moore, G.A., Weatherley, A.J., Arora, M., 2017. Key sustainability challenges for the global phosphorus resource, their implications for global food security, and options for mitigation. *Journal of Cleaner Production* 140, 945-963.

Cordell, D., Drangert, J.-O., White, S., 2009. The story of phosphorus: Global food security and food for thought. *Global Environmental Change* 19(2), 292-305.

Déchaux, C., Nitschelm, L., Giard, L., Bioteau, T., Sessiecq, P., Aissani, L., 2017. Development of the regionalised municipal solid waste incineration (RMWI) model and its application to France. *The International Journal of Life Cycle Assessment*, 1-29.

Doka, G., 2007. Life cycle inventories of waste treatment services. Part IV Wastewater Treatment EcoInvent report 13. Swiss centre for life inventories, Dubendorf, p. 60.

Ecoinvent Professional database, 2007. Data v2.2. Copyright Swiss Centre for Life Cycle inventories.

Egle, L., Rechberger, H., Zessner, M., 2015. Overview and description of technologies for recovering phosphorus from municipal wastewater. *Resources, Conservation and Recycling* 105, Part B, 325-346.

European Commission (2010) International reference life cycle data system (ILCD) handbook - general guide for life cycle assessment - detailed guidance. Joint Research Centre - Institute for Environment and Sustainability, Luxembourg

Gallego, A., Hospido, A., Moreira, M.T., Feijoo, G., 2008. Environmental performance of wastewater treatment plants for small populations. *Resources, Conservation and Recycling* 52(6), 931-940.

Gourdet, C., Girault, R., Berthault, S., Richard, M., Tosoni, J., Pradel, M., 2017. In quest of environmental hotspots of sewage sludge treatment combining anaerobic digestion and mechanical dewatering: A life cycle assessment approach. *Journal of Cleaner Production* 143, 1123-1136.

Guilayn, F., Braak, E., Piveteau, S., Daumer, M.-L., 2017. Sequencing biological acidification of waste-activated sludge aiming to optimize phosphorus dissolution and recovery. *Environmental Technology* 38(11), 1399-1407.

Guinée, J.B., Gorée, M., Heijungs, R., Huppes, G., Kleijn, R., de Koning, A., van Oers, L., Wegener Sleeswijk, A., Suh, S., Udo de Haes, H.A., de Bruijn, H., van Duin, R., Huijbregts, M.A.J., 2002. Handbook on life cycle assessment. Operational guide to the ISO standards. I: LCA in perspective. IIa: Guide. IIb: Operational annex. III: Scientific background, Kluwer Academic. Dordrecht, p. 692.

Hospido, A., Carballa, M., Moreira, M., Omil, F., Lema, J.M., Feijoo, G., 2010. Environmental assessment of anaerobically digested sludge reuse in agriculture: Potential impacts of emerging micropollutants. *Water Research* 44(10), 3225-3233.

Houot, S., Pons, M.N., Pradel, M., Caillaud, M.A., Savini, I., Tibi, A., 2014. Valorisation des matières fertilisantes d'origine résiduaire sur les sols à usage agricole ou forestier. Impacts agronomiques, environnementaux, socio-économiques, Expertise scientifique collective, Inra-CNRS-Irstea (France).

INERIS, 2002. Caractérisation des biogaz; Bibliographie et mesures sur sites, p. 82.

IPCC, 2006. Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories, Volume 5, Chapter 4: Biological Treatment of Solid Waste. The Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), p. 8.

IRSTEA, 2016. Data from WWTP2 monitoring and from the plant owner.

ISO, 2006a. ISO 14040 - Environmental management - Life cycle assessment - Principles and framework.

ISO, 2006b. ISO 14044 - Environmental management - Life cycle assessment - Requires and guidelines.

Johansson, K., Perzon, M., Froling, M., Mossakowska, A., Svanstrom, M., 2008. Sewage sludge handling with phosphorus utilization - life cycle assessment of four alternatives. *Journal of Cleaner Production* 16(1), 135-151.

Jossa, P., Remy, C., 2015. Life Cycle Assessment of selected processes for P recovery from sewage sludge, sludge liquor or ash, P-Rex project. p. 86.

Kalmykova, Y., Palme, U., Yu, S., Fedje, K.K., 2015. Life Cycle Assessment of Phosphorus Sources from Phosphate ore and urban sinks: Sewage Sludge and MSW Incineration fly ash. *International Journal of Environmental Research* 9(1), 133-140.

Linderholm, K., Tillman, A.M., Mattsson, J.E., 2012. Life cycle assessment of phosphorus alternatives for Swedish agriculture. *Resources Conservation and Recycling* 66, 27-39.

Murray, A., Horvath, A., Nelson, K.L., 2008. Hybrid life-cycle environmental and cost inventory of sewage sludge treatment and end-use scenarios: A case study from China. *Environmental science & technology* 42(9), 3163-3169.

Muster, T.H., Douglas, G.B., Sherman, N., Seeber, A., Wright, N., Güzükkara, Y., 2013. Towards effective phosphorus recycling from wastewater: Quantity and quality. *Chemosphere* 91(5), 676-684.

Nemecek, T., Kägi, T., 2007. Life Cycle Inventories of Agricultural Production Systems. *Ecoinvent report n°15a*. p. 308.

Niero, M., Pizzol, M., Bruun, H.G., Thomsen, M., 2014. Comparative life cycle assessment of wastewater treatment in Denmark including sensitivity and uncertainty analysis. *Journal of Cleaner Production* 68, 25-35.

Pradel, M., Aissani, L., Canler, J.P., Roux, J.C., Villot, J., Baudez, J.C., Laforest, V., 2018. Constructing an allocation factor based on product- and process-related parameters to assess environmental burdens of producing value-added sludge-based products. *Journal of Cleaner Production* 171, 1546-1557.

- Pradel, M., Aissani, L., Villot, J., Baudez, J.-C., Laforest, V., 2016. From waste to added value product: towards a paradigm shift in life cycle assessment applied to wastewater sludge – a review. *Journal of Cleaner Production* 131, 60-75.
- RDC Environnement, 2007. Analyse du Cycle de Vie des modes de valorisation énergétique du biogaz issu de méthanisation de la Fraction Fermentescible des Ordures Ménagères collectée sélectivement en France ADEME, Gaz de France, p. 12.
- Renou, S., 2006. Analyse de cycle de vie appliquée aux systèmes de traitement des eaux usées, Institut National Polytechnique de Lorraine. p. 258.
- Risch, E., Gutierrez, O., Roux, P., Boutin, C., Corominas, L., 2015. Life cycle assessment of urban wastewater systems: Quantifying the relative contribution of sewer systems. *Water Research* 77, 35-48.
- Rocher, V., Azimi, S., Jairy, A., Varrault, G., 2016. Le ratio DCO/COT dans les eaux résiduaires urbaines : pas si stable que ça ! L'eau, l'industrie, les nuisances 391, 4-5.
- Rosemarin, A., de Bruijne, G., Caldwell, I., 2009. Peak phosphorus - The next inconvenient truth, *The Broker Connecting worlds of knowledge*. p. 6.
- Sorensen, B.L., Dall, O.L., Habib, K., 2015. Environmental and resource implications of phosphorus recovery from waste activated sludge. *Waste Management* 45, 391-399.
- Steen, I., 1998. Phosphorus availability in the 21st Century: management of a non-renewable resource. *Phosphorus and Potassium* 217, 25-31.
- The World Bank, 2017. Global Economic Monitor Commodities - Phosphate Rock. <http://databank.worldbank.org/data/download/GemDataEXTR.zip>. (Accessed 12 june 2017).

Conclusions et Perspectives

La boue d'épuration urbaine, bien que majoritairement épandue sur les sols agricoles en France, fait l'objet de traitements de plus en plus poussés pour obtenir des produits à valeur ajoutée. Dès lors, la boue n'est plus considérée comme un déchet mais comme une ressource à valoriser voire un produit potentiellement commercialisable. La boue tend ainsi à devenir un coproduit attendu de la station de traitement des eaux usées au même titre que l'eau épurée. Ce changement de paradigme dans la manière de considérer le statut de la boue, de déchet à produit, a des conséquences sur l'évaluation environnementale des produits boue-sourcés par la méthodologie d'Analyse du Cycle de Vie (ACV) (Chapitre 1).

En effet, sous cet angle, il devient nécessaire d'allouer une charge environnementale à la boue. Les impacts environnementaux générés par le traitement de l'eau usée, identifié comme un système de production indivisible, doivent alors être répartis entre la boue et l'eau épurée au moyen d'un facteur d'allocation. L'enjeu de construction de ce facteur d'allocation réside dans la représentation, qu'il doit traduire, des relations causales physiques entre le procédé et les coproduits. L'objectif de cette thèse a donc été de développer une méthode d'allocation par répartition entre coproduits d'un système de production indivisible en construisant un facteur d'allocation basé sur des paramètres produits et procédés.

Ce facteur d'allocation s'appuie sur une procédure mathématique comprenant quatre étapes (Chapitre 2) :

- 1) Détermination et formalisation mathématique des paramètres procédés et produits,
- 2) Association de ces paramètres pour construire un facteur d'allocation global,
- 3) Construction d'une matrice d'inventaire corrective pour prendre en compte le caractère potentiellement spécifique des données d'inventaire,
- 4) Modélisation mathématique du facteur d'allocation corrigé.

L'utilisation couplée de ces paramètres procédés et produits a permis de rendre compte des relations physiques causales du système, de retranscrire la complexité et la fonctionnalité de ce dernier au travers du facteur d'allocation. Ces paramètres, validés à dire d'experts, ont permis de caractériser le fonctionnement opératoire du procédé et sont donc jugés représentatifs de la réalité technologique du système étudié.

Une Analyse du Cycle de Vie comparative a enfin illustré la conséquence de cette allocation sur les impacts environnementaux des fertilisants phosphatés boue-sourcés (Chapitre 3). Les impacts des produits fertilisants boue-sourcés ont ainsi été comparés aux impacts de fertilisants phosphatés issus de ressources non renouvelables, représentés par un fertilisant minéral phosphaté, le triple superphosphate.

Les travaux menés dans cette thèse permettent d'apporter deux éclairages distincts en ce qui concerne la généralisation de l'applicabilité de la méthode proposée à d'autres procédés de séparation d'une part et la problématique plus générique de l'évaluation des impacts environnementaux des produits déchet-sourcés d'autre part.

Le premier éclairage porte sur la possible transposition de la méthode d'allocation par répartition proposée à d'autres procédés de séparation qu'ils soient de nature physique, chimique, biologique ou thermique. En effet, le cas de la boue d'épuration urbaine a été utilisé pour illustrer la mise en œuvre d'une méthode d'allocation à des coproduits issus d'un procédé indivisible. Cependant, cette méthode d'allocation par répartition est par construction applicable à tous les procédés de séparation dès lors qu'ils ont un caractère indivisible.

L'usage de cette méthode pour les procédés de séparation nécessite toutefois de pouvoir subdiviser le procédé étudié en processus unitaires pertinents sur la base d'une réalité technique. Cette condition est une condition nécessaire à la constitution du facteur d'allocation proposé car les paramètres procédés et produits sont déterminés à l'échelle des processus unitaires. De plus, les paramètres constituant le facteur d'allocation doivent être indépendants (i.e. leurs valeurs varient indépendamment les uns des autres). Le modèle mathématique proposé pour construire le facteur d'allocation permet l'association de paramètres individualisés sous forme d'un produit matriciel et ne peut donc être valide qu'en cas d'indépendance de ces derniers.

Dans le cas où les paramètres utilisés seraient dépendants, la prise en compte de cette dépendance dans la construction mathématique du facteur d'allocation constitue un premier verrou scientifique à lever. Afin de permettre la transposition de la méthode à ces procédés de séparation, une refonte de la structure mathématique du calcul du facteur d'allocation est nécessaire. La prise en compte de la dépendance des paramètres entraîne une complexification accrue du système qui ne pourrait être résolue que par une modélisation mathématique dynamique poussée couplant outils de modélisation mathématique (R, Matlab®, etc.) ou de procédés (ProSim, etc.) et logiciels ACV. La réalisation d'une allocation dynamique basée sur des relations causales est une des voies à explorer pour lever ce verrou scientifique.

L'approche par modélisation dynamique, essentiellement utilisée pour constituer l'inventaire du cycle de vie des ACV et pour optimiser et éco-concevoir la filière de traitement des eaux usées (Méry et al., 2013, 2014), a déjà fait l'objet d'un premier travail par Bisinella de Faria et al. (2015) afin de prédire les impacts environnementaux d'une STEU sur la base d'une modélisation dynamique de la filière de traitement des eaux usées. De manière identique, afin d'évaluer les impacts environnementaux des systèmes de cultures à l'échelle d'un bassin versant, Liao et al. (2015) ont proposé de coupler un modèle de simulation de l'azote à l'ACV (TNT2-LCA) pour prendre en compte la non linéarité, notamment temporelle, entre les émissions azotées générées par les systèmes de cultures et les fertilisants azotés utilisés. La résolution du problème de la dépendance des paramètres constituant le facteur d'allocation par la constitution d'une méthode d'allocation dynamique d'une charge environnementale à un produit déchet-sourcé est l'une des perspectives de recherche de ce travail de thèse.

Le deuxième éclairage apporté par la thèse porte sur la problématique de l'évaluation environnementale des produits déchet-sourcés. L'analyse critique de la littérature réalisée dans le Chapitre 1 a montré que la boue pouvait prétendre au statut de produit dès lors que sa

production était attendue et contrôlée, qu'elle subissait un traitement poussé ou qu'elle rentrait dans le cadre de la sortie du statut de déchet prônée par la Directive Déchets (*End-of-Waste*). Bien qu'illustré avec la boue d'épuration, ce changement de paradigme s'applique à tout type de déchet entrant dans le cadre de cette Directive. La démarche d'allocation proposée dans cette thèse s'avère donc être proactive. Elle ouvre la voie d'une part à une meilleure évaluation environnementale des technologies et à la prise en compte de leur caractère innovant en permettant de produire des produits à valeur ajoutée à partir de déchets. Elle permet d'anticiper d'autre part une possible évolution de la réglementation sur la sortie du statut déchet.

La valorisation des matières organiques résiduelles en produits de substitution aux produits issus de ressources non renouvelables questionne la méthodologie ACV en termes de fonctionnalité du système étudié, d'unité fonctionnelle (entrante ou sortante) et de frontière du système (prise en compte ou non du *zero burden assumption*). L'affectation d'une charge environnementale à des produits déchet-sourcés permet la comparaison de produits issus de ressources non renouvelables et de produits déchets-sourcés en ACV. Toutefois, comme illustré avec le cas des fertilisants boue-sourcés dans le Chapitre 3, la production de produits déchet-sourcés ne peut être rentable que si le gain obtenu est supérieur aux ressources employées pour l'obtenir. Or, la rentabilité économique et environnementale des produits déchet-sourcés doit également être évaluée au regard des traitements additionnels utilisés pour extraire la ressource à valoriser, souvent présente sous forme diffuse dans le déchet. Ces traitements mobilisent en effet d'autres ressources qui peuvent potentiellement impacter négativement le bilan environnemental des produits déchets-sourcés. Trois verrous scientifiques à l'évaluation environnementale des produits déchets-sourcés ont ainsi été identifiés.

Le premier verrou identifié porte sur la nécessité de rendre plus aisée la mise en œuvre du facteur d'allocation pour évaluer l'impact de la production du produit déchet-sourcé. En effet, la constitution du facteur d'allocation développé dans cette thèse reste une démarche relativement lourde, notamment lors de l'étape de détermination des paramètres produits et procédés. La mise en œuvre d'une telle démarche n'est donc pertinente que si une réelle plus-value est atteignable en termes de modélisation du système pour son évaluation environnementale. Une solution pourrait être la réalisation d'une ACV *screening* de la comparaison du produit déchet-sourcé étudié sans allocation d'une charge environnementale liée à sa production et de son alternative non-renouvelable. Cette ACV *screening* serait basée sur le *zero burden assumption* et permettrait d'identifier les produits déchets-sourcés pour lesquels l'impact environnemental serait plus faible que leurs alternatives non-renouvelables. Dans le cas où l'ACV *screening* serait ainsi favorable au produit déchet-sourcé, une ACV comparative plus complète intégrant une charge environnementale à la production de ces produits déchets-sourcés serait ensuite réalisée afin de s'assurer de leur réelle plus-value environnementale.

Le second verrou réside dans la nécessité de prise en compte et d'évaluation des services rendus additionnels fournis par le produit déchet-sourcé. La comparaison des produits déchet-sourcés à ceux issus de ressources non-renouvelables doit se faire sur la base d'un service rendu strictement similaire. Dans la mesure où ces produits ont parfois des services rendus supplémentaires à ceux de leurs alternatives non-renouvelables, la question de leur prise en compte lors de l'évaluation des impacts environnementaux des produits déchet-sourcés se pose.

A titre d'exemple, les matériaux recyclés tels que les polymères thermoplastiques provenant du recyclage des emballages plastiques (PET, PVC, PP et PE) représentent 13% du marché du textile (Ignatyev et al., 2014). Ces nouveaux matériaux produisent des textiles aux fonctionnalités étendues par rapport aux textiles utilisant des fibres naturelles (laine, coton, etc.). Ainsi, les propriétés hydrophobes de ces fibres synthétiques les rendent plus imperméables que les textiles à base de fibres naturelles. La plus-value apportée par ces produits en termes de fonctionnalité peut être retranscrite en étendant les frontières du système, c'est-à-dire en soustrayant ces cofonctions et réduisant ainsi le bilan environnemental par l'intégration d'impacts évités. L'identification et l'intégration des services rendus dans les ACV comparatives sont donc des enjeux cruciaux pour l'évaluation des produits déchets-sourcés par rapport à leurs homologues « non renouvelables ».

Le dernier verrou scientifique identifié porte sur la nécessité d'une évaluation robuste de l'impact sur l'épuisement des ressources. L'intérêt principal de la production de produits déchet-sourcés réside dans la possibilité de concentrer une ressource présente sous forme diffuse dans l'anthroposphère. Or, les traitements mis en place pour récupérer cette ressource sont caractérisés par des rendements parfois faibles mobilisant eux-mêmes d'autres ressources. L'ACV est une méthode pertinente pour évaluer la contribution des systèmes étudiés à l'épuisement des ressources à partir du moment où les méthodes de caractérisation de cet impact sont robustes. La méthode de caractérisation de l'impact doit être fiable (incertitudes faibles ou du moins évaluées), homogène (la méthode doit être robuste de la même manière quelle que soit la ressource évaluée) et complètes (un grand nombre de ressources doivent être considérées dans la méthode).

Une analyse des méthodes existantes sur la caractérisation de l'épuisement des ressources a montré une grande variabilité dans la manière de calculer l'impact. Ainsi, tandis que la méthode *Abiotic Depletion (elements)* de CML2001 permet de caractériser l'impact de l'épuisement de 91 ressources (métaux et non métaux), la méthode *Metal depletion* ReCiPe 1.08 Midpoint (E) n'en caractérise que 21, essentiellement des métaux. Une nouvelle version de méthode ReCiPe a été proposée en 2016 par Huijbregts et al. (2016). Un nouvel indicateur d'impact *Mineral resource scarcity* remplace l'impact *Metal depletion* de l'ancienne version. Cet indicateur est basé sur l'augmentation de l'extraction des ressources. Le facteur de caractérisation qui lui est associé porte sur le *Surplus ore potential (SOP)*, c'est-à-dire la quantité supplémentaire de ressource exploitées par unité additionnelle de ressource extraite (Vieira et al., 2016). Ces facteurs sont proposés pour 17 métaux et incluent le phosphore dans cette nouvelle version. La méthode de caractérisation *Abiotic Depletion (elements)* utilisée dans CML2001 repose sur l'établissement de facteurs de caractérisation faisant intervenir le taux d'extraction des ressources et le carré de la disponibilité du gisement de ces dernières (Alvarenga et al., 2016 ; Guinée et al., 2002). Elle considère uniquement les réserves ultimes pour chacune des ressources évaluées, y compris le phosphore. Cette méthode ne prend donc en considération que les ressources prélevées dans le milieu naturel. Une nouvelle méthode de caractérisation a été proposée par Schneider et al. (2011, 2015), appelée *Anthropogenic Stock Extended Abiotic Depletion Potential (AADP)*, pouvant être considérée comme un complément de la méthode CML2001. Cette méthode intègre l'épuisement des ressources qui ont déjà été extraites de leur gisement et qui sont dans l'anthroposphère. Toutefois, à cause de la difficulté d'obtention de

données cohérentes, cette nouvelle méthode propose des facteurs de caractérisation pour seulement 10 métaux et le phosphore n'est donc pas inclus dans cette liste. Van Oers and Guinée (2016) estiment qu'une amélioration de cette méthode de caractérisation est possible. Ils proposent de redéfinir l'épuisement des ressources comme un problème de dilution de la ressource et de développer un nouveau modèle de caractérisation. Les auteurs proposent de remplacer le taux d'extraction des ressources par la perte des éléments minéraux provenant des activités économiques. Cette perte serait ensuite combinée aux réserves présentes dans l'environnement pour créer un nouveau modèle de caractérisation basé sur la dilution des ressources abiotiques.

La détermination des réserves disponibles d'éléments recyclables issus des activités humaines et leur implémentation dans une méthode de caractérisation sont donc les deux enjeux majeurs pour pouvoir améliorer l'évaluation des impacts environnementaux des produits déchet-sourcés. Un troisième enjeu, découlant des deux autres, serait de pouvoir établir comment les réserves d'éléments recyclables provenant des déchets permettraient de réduire la criticité des ressources. L'Union Européenne a en effet inscrit une vingtaine de matières premières sur la liste des matières critiques en 2014 sur la base de leur importance économique et du risque d'approvisionnement (Union Européenne, 2014). Une meilleure caractérisation des impacts environnementaux et la prise en compte de l'impact du recyclage sur la criticité de la ressource sont des perspectives de recherche supplémentaires pour permettre de mieux évaluer l'intérêt environnemental des produits déchet-sourcés.

Références

Références de l'Introduction

Bourg, D., 2010. L'éco-scepticisme et le refus des limites. *Études*, 413(7), 29-40.

Bourg, D. et Whiteside, K., 2009. Pour une démocratie écologique, 23 pages. Disponible à l'adresse : http://www.laviedesidees.fr/IMG/pdf/20090901_bourg-2.pdf.

Brundtland, H.H., 1987. Our common future, report of the world commission on environment and development, 349 pages.

Ehrlich, P., 1971. The Population Bomb. New York, Ballantine Press, (publié chez Fayard sous le titre La Bombe P, Paris, 1972, 230 pages).

Ekvall, T., Assefa, G., Björklund, A., Eriksson, O., Finnveden, G., 2007. What life-cycle assessment does and does not do in assessments of waste management. *Waste Management* 27, 989-996.

Finnveden, G., 1999. Methodological aspects of life cycle assessment of integrated solid waste management systems. *Resources, Conservation and Recycling* 26, 173-187.

Fragnière, A., 2012. La liberté des modernes à l'épreuve de la finitude. *Natures Sciences Sociétés*, 20, p. 192-200.

Heijungs, R., Guinée, J.B., Huppes, G., Lankreijer, R.M., Udo de Haes, H.A., Wegener Sleeswijk, A., Ansems, A.M.M., Eggels, P.G., Duin, R.v., Goede, H.P.d., 1992. Environmental life cycle assessment of products: guide and backgrounds (Part 1), Leiden, p. 97 pages. Available at: <https://openaccess.leidenuniv.nl/handle/1887/8061>.

ILCD Handbook, 2010. ILCD Handbook: General guide for Life Cycle Assessment - Detailed guidance, European Commission, 417 pages.

ISO 14040, 2006. Management Environnemental - Analyse du cycle de Vie - Principes et cadre, Association Francaise de Normalisation. NF EN ISO 14040, 23 pages.

ISO 14044, 2006. Management Environnemental - Analyse du cycle de Vie - Exigences et lignes directrices, Association Francaise de Normalisation. NF EN ISO 14044, 49 pages.

Journal officiel, 2015. Loi n° 2015-992 du 17 août 2015 relative à la transition énergétique pour la croissance verte (1). JORF n°0189 du 18 août 2015, page 14263. Accessible à l'adresse : <https://www.legifrance.gouv.fr/eli/loi/2015/8/17/DEVX1413992L/jo/texte>.

McDouglas, F., White, P., Franke, M., Hindle, P., 2001. Integrated solid waste management : a life cycle inventory, 2nd edition ed. Blackwell Science Ltd, Oxford.

Rockström, J., W. Steffen, K. Noone, Å. Persson, F. S. Chapin, III, E. Lambin, T. M. Lenton, M. Scheffer, C. Folke, H. Schellnhuber, B. Nykvist, C. A. De Wit, T. Hughes, S. van der Leeuw, H. Rodhe, S. Sörlin, P. K. Snyder, R. Costanza, U. Svedin, M. Falkenmark, L. Karlberg, R. W. Corell, V. J. Fabry, J. Hansen, B. Walker, D. Liverman, K. Richardson, P. Crutzen, and J. Foley.

2009. Planetary boundaries: exploring the safe operating space for humanity. *Ecology and Society* 14(2): 32.

Steffen, W., Richardson, K., Rockström, J., Cornell, S.E., Fetzer, I., Bennett, E.M., Biggs, R., Carpenter, S.R., de Vries, W., de Wit, C.A., Folke, C., Gerten, D., Heinke, J., Mace, G.M., Persson, L.M., Ramanathan, V., Reyers, B., Sörlin, S., 2015. Planetary boundaries: Guiding human development on a changing planet. *Science* 347 (6223).

Références du Chapitre 1

AFNOR, 2002. Amendements organiques - Composts contenant des matières d'intérêt agronomique, issues du traitement des eaux, Association Française de Normalisation. NF U 44-095: 24.

Aissani, L., 2008. Intégration des paramètres spatio-temporels et des risques d'accident à l'Analyse du Cycle de Vie : Application à la filière hydrogène énergie et à la filière essence. Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 354 pages.

Amec Foster Wheeler, 2016. EU-level instruments on water reuse – Final report to support the Commission's Impact Assessment .report for the European Commission, October 2016, 292 pages.

Disponible à l'adresse : http://ec.europa.eu/environment/water/blueprint/pdf/EU_level_instruments_on_water-2nd-IA_support-study_AMEC.pdf

Angenent, L. T., K. Karim, M. H. Al-Dahhan and R. Domiguez-Espinosa, 2004. Production of bioenergy and biochemicals from industrial and agricultural wastewater. *Trends in Biotechnology* 22(9): 477-485.

Projet VALORIA (2012). VALORIA - Développement d'une nouvelle filière de traitement et de valorisation des sous-produits organiques issus de l'assainissement. Journées ECOTECHNOLOGIES 2012. Disponible à l'adresse : <http://www.agence-nationale-recherche.fr/Colloques/ecotechnologies2012/presentations/VALORIA.pdf>.

Bastide, G., 2014. Methanisation. Fiche technique ADEME, 19 pages.

Björklund, A., 2000. Environmental systems analysis of waste management - Experiences from applications of the ORWARE Model. Thèse de doctorat, Royal Institute of Technology – Stockholm, 66 pages.

Degrémont, 2005. Memento technique de l'eau. Dixième édition. Lavoisier SAS. 1100 pages.

Egle, L., H. Rechberger and M. Zessner, 2015. Overview and description of technologies for recovering phosphorus from municipal wastewater. *Resources, Conservation and Recycling* 105: 325-346.

Enckell, C., 2013. Evolution du statut de déchet : une contribution à l'économie circulaire ? *Droit de l'environnement* 218: 419-424.

Etrillard, C., 2014. L'agriculteur, acteur de la politique environnementale : le cas de l'épandage des boues d'épuration. *Revue de droit rural* 422: 11-15.

Fonts, I., G. Gea, M. Azuara, J. Abrego and J. Arauzo, 2012. Sewage sludge pyrolysis for liquid production: A review. *Renewable & Sustainable Energy Reviews* 16(5): 2781-2805.

Gay, J., 2002. Lutte contre la pollution des eaux - Valorisation énergétique des boues. Techniques de l'ingénieur, référence g1455, 18 pages.

Guinée, J.B., Gorée, M., Heijungs, R., Huppes, G., Kleijn, R., de Koning, A., van Oers, L., Wegener Sleeswijk, A., Suh, S., Udo de Haes, H.A., de Bruijn, H., van Duin, R., Huijbregts, M.A.J., 2002. Handbook on life cycle assessment. Operational guide to the ISO standards. I: LCA in perspective. IIa: Guide. IIb: Operational annex. III: Scientific background, Kluwer Academic. Dordrecht, p. 692.

Houot, S., M. N. Pons, M. Pradel, M. A. Caillaud, I. Savini and A. Tibi, 2014. Valorisation des matières fertilisantes d'origine résiduaire sur les sols à usage agricole ou forestier. Impacts agronomiques, environnementaux, socio-économiques. Expertise scientifique collective, Inra-CNRS-Irstea (France).

ILCD Handbook, 2010. ILCD Handbook: General guide for Life Cycle Assessment - Detailed guidance, European Commission, 417 pages.

ISO 14040, 2006. Management Environnemental - Analyse du cycle de Vie - Principes et cadre, Association Française de Normalisation. NF EN ISO 14040, 23 pages.

ISO 14044, 2006. Management Environnemental - Analyse du cycle de Vie - Exigences et lignes directrices, Association Française de Normalisation. NF EN ISO 14044, 49 pages.

Jolliet, O., M. Saadé and P. Crettaz, 2005. Analyse du cycle de vie: comprendre et réaliser un écobilan. Lausanne, Suisse, Presse polytechniques et universitaires romandes, 242 pages.

Ketep, F. S., 2012. Piles à combustible microbiennes pour la production d'électricité couplée au traitement des eaux de l'industrie papetière. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, 316 pages.

Lupton, S., 2017. Markets for waste and waste-derived fertilizers. An empirical survey. Journal of Rural Studies 55: 83-99.

MEDDE, 2017. Portail d'information sur l'assainissement communal. Disponible à l'adresse : <http://assainissement.developpement-durable.gouv.fr/>.

RECORD, 2015. Production d'hydrogène à partir de déchets. Etat de l'art et potentiel d'émergence. Rapport n°13-0239/1A, 226 pages.

Richard, M. and M. Pradel, 2014. Les filières de traitement et de valorisation des boues d'épuration en France - Rapport d'enquête. Rapport Irstea/Onema, 52 pages.

Sanz, L. and Gawlik, B., 2014. Water Reuse in Europe – Relevant guidelines, needs for and barriers to innovation. JRC Science and Policy reports, European Commission, 51 pages. Disponible à l'adresse : <http://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/handle/JRC92582>

Saveyn, H. and P. Eder, 2014. End-of-waste criteria for biodegradable waste subjected to biological treatment (compost & digestate): Technical proposals. JRC Scientific and Policy Reports, European Commission, 312 pages.

Van Lang, A., 2011. Droit de l'environnement. Paris, Presse Universitaire de France, 566 pages.

Références du Chapitre 2

- Alvarez-Gaitan, J.P., Peters, G.M., Short, M.D., Schulz, M., Moore, S., 2014. Understanding the Impacts of Allocation Approaches During Process-Based Life Cycle Assessment of Water Treatment Chemicals. *Integrated Environmental Assessment and Management* 10, 87-94.
- Ayer, N.W., Tyedmers, P.H., Pelletier, N.L., Sonesson, U., Scholz, A., 2007. Co-product allocation in life cycle assessments of seafood production systems: Review of problems and strategies. *International Journal of Life Cycle Assessment* 12, 480-487.
- Azapagic, A., Clift, R., 1999. Allocation of environmental burdens in co-product systems: Product-related burdens (Part 1). *The International Journal of Life Cycle Assessment* 4, 357-369.
- Boschiero, M., Kelderer, M., Schmitt, A.O., Andreotti, C., Zerbe, S., 2015. Influence of agricultural residues interpretation and allocation procedures on the environmental performance of bioelectricity production - A case study on woodchips from apple orchards. *Applied Energy* 147, 235-245.
- Brankatschk, G., Finkbeiner, M., 2014. Application of the Cereal Unit in a new allocation procedure for agricultural life cycle assessments. *Journal of Cleaner Production* 73, 72-79.
- Cederberg, C., Stadig, M., 2003. System expansion and allocation in life cycle assessment of milk and beef production. *International Journal of Life Cycle Assessment* 8, 350-356.
- Chatterjee, R., Sharma, V., Mukherjee, S., 2015. The Environmental Impacts and Allocation Methods Used in LCA Studies of Vegetable Oil-Based Bio-diesels. *Waste and Biomass Valorization* 6, 579-603.
- Chen, C., Habert, G., Bouzidi, Y., Jullien, A., Ventura, A., 2010. LCA allocation procedure used as an incitative method for waste recycling: An application to mineral additions in concrete. *Resources Conservation and Recycling* 54, 1231-1240.
- Cherubini, F., Stromman, A.H., Ulgiati, S., 2011. Influence of allocation methods on the environmental performance of biorefinery products-A case study. *Resources Conservation and Recycling* 55, 1070-1077.
- Cottle, D.J., Cowie, A.L., 2016. Allocation of greenhouse gas production between wool and meat in the life cycle assessment of Australian sheep production. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 21, 820-830.
- D'Avino, L., Dainelli, R., Lazzeri, L., Spugnoli, P., 2015. The role of co-products in biorefinery sustainability: energy allocation versus substitution method in rapeseed and carinata biodiesel chains. *Journal of Cleaner Production* 94, 108-115.
- Ekvall, T., Tillman, A.M., 1997. Open-Loop Recycling: Criteria for Allocation Procedures. *International Journal of Life Cycle Assessment* 2, 155-162.
- Ekvall, T., Tillman, A.M., Molander, S., 2005. Normative ethics and methodology for life cycle assessment. *Journal of Cleaner Production* 13(13-14), 1225-1234

- Huang, Y., Spray, A., Parry, T., 2012. Importance of co-product allocation method in pavement life cycle assessment, in: Ventura, A., DeLaRoche, C. (Eds.), *International Symposium on Life Cycle Assessment and Construction: Civil Engineering and Buildings*, pp. 344-351.
- Karka, P., Papadokonstantakis, S., Hungerbuhler, K., Kokossis, A., 2015. Life Cycle Assessment of Biorefinery Products Based on Different Allocation Approaches, in: Gernaey, K.V., Huusom, J.K., Gani, R. (Eds.), *12th International Symposium on Process Systems Engineering and 25th European Symposium on Computer Aided Process Engineering, Pt C*, pp. 2573-2578.
- Mackenzie, S.G., Leinonen, I., Kyriazakis, I., 2017. The need for co-product allocation in the life cycle assessment of agricultural systems-is "biophysical" allocation progress? *International Journal of Life Cycle Assessment* 22, 128-137.
- Malca, J., Freire, F., 2004. Life cycle energy analysis for bioethanol: allocation methods and implications for energy efficiency and renewability.
- Malca, J., Freire, F., 2006. Renewability and life-cycle energy efficiency of bioethanol and bio-ethyl tertiary butyl ether (bioETBE): Assessing the implications of allocation. *Energy* 31, 3362-3380.
- Nguyen, T.T.H., Doreau, M., Corson, M.S., Eugène, M., Delaby, L., Chesneau, G., Gallard, Y., van der Werf, H.M.G., 2013. Effect of dairy production system, breed and co-product handling methods on environmental impacts at farm level. *Journal of Environmental Management* 120, 127-137.
- Nguyen, T.T.H., van der Werf, H.M.G., Eugene, M., Veysset, P., Devun, J., Chesneau, G., Doreau, M., 2012. Effects of type of ration and allocation methods on the environmental impacts of beef-production systems. *Livestock Science* 145, 239-251.
- Pushkar, S., Verbitsky, O., 2016. Effects of different allocation approaches for modeling mineral additives in blended cements on environmental damage from five concrete mixtures in Israel. *Materials and Structures* 49, 4401-4415.
- Sandin, G., Royne, F., Berlin, J., Peters, G.M., Svanstrom, M., 2015. Allocation in LCAs of biorefinery products: implications for results and decision-making. *Journal of Cleaner Production* 93, 213-221.
- Sun, B.X., Liu, Y., Nie, Z.R., Gao, F., Wang, Z.H., Gong, X.Z., 2017. Physical parameter-based allocation for the energy consumption of pyro-metallurgical system-a case study on nickel production in China. *International Journal of Life Cycle Assessment* 22, 199-212.
- Thoma, G., Jolliet, O., Wang, Y., 2013. A biophysical approach to allocation of life cycle environmental burdens for fluid milk supply chain analysis. *International Dairy Journal* 31, S41-S49.
- Tillman, A.M., 2000. Significance of decision-making for LCA methodology. *Environmental Impact Assessment Review* 20, 113-123.

- Tsiropoulos, I., Cok, B., Patel, M.K., 2013. Energy and greenhouse gas assessment of European glucose production from corn - a multiple allocation approach for a key ingredient of the bio-based economy. *Journal of Cleaner Production* 43, 182-190.
- Van den Heede, P., De Belie, N., 2012. Strength related global warming potential of fly ash (plus silica fume) concrete with(out) mass/economic allocation of the by-products' impact, in: Ventura, A., DeLaRoche, C. (Eds.), *International Symposium on Life Cycle Assessment and Construction: Civil Engineering and Buildings*, pp. 336-343.
- van der Werf, H.M.G., Nguyen, T.T.H., 2015. Construction cost of plant compounds provides a physical relationship for co-product allocation in life cycle assessment. *International Journal of Life Cycle Assessment* 20, 777-784.
- Ventura, A., (coord.), 2016. Challenges of functionality for Eco-Design, Crossed visions of fonctionnality from various disciplines, EcoSD annual workshop 2014, Paris, Presses des MINES, collection Développement durable, 90 pages.
- Ventura, A., 2012. *Approches systémiques et écoconception. Une réflexion sur les fondements conceptuels et les applications de l'Analyse du Cycle de Vie*. Université de Nantes, p. 118.
- Verge, X., Maxime, D., Desjardins, R.L., VanderZaag, A.C., 2016. Allocation factors and issues in agricultural carbon footprint: a case study of the Canadian pork industry. *Journal of Cleaner Production* 113, 587-595.
- Wang, M., Lee, H., Molburg, J., 2004. Allocation of energy use in petroleum refineries to petroleum products - Implications for life-cycle energy use and emission inventory of petroleum transportation fuels. *International Journal of Life Cycle Assessment* 9, 34-44.
- Weidema, B., 2017. In Search of a Consistent Solution to Allocation of Joint Production. *Journal of Industrial Ecology*, 11.
- Weidema, B.P., Bauer, C., Hischer, R., Mutel, C., Nemecek, T., Reinhard, J., Vadenbo, C.O., Wernet, G., 2013. Overview and methodology - data quality guideline for theecoinvent database version 3, Ecoinvent report N°1(v3). The Ecoinvent Centre, St Gallen, p. 161.
- Weidema, B.P., Schmidt, J.H., 2010. Avoiding Allocation in Life Cycle Assessment Revisited. *Journal of Industrial Ecology* 14, 192-195.
- Wernet, G., Bauer, C., Steubing, B., Reinhard, J., Moreno-Ruiz, E., Weidema, B., 2016. The ecoinvent database version 3 (part I): overview and methodology. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 21, 1218-1230.
- Wiedemann, S.G., Ledgard, S.F., Henry, B.K., Yan, M.-J., Mao, N., Russell, S.J., 2015. Application of life cycle assessment to sheep production systems: investigating co-production of wool and meat using case studies from major global producers. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 20, 463-476.
- Zamagni, A., Guinée, J., Heijungs, R., Masoni, P., Raggi, A., 2012. Lights and shadows in consequential LCA. *The International Journal of Life Cycle Assessment*, 17(7), 904-918.

Références des Conclusions et Perspectives

- Alvarenga, R.A.F., Lins, I.D., Neto, J.A.D., 2016. Evaluation of Abiotic Resource LCIA Methods. *Resources* 5(1), 21.
- Bisinella de Faria, B., Spérandio, M., Ahmadi, A., Tiruta-Barna, L., 2015. Evaluation of new alternatives in wastewater treatment plants based on Dynamic Modelling and Life Cycle Assessment (DM-LCA). *Water Research* 84, 99-111.
- Guinée, J.B., Gorée, M., Heijungs, R., Huppes, G., Kleijn, R., de Koning, A., van Oers, L., Wegener Sleeswijk, A., Suh, S., Udo de Haes, H.A., de Bruijn, H., van Duin, R., Huijbregts, M.A.J., 2002. Handbook on life cycle assessment. Operational guide to the ISO standards. I: LCA in perspective. IIa: Guide. IIb: Operational annex. III: Scientific background, Kluwer Academic. Dordrecht, p. 692.
- Huijbregts, M.A.J., Steinmann, Z.J.N., Elshout, P.M.F., Stam, G., Verones, F., Vieira, M., Zijp, M., Hollander, A., van Zelm, R., 2017. ReCiPe2016: a harmonized life cycle impact assessment method at midpoint and endpoint level. *The International Journal of Life Cycle Assessment*, 22(2), 138-147.
- Ignatyev, I. A., Thielemans, W., Vander Beke, B., 2014. Recycling of Polymers: A Review. *CHEMSUSCHEM*, 7(6), 1579-1593.
- Liao, W., van der Werf, H. M. G. and Salmon-Monviola J., 2015. Improved Environmental Life Cycle Assessment of Crop Production at the Catchment Scale via a Process-Based Nitrogen Simulation Model. *Environmental Science and Technology*, 49, 10790-10796.
- Méry Y, Tiruta-Barna L, Benetto E., Baudin I., 2013. An integrated Process Modeling-Life Cycle Assessment approach for process evaluation and eco-design, *Int J of LCA*, 18(5), 1062-1070.
- Méry Y., Tiruta-Barna L., Baudin I., Benetto E., Igos E., 2014. Formalization of a technical procedure for process ecodesign dedicated to drinking water treatment plants, *J. Cleaner Prod.* 68, 16-24.
- Schneider, L., Berger, M., Finkbeiner, M., 2011. The anthropogenic stock extended abiotic depletion potential (AADP) as a new parameterisation to model the depletion of abiotic resources. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 16(9), 929-936.
- Schneider, L., Berger, M., Finkbeiner, M., 2015. Abiotic resource depletion in LCA-background and update of the anthropogenic stock extended abiotic depletion potential (AADP) model. *The International Journal of Life Cycle Assessment* 20(5), 709-721.
- Union Européenne, 2014. Report on critical raw materials for the EU – Report of the Ad hoc Working Group on defining critical raw materials, 41 pages. Disponible à l'adresse: http://ec.europa.eu/growth/sectors/raw-materials/specific-interest/critical_fr
- van Oers, L., Guinée, J., 2016. The Abiotic Depletion Potential: Background, Updates, and Future. *Resources* 5(16), 12.

Vieira, M. D. M., Ponsioen, T.C., Goedkoop, M., Huijbregts, M.A.J., 2016. Surplus ore potential as a scarcity indicator for resource extraction. *Journal of Industrial Ecology*, 21(2), 381-390.

Annexes

Annexe 1. Supplementary information for “Construction of an allocation factor based on product- and process-related parameters to assess the environmental burdens of the production of value-added sludge-based products - Supplementary Information”

1. Introduction

This Supplementary Information dataset aims at providing detailed information on how the process- and product-related parameters are determined and their range of variation calculated.

2. Water treatment modelling

2.1. Water treatment specificities

A wastewater treatment plant (WWTP) is generally constituted by two processes. The primary process is the water treatment that leads to the production of wastewater sludge and treated water. The treated water can be either reuse or released in the natural media. The sludge is treated in the secondary process, the sludge treatment, in order to produce a sludge-based value-added product.

The water treatment process mainly aims at removing nutrients from the wastewater in order to release clean effluent in the media. The concentration of nutrients in the wastewater is reduced through chemical, biological degradation of organic compounds and aqueous precipitation of phosphorus and nitrogen. The biological degradation of organic matter from wastewater as well as nitrogen and phosphorus removal results in the production of biological sludge. In a preceding treatment step, the organic carbon of wastewater can be recovered in a primary settler in the form of primary sludge that will be used to feed an anaerobic digester to produce energy through biogas valorisation. This energy will be reused to heat the digester and so will reduce the energy consumption of the WWTP.

The sludge treatment mainly aims at reducing sludge quantities and sanitizing sludge through several processes such as thickening, dewatering, lime stabilization and drying. With the increasing value of sludge as it is rich in macronutrients, sludge treatment is more and more oriented to produce a value-added product (such as fertilizer, biopolymer, biofuel) through advanced recovery technology processes.

Assessing the environmental impacts of sludge-based products implies to allocate the environmental burden of the water treatment between the treated water and the sludge production. This can be done by the mean of the allocation coefficient C proposed in this paper.

WWTP and so water treatment can be subject to substantial variability. The quantity and quality of influent wastewater varies according to the number of people served, the number of

industries connected to the collective sewer system, the seasonal variations in the weather as well as the inhabitant habits. The water treatment efficiency will vary according to these influent characteristics as well as the plant capacity and the technology used for water treatment.

However, despite this variability, water treatment modelling can be generalized in considering two main cases that will represent the great majority of WWTP. The first case will cover water treatment with biological treatment only including carbon, nitrogen and phosphorus removal. This case will represent WWTP with less than 100 000 PE (Person Equivalent). The second case will cover water treatment with primary treatment and biological treatment that still includes carbon, nitrogen and phosphorus removal. This case will represent WWTP with more than 100 000 PE. Only WWTP with biological treatment is considered in the following.

2.2. Biological treatment modelling within the WWTP

Biological treatment is modelled in this paper as an aerobic activated sludge process (ASP) as it is the most common encountered technology and oldest biotreatment process used to treat municipal and industrial wastewater. ASP takes place in the presence of air and utilizes microorganisms called aerobes, which use oxygen to assimilate organic matter from wastewater (from primary treatment or direct sewage) and convert them into carbon dioxide, water and biomass. ASP basically comprises an aeration tank followed by secondary clarifier. The aeration tank is a completely mixed or a plug flow (in some cases) bioreactor where specific concentration of biomass is maintained along with sufficient dissolved oxygen (DO) concentration to effect biodegradation of soluble organic matter measured as biochemical oxygen demand (BOD_5) or chemical oxygen demand (COD). The aeration tank is provided with fine bubble diffused aeration pipework at the bottom to transfer required oxygen to the biomass and also ensure completely mixed reactor. The aerated mixed liquor from the aeration tank overflows by gravity to the secondary clarifier unit to separate out the biomass and allow clarified, treated water to the downstream filtration system for finer removal of suspended solids. The separated biomass is returned to the aeration tank by means of return activated sludge (RAS) pump. Excess biomass (i.e. the sludge) produced during the biodegradation process is sent to the sludge treatment process (Mittal, 2011).

Three main sub-processes occur during ASP, respectively the degradation of the organic matter (referred later as organic carbon removal), the nitrogen removal and the phosphorus removal.

The organic carbon removal occurs since the soluble organic matter is consumed by heterotrophic microorganisms in presence of oxygen according to two biological mechanisms. These mechanisms are bacterial growth and decay; the heterotrophic microorganisms will use oxygen to synthesize new cells and to the autolysis of part of this new biomass respectively.

The nitrogen removal is resulting from four operations: ammonification, assimilation, nitrification and denitrification (Degrémont, 2005). Ammonification is the conversion of organic nitrogen to ammonium (NH_4^+) by the action of decomposers (bacteria). As the retention time of wastewater in ASP is long enough, the majority of organic nitrogen is transformed in ammonium. Assimilation is the use of part of the ammonium in the synthesis of new cell during bacterial growth during organic carbon removal. As these two operations are closely linked to

organic carbon removal, in the following the nitrogen removal will specifically concern nitrification and denitrification.

Nitrification is the stepwise oxidation of ammonia (NH_4^+) to nitrite (NO_2^-) and then nitrate (NO_3^-) by oxygen (O_2) performed by two groups of slow-growing “nitrifying bacteria”- the ammonia oxidizers (AOB) and the nitrite oxidizers (NOB). Denitrification is the reduction of nitrite (NO_2^-) and nitrate (NO_3^-) to nitrogen gas (N_2) by heterotrophic microorganisms under anoxic conditions.

The phosphorus removal can be processed according three methods: the “normal” biological use of P for cell material during carbon removal, chemical precipitation and enhanced biological P removal (EBPR). The “normal” biological P removal refers to the use of part of the phosphorus in the synthesis of new cell during bacterial growth during organic carbon removal. EBPR requires aeration basin with initial anaerobic zone followed by aerobic zone. The anaerobic zone must have virtually zero oxygen and nitrate concentrations but organic matter must be present in feed. This EBPR process allows greater concentration of P in the sludge compared to “normal” biological P removal (respectively 6% and 1.5% of sludge composition) (Degrémont, 2005). When biological P removal is not sufficient enough to reach the quantity of P in the water effluent set by the legislation, a chemical precipitation is required. P precipitation is done by the addition of a chemical salts leading in a production of chemical sludge such as iron (III) phosphate or aluminium phosphate depending on the salt used.

3. Determination of process-related parameters for biological treatment

Two process-related parameters were identified for biological treatment. Carbon, nitrogen and phosphorus removals in biological treatment are influenced first by the oxygen demand. The oxygen demand is the oxygen needed to proceed to the carbon and nitrogen removal. Phosphorus removal does not need specific oxygen demand as it is already assimilated by the heterotrophic bacteria that proceed to carbon and nitrogen removal. The second process-related parameter for biological treatment is the alternation of the aerobic and anoxic period within the aeration basin to proceed to an optimal nitrogen removal by denitrification.

3.1. Oxygen demand

The oxygen demand (OD) for carbon removal is determined by the direct oxidation of organic matter (bacterial growth) and the indirect oxidation for bacteria autolysis (decay). The direct oxidation is little dependent on the food-to-mass ratio (F/M ratio) and is equivalent to 0.64 kg O_2 /kg BOD_5 (stated that 1 kg of BOD_5 equals 2.4 kg of COD and that a third of 80% of COD is directly oxidized). The indirect oxidation is dependent on the F/M ratio, set to 0.1 for Activated Sludge Processes (ASP), and is equivalent to 0.76 kg O_2 /kg BOD_5 (stated that 1 kg of TSS required 1.2 kg of oxygen to be eliminated, and the quantity of oxidized TSS in ASP is equal to 0.63 kg).

The oxygen demand for nitrogen removal is used to the oxidation of ammonium during the nitrification operation. The nitrification of 1 kg of N-NH_4^+ requires 4.25 kg of O_2 according to

the stoichiometric equation of nitrification (Equation SI-3). As 0.2 kg of N-NH_4^+ is oxidized for each kg of BOD_5 (considering a standard concentration of 60 mg $\text{N-NH}_4^+/\text{l}$ and 300 mg BOD_5/l) then the oxygen demand for nitrification will be 0.85 kg $\text{O}_2/\text{kg BOD}_5$.

The total oxygen demand for carbon and nitrogen removal therefore equals 2.25 kg $\text{O}_2/\text{kg BOD}_5$

The oxygen demand ratio for carbon and nitrogen removal is calculated as follow:

$$\beta_{\text{OD,nutrient removal}} = \frac{\text{OD}_{\text{nutrient removal}}}{\text{OD}_{\text{total}}}$$

where $\text{OD}_{\text{nutrient removal}}$ is the oxygen demand used to the removal of each nutrient (carbon or nitrogen) and OD_{total} is the total oxygen demand.

So that

$$\beta_{\text{OD,carbon removal}} = \frac{0.76+0.64}{2.25} = 0.622 \quad \text{and} \quad \beta_{\text{OD,nitrogen removal}} = \frac{0.85}{2.25} = 0.378$$

$$\text{with } \sum \beta_{\text{OD}} = 1$$

3.2. Alternation of the aerobic and anoxic period

Carbon removal, nitrification and phosphorus assimilation is completed in the presence of oxygen within the aeration basin while denitrification will be completed only if there is no oxygen. To fulfil the best condition for all these operations, the aeration within the basin is sequenced so that aeration period and anoxic period (AAP) alternate. Carbon removal and nitrification operations are optimum when oxygen is present for 16h in a 24h cycle; denitrification is completed during the remaining 8h.

The aerobic and anoxic alternation period ratio for carbon, nitrogen and phosphorus removal is calculated as follow:

$$\beta_{\text{AAP,nutrient removal}} = \frac{\%_{\text{aerobic period}}}{n_{\text{aerobic operation}}} + \frac{\%_{\text{anoxic period}}}{n_{\text{anoxic operation}}}$$

where $\%_{\text{aerobic period}}$ is the part of aerobic period within a complete cycle (i.e. $16/24 = 0.666$), $n_{\text{aerobic operation}}$ is the number of aerobic operation (i.e. carbon removal, nitrogen removal by nitrification, phosphorus removal), $\%_{\text{anoxic period}}$ is the part of anoxic period within a complete cycle (i.e. $8/24 = 0.334$), $n_{\text{anoxic operation}}$ is the number of anoxic operation (i.e. nitrogen removal by denitrification).

So that

$$\beta_{\text{AAP,carbon removal}} = \beta_{\text{AAP,phosphorus removal}} = \frac{0.666}{3} = 0.222 \text{ and}$$

$$\beta_{AAP, \text{nitrogen removal}} = \frac{0.666}{3} + \frac{0.334}{1} = 0.556 \quad \text{with } \sum \beta_{AAP} = 1$$

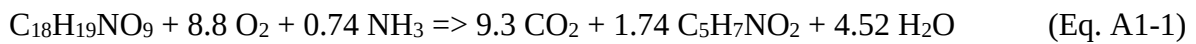
4. Determination of product-related parameters for biological treatment

Product-related parameters are intrinsic parameters that directly reflect the product genesis within a specific process. Sludge production resulting from carbon and nitrogen removal is dependent of the relative stoichiometric equations while that from phosphorus removal depends on chemical precipitation and assimilation performance.

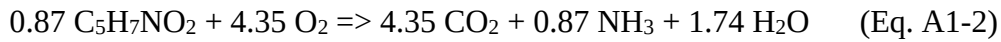
4.1. Sludge production from carbon removal

The average composition of organic material in the wastewater is assumed to be $C_{18}H_{19}NO_9$ while the average composition of the biomass produced, i.e, the sludge, is assumed to be $C_5H_7NO_2$ (Deronzier et al., 2001; Hahn et al., 1998). The degradation of organic matter by bacteria is done according to respectively biomass synthesis (Equation A1-1) and bacteria decay by endogenous respiration (Equation A1-2).

Biomass synthesis



Decay



Product-related parameter for carbon removal is based on carbon content in the final product compared to carbon content in the wastewater. The Chemical Oxygen demand (COD) needed to degrade 1 mole of organic matter is set to 8.8 moles of oxygen for biomass synthesis ($n_{O_2, \text{synthesis}}$) and 4.35 moles of oxygen for decay ($n_{O_2, \text{decay}}$). Carbon removal therefore needs 420.8 g of oxygen to produce 196.62 g of biomass ($1.74 \times m_{\text{biomass}}$ set at 113) so that 0.47 g of biomass is produced for each gram of eliminated COD.

The product-related parameter for sludge production is then calculated as follow:

$$\alpha_{C, \text{sludge}} = \frac{m_{C, \text{sludge}} \cdot \%_{C, \text{sludge}}}{m_{C, \text{wastewater}} \cdot \%_{C, \text{wastewater}}} = 0.451$$

$$\text{With } m_{C, \text{sludge}} = \frac{1.74 \cdot m_{\text{biomass}}}{(n_{O_2, \text{decay}} + n_{O_2, \text{synthesis}}) \cdot 32}$$

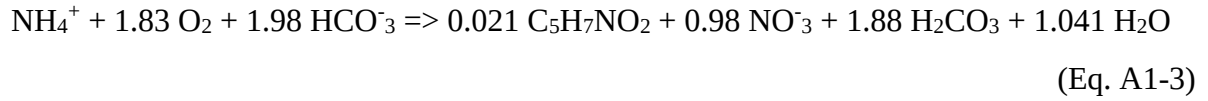
Where $m_{C, \text{sludge}}$ is the quantity of biomass produced for each gram of eliminated COD (i.e. 0.47 g), $m_{C, \text{wastewater}}$ is the quantity of wastewater eliminated (i.e. 1 g COD), $\%_{C, \text{sludge}}$ is the proportion of C into the biomass (i.e. $(5 \cdot 12)/113$) and $\%_{C, \text{wastewater}}$ is the proportion of C into wastewater (i.e. $(18 \cdot 12)/393$).

As $\sum \alpha_C = 1$, it can be stated that $\alpha_{C,water} = 1 - \alpha_{C,sludge} = 0.549$.

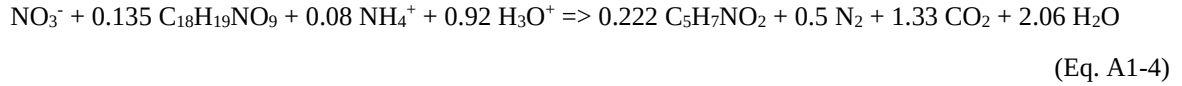
4.2. Sludge production from nitrogen removal

Sludge production occurs both from nitrification and denitrification operation. Stoichiometric equations for nitrification and denitrification are reported respectively in Equation A1-3 and A1-4 (Deronzier et al., 2001; Qasim S.R, 1998).

Nitrification



Denitrification



Product-related parameter for sludge production from nitrogen removal is calculated according to these two stoichiometric equations.

According to Equation A1-3, for every mole of NH_4^+ -N oxidized, 0.98 mole of NO_3^- -N is produced. According to Equation A1-4, for every mole of denitrified NO_3^- -N, 1.1 moles of carbon from biomass and 0.222 moles of nitrogen from biomass are produced. The number of mole of carbon is included in the sludge production from nitrogen removal from denitrification as part of the organic matter is used as a substrate. The total amount of carbon and nitrogen moles from the produced biomass will therefore equal to 0.021 mole of nitrogen from nitrification and 1.295 moles of carbon and nitrogen from denitrification (as only 0.98 mole of NO_3^- -N is considered).

The total amount of carbon and nitrogen moles produced from denitrification is equal to 3.589 (as only 0.98 mole of NO_3^- -N is considered).

The product-related parameter for sludge production is then calculated as follow:

$$\alpha_N = \frac{n_{N,sludge} + n_{C,N,sludge,DN}}{n_{C,N,total}}$$

$$\text{with } n_{C,N,sludge,DN} = n_{N,NO_3} \cdot \left((n_{C,biomass} + n_{N,biomass}) \cdot n_{DN,sludge} \right)$$

$$\text{And } n_{C,N,total} = n_{C,N,sludge,DN} + n_{N,NO_3} \cdot \left((n_{N,N_2} \cdot n_{DN,N_2}) + n_{DN,CO_2} \right)$$

$$\text{So that } \alpha_N = \frac{0.021+1.295}{3.589} = 0.365$$

Where $n_{N,sludge}$ is the number of nitrogen mole from biomass produced from nitrification, $n_{C,N,sludge,DN}$ is the number of carbon and nitrogen mole from biomass produced from denitrification, $n_{C,N,total}$ is the total number of carbon and nitrogen mole produced from denitrification considering a 0.98 correction factor (i.e. amount of NO_3^- -N produced from nitrification), n_{DN,N_2} is the number of moles of N_2 from denitrification, n_{DN,CO_2} is the number of moles of CO_2 from denitrification, $n_{DN,sludge}$ is the number of moles of biomass from denitrification, $n_{c,biomass}$ is the number of carbon atom into biomass, $n_{n,biomass}$ is the number of nitrogen atom into biomass, n_{n,N_2} is the number of nitrogen atom into N_2 .

As $\sum \alpha_N = 1$, it can be stated that $\alpha_{N,water} = 1 - \alpha_{N,sludge} = 0.635$.

4.3. Sludge production from phosphorus removal

Sludge production from phosphorus removal is the result of two operations: the phosphorus accumulation within the bacteria and an additional chemical precipitation when phosphorus removal is not sufficient enough to reach the legal phosphorus concentration to be released within the natural media. Phosphorus removal by accumulation is dependent on the COD/P ratio of the influent and the F/M ratio. The phosphorus removal efficiency by assimilation can range from 20% to 60% for a 0.1 F/M ratio depending on the COD/P ratio (Stricker and Heduit, 2010). Average removal efficiency will be set at 30% in the following for biological treatment.

Chemical precipitation of phosphorus can be done using reactant based on iron, aluminum or calcium. In the following, only reactant based on iron will be used as it is common reactant used in wastewater treatment. Evolution of chemical phosphorus removal efficiency ($RE_{chemical}$) is function of Fe/P molar ratio and dependent of the P influent concentration. Chemical phosphorus removal efficiency can be calculated with Equation A1-5 (Canler and Perret, 2007).

$$RE_{chemical} = (27.717 \cdot \ln(Fe/P \text{ molar ratio}) + 50.776) / 100 \quad (\text{Eq. A1-5})$$

The product-related parameter for sludge production is then calculated as follow:

$$\alpha_{P,sludge} = RE_{assimilation} + ((1 - RE_{assimilation}) \cdot RE_{chemical}) = 0.769$$

Where $RE_{assimilation}$ is the phosphorus removal efficiency by assimilation (i.e. 0.3 for biological treatment), $RE_{chemical}$ is the phosphorus removal efficiency by chemical precipitation considering Equation SI-5 and a Fe/P ratio value of 1.8 used to reach a 70% removal efficiency.

As $\sum \alpha_P = 1$, it can be stated that $\alpha_{P,water} = 1 - \alpha_{P,sludge} = 0.231$.

5. Determination of the range of variation for process- and product-related parameters

The range of variability was determined for 11 relevant variables that impact the calculation of process- and product-related parameters.

5.1. Range of variation value for process-related parameter for biological treatment

Three variables were used to assess the variability of process-related parameters: direct and indirect oxidation for carbon removal, oxidation of ammonium for nitrogen removal, duration of the aerobic period.

Direct oxidation of organic matter is determined according to the COD/BOD₅ ratio. The current COD/BOD₅ ratio is set to 2.4 but this ratio may vary from 2 to 2.8 (Henze and Comeau, 2005; Mercoiret, 2010). In consequence, the amount of oxygen may vary from 0.533 to 0.746 kg O₂/kg BOD₅ (cf. Figure 30).

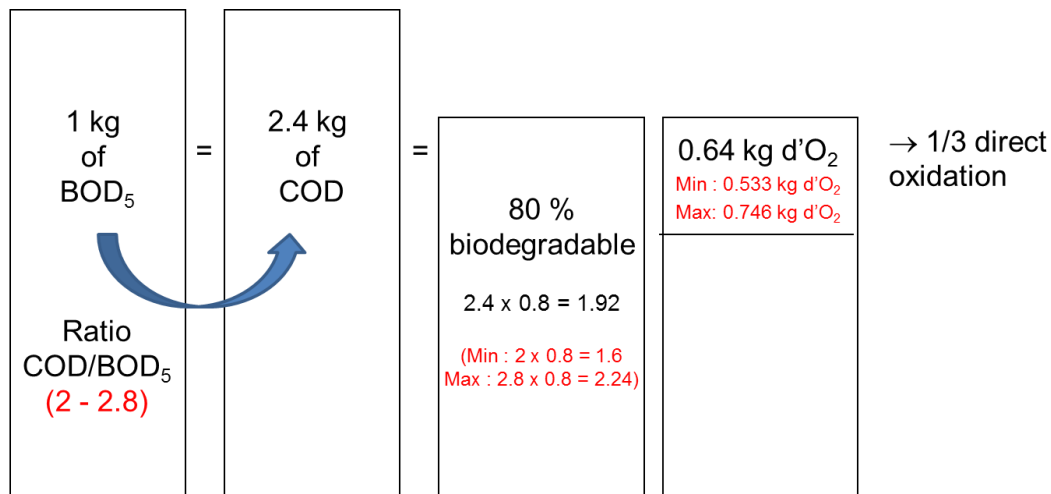


Figure 30. Range of variation (in red) for direct oxidation

Indirect oxidation of organic matter is determined by the quantity of oxidized TSS. The current value for the oxidized TSS is set to 0.63 kg but this value may range from 0.43 to 0.68 depending on the specific sludge production so that the amount of oxygen may vary from 0.516 to 0.816 kg O₂/kg BOD₅ (cf. Table 12). Finally, the total oxygen demand for carbon removal will vary from 1.049 to 1.562 kg O₂/kg BOD₅.

Table 12. Range of variation (in red) for indirect oxidation

Specific sludge production for a 0.1 F/M ratio (kg de TSS/kg eliminated BOD ₅)	Oxidized TSS quantity (kg TSS)	Amount of O ₂ needed for indirect oxidation ^a (kg de TSS/kg eliminated BOD ₅)
0.7	0.63 (1.33 – 0.7)	0.63 x 1.2 = 0.76
Min : 0.65	0.68 (1.33 – 0.65)	0.68 x 1.2 = 0.816
Max : 0.9	0.43 (1.33 – 0.9)	0.43 x 1.2 = 0.516

^a 1.2 kg of O₂ is needed to oxidize 1 kg of TSS

Oxidation of ammonium during the nitrification process is determined according to the amount of N-NH₄⁺ oxidized for each kg of BOD₅. The current value is set to 0.2 kg but may vary from 0.15 to 0.2 kg depending on the NH₄⁺ and BOD₅ concentrations of the influent. If the minimum respective concentrations are 30 and 200 mg/l, the amount of oxygen for nitrification will be calculated as $4.25/(200/30) = 0.6375$ kg d'O₂/kg DBO₅. If the maximum respective concentrations are 80 and 400 mg/l, the amount of oxygen for nitrification will be calculated as $4.25/(400/80) = 0.85$ kg d'O₂/kg DBO₅. In consequence, the amount of oxygen for nitrification may vary from 0.638 to 0.85 kg O₂/kg BOD₅.

Carbon removal is optimum when the presence of oxygen within the aeration basin ranges between 16 and 18 hours while this value is lower to 15-16 hours for an optimal nitrogen removal. In consequence, the range of variation is set between 15 and 18 hours so that both carbon and nitrogen removal efficiency are considered.

5.2. Range of variation value for product-related parameter for biological treatment

Eight variables were used to assess the variability of process-related parameters: amount of moles of oxygen used for decay during carbon removal, amount of moles of NO₃⁻ and biomass produced during nitrification, amount of biomass, N₂ and CO₂ produced during denitrification, phosphorus removal efficiency by assimilation and Fe/P molar ratio.

Base on the carbon removal stoichiometric equations (equations SI-1 and SI-2), 0.67 g of COD are used for bacteria synthesis ($8.8 \text{ moles d'O}_2 / 4.35 + 8.8 \text{ moles d'O}_2$) and 0.33 g of COD are used for bacteria decay ($4.35 \text{ moles d'O}_2 / 4.35 + 8.8 \text{ moles d'O}_2$). In consequence, 49.25% of the sludge produced is used as a substrate for endogenous respiration. As the amount of O₂ needed for indirect oxidation ranges from 0.43 to 0.68 kg TSS/kg eliminated BOD₅ and the Specific sludge production for a 0.1 F/M ratio ranges from 0.65 to 0.9 kg (cf. Table 12), the amount of sludge used for endogenous respiration varies from 46.14% (0.43/0.65) to 75.55% (0.68/0.9). As a consequence, the number of moles of O₂ used for bacteria decay ranges from 4.015 moles ((1.74 x 46.14%) x 4.35/0.87) to 6.55 moles ((1.74 x 75.55%) x 4.35/0.87).

The current value for nitrification and denitrification were set assuming an optimal operation functioning. The maximum value will therefore be identical to the current value while the

minimum value will be set assuming a bad functioning of the operation (i.e. only 30% of the total ammonium is nitrified and 85% of the nitrates are denitrified). The whole parameter used for nitrogen removal will therefore be minimised consequently (cf. Table 13).

Table 13. Range of variation (in red) for nitrogen removal

Product related parameter for nitrogen removal		Current and maximum value	Minimum value
n_{N,NO_3}	Moles of NO_3^- from nitrification	0.98	$0.30 \cdot 0.98 = 0.294$
$n_{N,sludge}$	Moles of biomass from nitrification	0.021	$0.021 \cdot 0.30 = 0.0063$
n_{DN,N_2}	Moles of N_2 from denitrification	0.5	$0.5 \cdot 0.85 = 0.425$
n_{DN,CO_2}	Moles of CO_2 from denitrification	1.33	$1.33 \cdot 0.85 = 1.1305$
$n_{DN,sludge}$	Moles of biomass from denitrification	0.222	$0.222 \cdot 0.85 = 0.1887$

As an average value was used for phosphorus removal by assimilation efficiency, the variability for this data will therefore range between the minimum and maximum value used to calculate this average, i.e. 0.2 to 0.4. The Fe/P molar ratio will be set so that chemical phosphorus precipitation will complete phosphorus removal by assimilation and therefore ranges between 1.5 and 2 (cf. Figure 31).

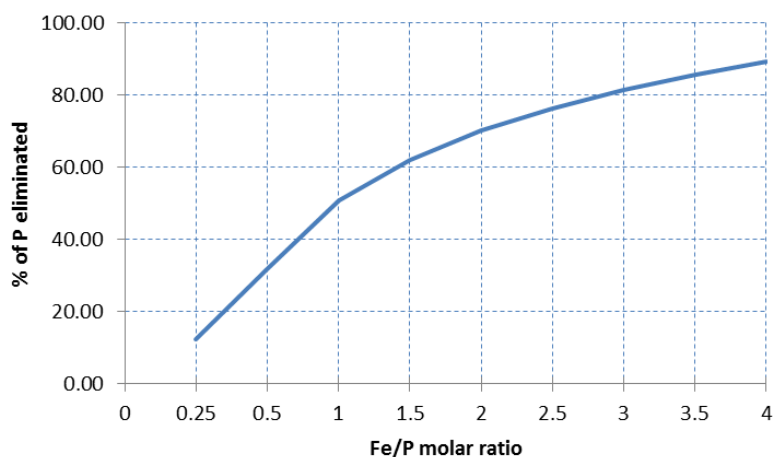


Figure 31. Evolution of P removal efficiency according to Fe/P molar ratio (adapted from Canler and Choubert, 2007)

6. References

Canler, J.P., Choubert, J.M., 2007. Les clarifloculateurs plus particulièrement utilisés en traitement tertiaire, Dossier technique, FNDAE n°35. p. 80.

Degrémont, 2005. Memento technique de l'eau. Dixième édition. Lavoisier SAS. 1718 pages.

Deronzier, G., Schétrite, S., Racault, Y., Canler, J.P., Liénard, A., Héduit, A., Duchène, P., 2001. Traitement de l'azote dans les stations d'épuration biologique des petites collectivités, Document technique FNDAE n°25. p. 79.

Hahn, H., 2012. Chemical Water and Wastewater Treatment V, 8th Gothenburg Symposium September 07-09, 1998 Springer Science & Business Media, Prague, Czech Republic, p. 414.

Henze, M., Comeau, Y., 2008. Chapter 3. Wastewater Characterization. In: Biological Wastewater Treatment: Principles Modelling and Design. Edited by M. Henze, M.C.M. van Loosdrecht, G.A. Ekama and D. Brdjanovic. ISBN: 9781843391883. Published by IWA Publishing, London, UK. 20 pages.

Mercoiret, L., 2010. Qualité des eaux usées domestiques produites par les petites collectivités - Application aux agglomérations d'assainissement inférieures à 2 000 Equivalent Habitants. Rapport final, Onema, 55 pages.

Mittal, A., 2011. Biological Wastewater Treatment. Water Today (1) August, 32-44.

Qasim, S.R., 1998. Wastewater Treatment Plants: Planning, Design, and Operation. Second Edition, CRC Press.

Stricker, A.E., Héduit, A., 2010. Phosphore des eaux usées - Etat des lieux et perspectives, Rapport final, Onema-Cemagref. p. 54.

Annexe 2. Application de la méthode d'allocation au raffinage du pétrole

La méthode d'allocation par répartition proposée dans la thèse est en théorie applicable à d'autres procédés de séparation (qu'ils soient de nature physique, chimique, biologique ou thermique) caractérisés comme système indivisible produisant de manière combinée plusieurs coproduits.

Afin de vérifier l'applicabilité de la méthode à un autre procédé de séparation que celui étudié dans la thèse, nous avons choisi de la tester sur un procédé de séparation thermique relativement simple, le raffinage du pétrole, et de comparer le facteur d'allocation obtenu à des facteurs d'allocation classiquement utilisés en ACV.

1. Description du procédé de distillation atmosphérique du raffinage du pétrole

Les opérations de raffinage du pétrole peuvent être séparées en trois catégories : le fractionnement, la conversion et la purification. Le fractionnement, également appelé distillation, est la première étape de raffinage subie par le pétrole et consiste à séparer le pétrole brut dans une tour de distillation en groupes de composés hydrocarbonés appelés « fractions » ou « coupes pétrolières » (Wauquier, 2008). Les coupes pétrolières ayant ensuite chacune sa propre étape de conversion et purification, l'application du facteur d'allocation se fait lors de cette première étape.

Le procédé de distillation atmosphérique débute par un préchauffage du pétrole brut préalablement dessalé. Le pétrole est ensuite chauffé à une température maximale de 400°C (au-delà de cette température, un craquage thermique indésirable peut se produire) puis envoyé dans la tour de distillation à pression atmosphérique constante. Le pétrole, sous l'action de la chaleur, se décompose en fractions plus ou moins volatiles. Les fractions les plus légères, les gaz, sont collectées en haut de la tour de distillation, les fractions les plus lourdes, le bitume, en bas. Les autres fractions sont récupérées à différentes hauteurs de la tour de distillation au moment où la fraction se refroidit au point d'ébullition et se condense.

Les principales fractions obtenues sont caractérisées par leur point d'ébullition et sont par ordre décroissant de volatilité des gaz (point d'ébullition < 20°C), des naphtas (point d'ébullition compris entre 20 et 70°C pour les naphta légers et entre 70 et 160°C pour les naphtas lourds), du kérosène (point d'ébullition compris entre 160 et 250°C), du gasoil (point d'ébullition compris entre 250 et 350°C) et du bitume (point d'ébullition > 350°C) (Franck and Stadelhofer, 2012; Wauquier, 2008).

2. Calcul du facteur d'allocation pour la distillation atmosphérique du pétrole

2.1. Détermination des paramètres produits et procédés

L'opération de distillation atmosphérique du pétrole est conditionnée par la température initiale du pétrole brut. Comme la pression atmosphérique est considérée constante, le seul paramètre

procédé influençant la distillation est la température (400°C) et donc $\beta_{T^{\circ} \text{ pétrole, distillation}}$ sera égal à 1.

L'obtention de chaque fraction étant conditionnée par le point d'ébullition, ce dernier peut être considéré comme un paramètre produit pertinent. Pour calculer le ratio du paramètre produit, nous faisons l'hypothèse que chaque coupe pétrolière n'est obtenue que pour un écart déterminé de température. Chaque coupe a donc un point d'ébullition maximum noté $T^{\circ}_{\max, r}$. La différence entre le point d'ébullition maximum de la coupe r ($T^{\circ}_{\max, r}$) et le maximum de la coupe supérieure ($T^{\circ}_{\max, r+1}$) donne l'écart de température au cours duquel le produit se forme.

Chaque écart de température ramené à la différence entre la température maximale ($T^{\circ}_{\max, \text{distillation}}$) et minimale ($T^{\circ}_{\min, \text{distillation}}$) de la tour de distillation donne le paramètre produit α pour chaque fraction (Equation A2-1).

$$\alpha_{\text{distillation, fraction}} = \frac{\sum_{r=1}^q (T^{\circ}_{\max, r} - T^{\circ}_{\max, r+1})}{T^{\circ}_{\max, \text{distillation}} - T^{\circ}_{\min, \text{distillation}}} \quad (\text{Eq. A2-1})$$

avec $\sum_{r=1}^q \alpha_{\text{distillation, fraction}} = 1$

Le détail du calcul de $\alpha_{\text{distillation, fraction}}$ est présenté dans le Tableau 14.

Tableau 14. Calcul de $\alpha_{\text{distillation, fraction}}$ pour chaque fraction obtenue à partir du procédé de distillation atmosphérique

Fraction r	Fraction $r+1$	$T^{\circ}_{\max, r}$	$T^{\circ}_{\max, r+1}$	$\alpha_{\text{distillation, fraction}}$
Gaz	None	20°C	- ^a	$\alpha_{\text{distillation, gaz}} = \frac{20}{400} = 0.05$
Naphta	Gaz	160°C	20°C	$\alpha_{\text{distillation, naphta}} = \frac{160 - 20}{400} = 0.35$
Kérosène	Naphta	250°C	160°C	$\alpha_{\text{distillation, kérosène}} = \frac{250 - 160}{400} = 0.225$
Gasoil	Kérosène	350°C	250°C	$\alpha_{\text{distillation, gasoil}} = \frac{350 - 250}{400} = 0.25$
Bitume	Gasoil	400°C	350°C	$\alpha_{\text{distillation, bitume}} = \frac{400 - 350}{400} = 0.125$

^a Comme aucune fraction n'est condensée après le gaz, l'hypothèse est faite que $T^{\circ}_{\max, r+1}$ est égal à $T^{\circ}_{\min, \text{distillation}}$. Le paramètre $T^{\circ}_{\min, \text{distillation}}$ est arbitrairement fixé à zéro de telle manière que $T^{\circ}_{\max, \text{gaz}} = 20^{\circ}\text{C}$ et $T^{\circ}_{\max, \text{distillation}} - T^{\circ}_{\min, \text{distillation}} = 400^{\circ}\text{C}$.

2.2. Calcul du facteur d'allocation C_g

La relation entre le paramètre procédé et le processus pour le raffinage du pétrole est donné par $\beta_{T^{\circ} \text{ pétrole, distillation}}$. Comme $\beta_{T^{\circ} \text{ pétrole, distillation}}$ est égal à 1 et qu'un seul paramètre procédé est impliqué (i.e., $n=1$), $\delta'_{\text{distillation}}$ sera également égal à 1.

La matrice P est déterminée à partir des paramètres produits du Tableau 14:

$$P(\alpha_{\text{distillation, fraction}}) = [0.05 \quad 0.35 \quad 0.225 \quad 0.25 \quad 0.125]$$

Les étapes 2 à 4 consistent à construire la matrice d'inventaire corrective et à obtenir le facteur d'allocation générique et spécifique. Le facteur d'allocation générique est obtenu selon l'Equation A2-2.

$$C_g = \delta'_{\text{distillation}} \cdot P \quad (\text{Eq. A2-2})$$

$$\text{Donc } C_g = [0.05 \quad 0.35 \quad 0.225 \quad 0.25 \quad 0.125]$$

Comme la tour de distillation est le seul processus unitaire évalué, tous les flux d'inventaire mobilisés sont spécifiques de ce processus, les facteurs d'allocation générique et spécifique seront identiques. Au final, les impacts environnementaux associés à chaque coupe pétrolière sont respectivement alloués à hauteur de 5% pour le gaz, 35% pour le naphta, 22.5% pour le kérosène, 25% pour le gasoil et 12.5% pour le bitume.

3. Comparaison avec d'autres facteurs d'allocation

Le facteur d'allocation ainsi obtenu a été comparé avec des facteurs d'allocation basés sur des proxys tels que la masse, le volume et le potentiel énergétique. Le facteur d'allocation basé sur la masse implique une répartition de la charge environnementale pour chaque produit en fonction du pourcentage de leur masse générée par la tour de distillation. Le facteur d'allocation basé sur le volume peut être déduit de l'allocation massique en utilisant la densité de chaque coupe. L'allocation basée sur le potentiel énergétique est obtenue grâce à la valeur du pouvoir calorifique inférieur (PCI) massique. Les caractéristiques de la masse, du volume et du PCI massique pour chaque coupe sont indiquées dans le Tableau 15.

Tableau 15. Caractéristiques des masses, volumes, PCI massiques pour chaque coupe pétrolière du processus de distillation atmosphérique du pétrole

Coupe	Masse de coupe produite (en kg pour 1 tonne de brut) ^a	Volume of coupe produite (en litre) ^b	PCI massique (MJ.kg ⁻¹) ^c
Gaz	10	18.18	46.0
Naphta	220	291.39	42.7
Kérosène	90	114.65	43.5
Gasoil	270	321.43	42.6
Résidu	410	431.58	41.4

^a IFPEN (<http://www.ifpenergiesnouvelles.fr>)

^b déduit de la masse et de la densité à 15°C de chaque coupe (gaz: 0.550 kg.l⁻¹; naphta: 0.755 kg.l⁻¹; kérosène: 0.785 kg.l⁻¹; gasoil: 0.840 kg.l⁻¹; résidu: 0.950 kg.l⁻¹)

^c (Guibet, 2000)

Les facteurs d'allocation, traduisant une relation causale technique, basés sur la masse, le volume ou le PCI massique sont comparés au facteur d'allocation basé sur les paramètres procédés et produits dans le Tableau 16.

Tableau 16. Facteurs d'allocation basés sur la masse, le volume, le pouvoir calorifique inférieur et les paramètres procédés et produits de chaque coupe pétrolière obtenue lors de la distillation du pétrole brut

Coupe	Facteur d'allocation massique	Facteur d'allocation volumique	Facteur d'allocation énergétique	Facteur d'allocation basé sur les paramètres procédés et produits
Gaz	1 %	2 %	1 %	5 %
Naphta	22 %	25 %	22 %	35 %
Kérosène	9 %	10 %	9 %	22.5 %
Gasoil	27 %	27 %	27 %	25 %
Bitume	41 %	37 %	41 %	12.5 %
Total	100%	100 %	100 %	100 %

Les facteurs d'allocation massique et volumique sont assez proches car le volume est déduit de la masse selon la densité de chaque coupe, similaire d'une coupe à l'autre. La charge environnementale est répartie selon la même proportion entre les coupes que ce soit en utilisant des facteurs d'allocation massique ou volumique. Le facteur d'allocation énergétique basé sur le PCI massique de chaque coupe est réparti de la même manière que pour les autres facteurs d'allocation.

Ces trois facteurs d'allocation donnent finalement peu ou prou les mêmes résultats. La contribution la plus élevée est pour le résidu atmosphérique, c'est-à-dire la partie "déchets" de la tour de distillation, car elle a la masse et le volume le plus important (37-41%). Les contributions les plus faibles sont pour le gaz (1-2%) et le kérosène (9-10%). Le naphta et le gasoil fournissent la moitié de la contribution en proportion égale (respectivement 22-25% et 27%).

Le facteur d'allocation paramètre-dépendant donne des résultats différents : naphta (35%), gasoil (25%), kérosène (22,5%), résidu (12,5%) et gaz (5%). L'utilisation de ce facteur d'allocation permet de répartir la charge environnementale de la tour de distillation atmosphérique aux coupes présentant une valeur ajoutée (naphta, gasoil et kérosène) par rapport aux autres facteurs d'allocation qui attribuent principalement la charge environnementale au résidu (c'est-à-dire le bitume). Plusieurs explications peuvent être avancées.

Tout d'abord, l'utilisation d'un facteur d'allocation massique pour le raffinage du pétrole brut implique l'allocation d'une charge environnementale en fonction du poids de chaque coupe. Ainsi, la fraction la plus lourde, le résidu, aura un impact environnemental plus important que les principaux produits énergétiques à valeur ajoutée obtenus à partir de la distillation, c'est-à-dire le naphta, le kérosène ou le gasoil qui sont plus légers.

Comme le facteur d'allocation volumique est déduit du facteur d'allocation massique selon la densité de chaque coupe et que les densités ne sont pas très différentes (de 0,75 kg.l⁻¹ à 0,84 kg.l⁻¹), à l'exception des gaz (0,55 kg.l⁻¹) et des résidus (0,95 kg.l⁻¹), la contribution environnementale est presque identique à celle du facteur d'allocation massique.

Le facteur d'allocation énergétique peut être un facteur d'allocation intéressant pour le raffinage du pétrole brut puisque les produits obtenus à partir du pétrole brut sont principalement des produits énergétiques. Cependant, du fait de la faible différence observée entre les PCI massiques de chaque coupe (compris entre 41 et 46 MJ.kg⁻¹), ce paramètre ne présente pas de discrimination entre chaque coupe car elle est fortement liée au facteur d'allocation massique.

A contrario, l'utilisation d'un facteur d'allocation paramètre-dépendant peut s'avérer pertinente dans la mesure où la répartition de la charge environnementale de la tour de distillation est répartie de manière équilibrée entre les coupes pétrolières d'intérêt.

4. Références

Guibet JC (2000) Les carburants et la combustion. Techniques de l'Ingénieur Référence BM2520 v1, pp 1-28.

Franck HG, Stadelhofer JW (2012) Industrial Aromatic Chemistry: Raw Materials • Processes • Products. Springer Berlin Heidelberg.

Wauquier P (2008) Raffinage du pétrole (Le). Tome 2. Procédés de séparation. Editions Technip.

Annexe 3. Word Supplementary information for “Assessing environmental impacts of phosphate fertilizer production from wastewater sludge and phosphate ore – A life cycle assessment perspective”

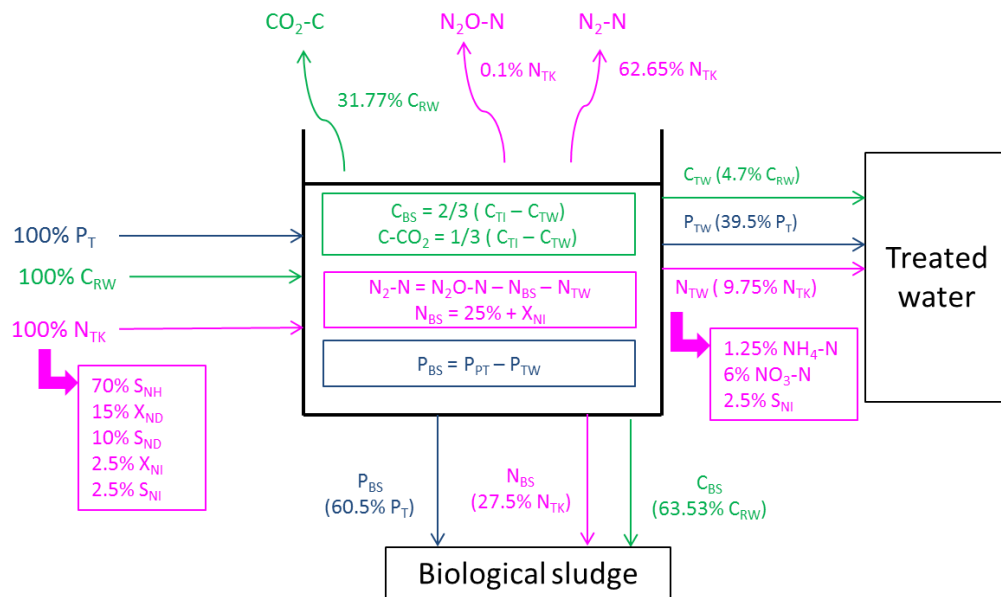
Table 17. Hypotheses used to calculate mass balance for sludge treatment for WWTP 1

Sludge process performance	Flotation Thickening	Dewatering	Storage
TSS capture rate	95%	94%	-
Carbon capture rate	95%	98%	-
Nitrogen capture rate	95%	98%	-
Phosphorus capture rate	70%	98%	-
TSS reduction	1%	-	-
Carbon reduction	1.6%	-	-
Nitrogen mineralization	1.57% N _{tot}	-	-
P solubilization	-	100%	-
Lime dosage		42%	-
N ₂ O-N emissions	1.6% N _{tot}	-	1% N _{tot}
NH ₃ -N emissions	-	7% NH ₄ -N	4% NH ₄ -N
CH ₄ -C emissions	0.8% C _{org}	-	10% C _{org}
CO ₂ -C emissions	0.8% C _{org}	-	10% C _{org}

Table 18. Hypotheses used to calculate mass balance for sludge treatment for WWTP 2

Sludge process performance	Gravity Thickening	Centrifugal Thickening	Anaerobic digestion	Dewatering	Struvite precipitation	Storage	
				S2A	S2B	S2A	S2B
TSS capture rate	95%	95%		83%	83%	-	-
Carbon capture rate	95%	95%		98%	98%	-	-
Nitrogen capture rate	95%	95%		98%	6.36%	-	-
Phosphorus capture rate	70%	70%		98%	-	-	
P precipitation rate				-	48.7%		
TSS reduction	1%	-	29.5%	-	-	-	-
Carbon reduction	1.6%	-	42.4%	-	-	-	-
Nitrogen reduction	-	-	4.8%	-	-	-	
Nitrogen mineralization	1.57% N _{tot}	1% N _{tot}	42.4%	-	-	-	-
P solubilization	-	-	10%	-	-	-	-
N ₂ O-N emissions	1.6% N _{tot}	-	-	-	-	1% N _{tot}	-
NH ₃ -N emissions	-	-	-	7% NH ₄ -N	7% NH ₄ -N	4% NH ₄ -N	-
CH ₄ -C emissions	0.8% C _{org}	-		-		10% C _{org}	-
<i>From biogas leakage</i>			10% C _{org}				
CO ₂ -C emissions	0.8% C _{org}	-		-		10% C _{org}	-
<i>From biogas flare</i>			27% C _{org}				
<i>From cogeneration system</i>			11% C _{org}				

a) Mass flow balance for water treatment line of WWTP 1



b) Mass flow balance for water treatment line of WWTP 2

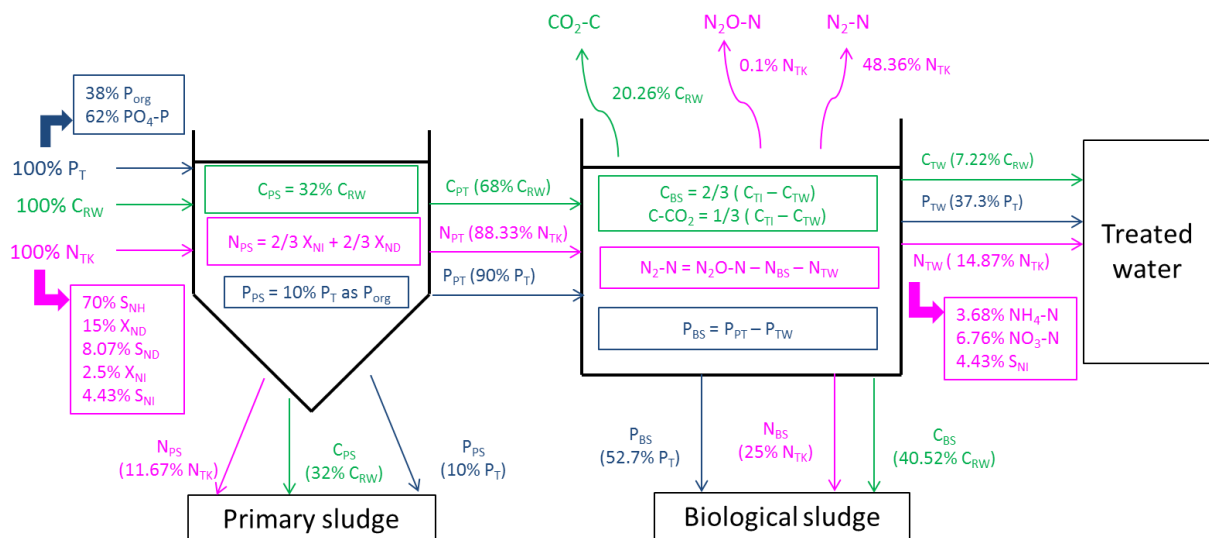


Figure 32. Mass flow balance for WWTP1 (a) and WWTP2 (option A and B) (b)

With

S_{NH} free and saline ammonia
 X_{ND} particulate biodegradable organic nitrogen
 S_{ND} soluble biodegradable organic nitrogen
 X_{NI} inert organic particulate matter
 S_{NI} inert soluble nitrogen
 PS Primary sludge
 BS Biological sludge

P_T Total Phosphorus in raw wastewater
 C_{RW} Total Carbon in raw wastewater
 N_{TK} Total Nitrogen in raw wastewater
 C_{TW} Total Carbon in released water
 P_{TW} Total Phosphorus in released water
 N_{TW} Total Nitrogen in released water
 PT Primary treatment

Infrastructure resource modelling for WWTP1 (S1)

1. Sewer network

1.1. Hypothesis

Sewer network for WWTP1 is assumed to be half the sewer network of WWTP 2. Life time of sewer network is assumed to be 50 years.

1.2. Sewer network infrastructure resources

Process used for sewer network modelling (for 1 piece (p) of sewer network)	Value	Unit	Reference used (Risch et al., 2015)
Wastewater network length	46	km	CP693
Mixed sewer network length (rainwater combined with wastewater)	80	km	CP002
Pumping station	3	unit	CP971

2. Pretreatment

2.1. Hypothesis

Pretreatment is modelled as a single unit (1 piece) using the following processes. Life time of pretreatment is assumed to be 1 year.

2.2. Pretreatment modelling

Process used for pretreatment modelling (for 1 piece (p) of pretreatment)	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Pretreatment				(Renou, 2006)
Electricity	174 800	kWh	FR: electricity, high voltage, production FR, at grid	
Odor treatment				
Electricity	130 000	kWh	FR: electricity, high voltage, production FR, at grid	
Soda	3 237	kg	RER: sodium hydroxide, 50% in H2O, production mix, at plant	
Bleach	2 577.3	kg	RER: sodium hypochlorite, 15% in H2O, at plant	
Sulfuric acid	736	kg	RER: sulphuric acid, liquid, at plant	
Grease treatment				
Ammonia	1 943.13	kg	RER: ammonia, liquid, at regional storehouse	
Phosphoric acid	1 137.08	kg	RER: phosphoric acid, industrial grade, 85% in H2O, at plant	
Electricity	87 400	kWh	FR: electricity, high voltage, production FR, at grid	

3. Water treatment line

3.1. Hypothesis

Life time of aeration basin and settle tank is assumed to be 30 years.

3.2. Water treatment infrastructure resources

Process used for water treatment modelling (for 1 piece (p) of water treatment infrastructure)	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Aeration basin				(Boutin et al., 2011)
Poor concrete	11 000	m3	Poor concrete, at plant	
Reinforced concrete	1 466	m3	Concrete, sole and foundation, at plant	
Aluminum	820	kg	Aluminum, production mix, at plant	
Cast iron	980	kg	cast iron, at plant	
Steel	815	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	
Copper	135	kg	Copper, at regional storage	
Polyethylene	200	kg	Polyethylene, HDPE, granulate, at plant	
Polyurethane	500	kg	Polyurethane, rigid foam, at plant	
Rubber	50	kg	Synthetic rubber, at plant	
Chromium steel	550	kg	Chromium steel 18/8, at plant	
Clarifier				
Poor concrete	933	m3	Poor concrete, at plant	
Reinforced concrete	1 562	m3	Concrete, sole and foundation, at plant	
Aluminum	700	kg	Aluminum, production mix, at plant	
Cast iron	220	kg	cast iron, at plant	
Chromium steel	500	kg	Chromium steel 18/8, at plant	
Copper	70	kg	Copper, at regional storage	
Steel	260	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	

4. Sludge treatment line

4.1. Hypothesis

Life time of sludge treatment processes is assumed to be 30 years.

4.2. Sludge treatment infrastructure resources

Process used for sludge treatment modelling	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Flotation thickener				(Pradel, 2016)
Concrete	91	m3	Concrete, normal, at plant	
Steel	3 800	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	
Cast iron	2 600	kg	Cast iron, at plant	
Press filter				
Cast iron	1 034	kg	Cast iron, at plant	
Inox steel	104 096	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Polypropylene	13 050	kg	polypropylene, granulate, at plant	

Infrastructure resource modelling for WWTP2 (S2 option A and B)

1. Sewer network (option A and B)

1.1. Hypothesis

Sewer network for WWTP2 take into account the whole area of the rain and waste water collection in a 6 201 ha catchment area around the WWTP. Data come from WWTP2 technical documentation. Life time of sewer network is assumed to be 50 years.

1.2. Sewer network infrastructure resources

Process used for sewer network modelling (for 1 piece (p) of sewer network)	Value	Unit	Reference used (Risch et al., 2015)
Wastewater network length	91,8	km	CP693
Mixed sewer network length (rainwater combined with wastewater)	160,3	km	CP002
Pumping station	6	unit	CP971

2. Pretreatment (S2 option A and B)

2.1. Hypothesis

Pretreatment is modelled as a single unit (1 piece) using the following processes. Data come from WWTP2 technical documentation and from WWTP monitoring conducted by Irstea in 2016. Life time of pretreatment is assumed to be 1 year.

2.2. Pretreatment modelling

Process used for pretreatment modelling (for 1 piece (p) of pretreatment)	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Pretreatment				Internal data Irstea, 2016
Electricity	573 206	kWh	FR: electricity, high voltage, production FR, at grid	
Odor treatment				
Electricity	1 241 947	kWh	FR: electricity, high voltage, production FR, at grid	
Tap water	1 307 478.94	kg	RER: tap water, at user	
Soda	22.41	kg	RER: sodium hydroxide, 50% in H2O, production mix, at plant	
Bleach	30.89	kg	RER: sodium hypochlorite, 15% in H2O, at plant	
Softened salt	1 725	kg	RER: sodium chloride, powder, at plant	
Sulfuric acid	55.2	kg	RER: sulphuric acid, liquid, at plant	

3. Water treatment line (S2 option A and B)

3.1. Hypothesis

Life time of aeration basin and primary and biological settle tank is assumed to be 30 years.

3.2. Water treatment infrastructure resources

Process used for primary treatment modelling (for 1 piece (p) of primary treatment infrastructure)	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Primary settle tank				(Boutin et al., 2011)
Poor concrete	933	m3	Poor concrete, at plant	
Reinforced concrete	1 562	m3	Concrete, sole and foundation, at plant	
Aluminum	700	kg	Aluminum, production mix, at plant	
Cast iron	220	kg	cast iron, at plant	
Chromium steel	500	kg	Chromium steel 18/8, at plant	
Copper	70	kg	Copper, at regional storage	
Steel	260	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	

Process used for biological treatment modelling (for 1 piece (p) of biological treatment infrastructure)	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Aeration basin				(Boutin et al., 2011)
Poor concrete	11 000	m3	Poor concrete, at plant	
Reinforced concrete	1 466	m3	Concrete, sole and foundation, at plant	
Aluminum	820	kg	Aluminum, production mix, at plant	
Cast iron	980	kg	cast iron, at plant	
Steel	815	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	
Copper	135	kg	Copper, at regional storage	
Polyethylene	200	kg	Polyethylene, HDPE, granulate, at plant	
Polyurethane	500	kg	Polyurethane, rigid foam, at plant	
Rubber	50	kg	Synthetic rubber, at plant	
Chromium steel	550	kg	Chromium steel 18/8, at plant	
Clarifier				
Poor concrete	933	m3	Poor concrete, at plant	
Reinforced concrete	1 562	m3	Concrete, sole and foundation, at plant	
Aluminum	700	kg	Aluminum, production mix, at plant	
Cast iron	220	kg	cast iron, at plant	
Chromium steel	500	kg	Chromium steel 18/8, at plant	
Copper	70	kg	Copper, at regional storage	
Steel	260	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	

4. Sludge treatment line

4.1. Hypothesis

Life time of sludge treatment processes is assumed to be 30 years. Incineration module is set for 1 year.

4.2. Sludge treatment infrastructure resources

Process used for sludge treatment modelling	Value	Unit	Reference used (Ecoinvent database)	Source
Gravitational thickener (S2 option A and B)				(Pradel, 2016)
Concrete	146.1	m3	Concrete, normal, at plant	
Steel	2 512	kg	Steel, converter, unalloyed, at plant	
Inox steel	5 652	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Cast iron	140	kg	Cast iron, at plant	
Centrifugal thickener (S2 option A and B)				
Inox steel	29 864	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Cast iron	2 536	kg	Cast iron, at plant	
Anaerobic digestion (S2 option A and B)				
Anaerobic digestion plant	1	p	anaerobic digestion plant, sewage sludge	
Cogeneration unit	1	p	oil boiler 100kW	
Press filter (S2 option A)				
Cast iron	1 034	kg	Cast iron, at plant	
Inox steel	104 096	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Polypropylene	13 050	kg	polypropylene, granulate, at plant	
Centrifugal thickener for dewatering (S2 option B)				
Inox steel	29 864	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Cast iron	2 536	kg	Cast iron, at plant	
Struvite precipitation process (Grifhorn®) (S2 option B)				(Jossa and Remy, 2015)
First reactor (P dissolution)				
Concrete	25	m3	Concrete, normal, at plant	
Reinforces steel	1 100	kg	reinforcing steel, at plant	
Inox steel	18 700	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Second reactor (P precipitation)				
Concrete	25	m3	Concrete, normal, at plant	
Reinforces steel	1 100	kg	reinforcing steel, at plant	
Inox steel	18 700	kg	Stainless Steel Hot Rolled Coil	
Incineration (S2 option B)				(Déchaux et al., 2017)
Incineration			Incineration model for GaBi	

5. References used

Boutin, C., Gillot, S., Heduit, A., Mur, I., Risch, E., Roux, P., 2011. Modèle ACV – Filière de traitement des eaux usées par Boues Activées (BA) - Rapports d'ACV et données d'inventaire, Rapport Cemagre-Onema. p. 77.

Déchaux, C., Nitschelm, L., Giard, L., Bioteau, T., Sessieq, P., Aissani, L., 2017. Development of the regionalised municipal solid waste incineration (RMWI) model and its application to France. The International Journal of Life Cycle Assessment, 1-29.

Jossa, P., Remy, C., 2015. Life Cycle Assessment of selected processes for P recovery from sewage sludge, sludge liquor or ash, P-Rex project. p. 86.

- Pradel, M., 2016. Guide pour la réalisation d'Analyses du Cycle de Vie pour les filières de traitement et de valorisation des boues d'épuration urbaine, rapport IRSTEA-Onema. p. 102.
- Renou, S., 2006. Analyse de cycle de vie appliquée aux systèmes de traitement des eaux usées, Institut National Polytechnique de Lorraine. p. 258.
- Risch, E., Gutierrez, O., Roux, P., Boutin, C., Corominas, L., 2015. Life cycle assessment of urban wastewater systems: Quantifying the relative contribution of sewer system

Annexe 4. Excel Supplementary information for “Assessing environmental impacts of phosphate fertilizer production from wastewater sludge and phosphate ore – A life cycle assessment perspective”

Hormis les onglets “Mass flow WWTP1”, “Mass flow WWTP 2-A”et “mass flow WWTP2-B”, difficiles à retranscrire au format Word, l’ensemble des onglets du fichier Excel sont présentés ci-après.

Onglet “Allocation factor for S1”

Process-related parameters β			Process		Product-related parameters α			
β _{bio}	Alternation of the aerobic and anoxic period		Carbon removal					
	Aerobic period	16						
	Anoxic period	8						
	Total	24						
	part of aerobic period within a complete cycle	0.667						
β _{o2}	part of anoxic period within a complete cycle	0.333						
	number of sub-processes working under aerobic conditions	3						
	number of sub-processes working under anoxic conditions	1						
β _{o2}	Oxygen demand							
	qty_O2_direct and indirect oxidation	1.4						
	qty_O2_nitrification	0.85						
	qty_O2_phosphorus removal	0						
	qty_O2_Totale	2.25						
Nb β		2						

β _{bio}		Carbon removal		α _C		Product-related parameters α	
β _{AAP,C}	0.22	α _{C,sludge}	0.451	β _{bio,decay}	Moles of O ₂ for decay	α _{C,sludge}	0.451
β _{O2,C}	0.62	α _{C,water}	0.549	β _{bio,synthesis}	Moles of O ₂ for biomass synthesis	α _{C,water}	0.549
β ^{°C}	0.42			β _{bio,water}	Biomass molar mass		
				β _{C,water,water}	Proportion of C into wastewater		
				β _{C,sludge}	Amount of biomass for each gram of eliminated COD		
				β _{C,water}	Proportion of C into the biomass		
				β _{C,water,water}	quantity of COD eliminated [g]		

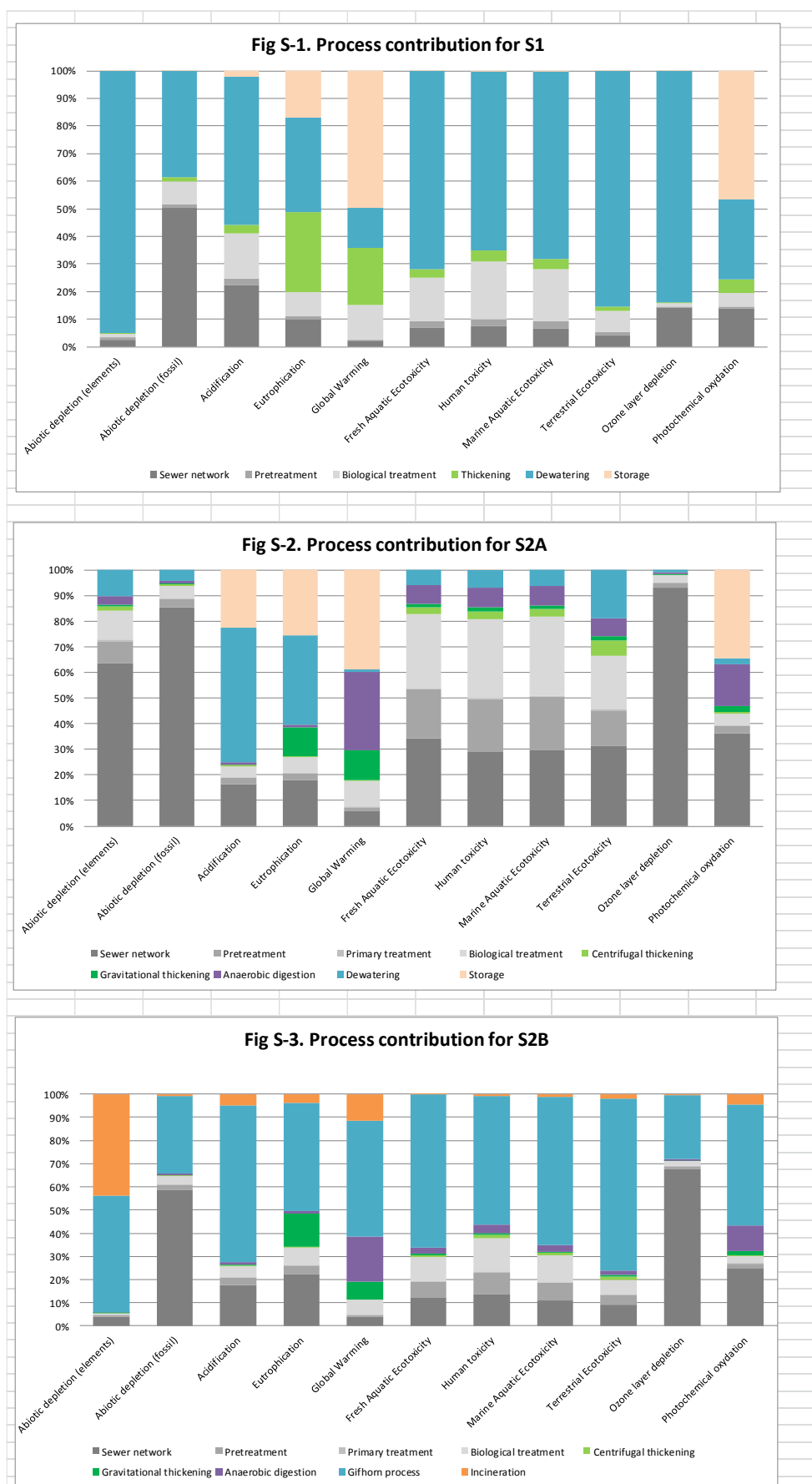
Onglet “Allocation factor for S2”

Process-related parameters β										Process-related parameters α									
Processes										Product-related parameters α									
Primary process										Process-related parameter α									
Traitements primaires										Total suspended solid capture rate									
βTI										0.575									
1.000										0.425									
αTI, sludge										0.575									
αTI, water										0.425									

Onglet “Contribution Analysis”

Process contribution analysis for each scenario												
S1	Sludge production				Sludge treatment			Avoided impacts				
	Sewer network	Pretreatment	Biological treatment	Thickening	Dewatering	Storage	Mineral fertilizer	Peat	Avoided impacts			
Abiotic depletion (elements) Abiotic depletion (fossil) Acidification Eutrophication Global Warming Fresh Aquatic Ecotoxicity Human toxicity Marine Aquatic Ecotoxicity Terrestrial Ecotoxicity Ozone layer depletion Photochemical oxidation	1.09E-05	2.61E-06	5.41E-06	9.48E-07	3.88E-04	3.58E-08	2.01E-05	5.69E-08				
	3.98E+02	9.41E+00	6.48E+01	1.26E+01	3.04E+02	4.75E-01	4.51E+01	4.78E+01				
	4.79E-02	5.31E-03	3.48E-02	6.80E-03	1.15E-01	3.48E-03	2.14E-02	3.45E-04				
	1.81E-02	1.99E-03	1.57E-02	5.27E-02	6.24E-02	3.10E-02	1.10E-02	2.18E-04				
	6.89E+00	8.28E-01	3.66E+01	6.07E+01	4.20E+01	1.45E+02	7.04E+00	1.01E-01				
	1.10E+00	3.91E-01	2.50E+00	5.07E-01	1.15E+01	1.92E-02	6.25E-01	3.38E-02				
	2.79E+00	1.02E+00	7.96E+00	1.59E+00	2.48E+01	6.12E-02	2.51E+00	4.31E-02				
	3.17E+03	1.29E+03	8.91E+03	1.81E+03	3.23E+04	6.92E+01	1.91E+03	1.02E+02				
	3.25E-02	1.01E-02	5.98E-02	1.16E-02	6.77E-01	4.35E-04	4.99E-02	2.91E-04				
	3.61E-06	5.20E-08	3.25E-07	5.88E-08	2.12E-05	2.22E-09	3.99E-07	3.92E-09				
	6.77E-03	3.36E-04	2.36E-03	2.38E-03	1.42E-02	2.26E-02	1.15E-03	3.45E-05				
S2A	Sludge production				Sludge treatment			Avoided impacts				
Sewer network	Pretreatment	Primary treatment	Biological treatment	Centrifugal thickening	Gravitational thickening	Anaerobic digestion	Dewatering	Storage	Avoided impacts			
									Mineral fertilizer	Peat		
Abiotic depletion (elements) Abiotic depletion (fossil) Acidification Eutrophication Global Warming Fresh Aquatic Ecotoxicity Human toxicity Marine Aquatic Ecotoxicity Terrestrial Ecotoxicity Ozone layer depletion Photochemical oxidation	2.64E-05	3.51E-06	2.82E-07	4.68E-06	2.66E-07	1.37E-06	4.23E-06	0.00E+00	4.60E-05	2.39E-08		
	9.50E+02	3.67E+01	1.25E+00	5.69E+01	2.71E+00	1.38E+01	4.65E+01	0.00E+00	1.03E+02	2.01E+01		
	1.14E-01	2.00E-02	5.55E-04	3.07E-02	3.31E-03	7.30E-03	3.71E-01	1.59E-01	4.89E-02	1.45E-04		
	4.33E-02	6.59E-03	1.68E-04	1.48E-02	9.45E-04	2.71E-02	8.35E-02	6.13E-02	2.51E-02	9.15E-05		
	1.64E+01	3.45E+00	2.62E-01	2.72E+01	5.77E-01	8.20E+01	2.53E+00	1.05E+02	1.61E+01	4.25E-02		
	2.63E+00	1.49E+00	2.69E-02	2.22E+00	2.11E-01	5.65E-01	4.62E-01	0.00E+00	1.43E+00	1.42E-02		
	6.66E+00	4.71E+00	1.04E-01	7.07E+00	6.96E-01	1.81E+00	1.56E+00	9.92E-03	5.74E+00	1.81E-02		
	7.57E+03	5.35E+03	6.93E+01	7.94E+03	7.53E-02	1.92E+03	1.60E+03	0.00E+00	4.36E+03	4.29E+01		
	7.76E-02	3.37E-02	1.81E-03	5.24E-02	1.44E-02	4.11E-03	4.71E-02	0.00E+00	1.14E-01	1.22E-04		
	8.62E-06	1.71E-07	1.11E-08	2.80E-07	2.40E-08	6.73E-08	8.85E-08	0.00E+00	9.12E-07	1.65E-09		
	1.62E-02	1.29E-03	6.53E-05	2.06E-03	2.11E-04	1.10E-03	7.24E-03	1.06E-03	2.62E-03	1.45E-05		
S2B	Sludge production				Sludge treatment			Avoided impacts				
Sewer network	Pretreatment	Primary treatment	Biological treatment	Centrifugal thickening	Gravitational thickening	Anaerobic digestion	Gifthom process	Incineration	Avoided impacts			
									Mineral fertilizer			
Abiotic depletion (elements) Abiotic depletion (fossil) Acidification Eutrophication Global Warming Fresh Aquatic Ecotoxicity Human toxicity Marine Aquatic Ecotoxicity Terrestrial Ecotoxicity Ozone layer depletion Photochemical oxidation	5.31E-05	7.07E-06	5.67E-07	9.43E-06	1.52E-06	5.36E-07	2.76E-06	6.43E-04	5.58E-04	7.15E-06		
	1.91E+03	7.38E+01	2.52E+00	1.15E+02	1.18E+01	5.46E+00	2.78E+01	1.08E+03	3.14E+01	1.60E+01		
	2.30E-01	4.02E-02	1.12E-03	6.17E-02	6.65E-03	2.96E-03	1.47E-02	8.74E-01	6.32E-02	7.60E-03		
	8.71E-02	1.32E-02	3.38E-04	2.98E-02	1.90E-03	4.86E-02	1.81E-01	1.44E-02	3.90E-03	3.90E-03		
	3.31E+01	6.95E+00	5.28E-01	5.48E+01	1.16E+00	6.35E+01	1.65E+02	4.20E+02	9.56E+01	2.50E+00		
	5.29E+00	3.00E+00	5.41E-02	4.48E+00	4.24E-01	2.01E-01	1.14E+00	2.86E+01	2.22E-01	3.87E-02		
	1.34E+01	9.47E+00	2.10E-01	1.42E+01	1.40E+00	6.44E-01	3.64E+00	5.45E+01	7.93E-01	8.92E-01		
	1.52E+04	1.08E+04	1.39E+02	1.60E+04	1.52E+03	7.18E+02	3.87E+03	8.92E+04	1.53E+03	6.78E+02		
	1.56E-01	6.79E-02	3.65E-03	1.06E-01	2.90E-02	8.26E-03	1.26E+00	3.53E-02	1.77E-02	3.39E-02		
	1.73E-05	3.45E-07	2.24E-08	5.65E-07	4.82E-08	2.50E-08	1.35E-07	7.10E-06	1.10E-07	1.42E-07		
	3.25E-02	2.59E-03	1.32E-04	4.14E-03	4.24E-04	2.21E-03	1.46E-02	6.81E-02	5.95E-03	4.08E-04		

Onglet “Graph contribution”



Onglet “Contribution Origin”

Analyse contribution des scenarios														
S1	Sewer network	Sludge production			Sludge treatment			Sludge treatment			Avoided impacts			
		Pretreatment	Biological treatment	Thickening	Infrastructure - dewatering	Electricity - dewatering	Emissions - dewatering	Reactants - dewatering	Electricity - storage	Emissions - storage	Mineral fertilizer	Peat		
		1.09E-05	5.41E-06	9.48E-07	1.81E-06	3.19E-07	0.00E+00	3.88E-04	3.58E-08	0.00E+00	2.01E-05	5.69E-08		
		3.98E+02	9.41E+00	4.80E+01	4.80E+01	4.22E+00	0.00E+00	2.95E+02	4.75E-01	0.00E+00	4.51E+01	4.78E+01		
		4.79E-02	3.48E-02	6.80E-03	2.64E-03	2.30E-03	7.94E-03	1.02E-01	2.59E-04	4.14E-03	2.14E-02	3.45E-04		
		1.81E-02	1.99E-03	5.27E-02	1.62E-04	7.52E-04	1.74E-03	5.97E-02	8.45E-05	3.91E-02	1.10E-02	2.18E-04		
		6.88E+00	8.28E-01	6.07E+01	4.95E-01	3.98E-01	0.00E+00	4.11E+01	4.47E-02	1.45E+02	7.04E+00	1.01E-01		
		1.10E+00	3.91E-01	5.07E+01	6.52E-03	1.71E-01	0.00E+00	1.13E+01	1.92E-01	0.00E+00	6.25E-01	3.38E-02		
		2.79E+00	1.02E+00	7.96E+00	1.59E+01	5.42E-01	4.96E-04	2.41E+01	2.59E-04	2.59E-04	2.51E+00	4.31E-02		
		3.17E+03	1.29E+03	8.91E+03	1.81E+03	2.30E+01	6.16E-02	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	1.91E+03	1.02E+02		
		3.25E-02	1.01E-02	1.16E-02	4.74E-02	3.87E-03	0.00E+00	6.26E-01	4.35E-04	0.00E+00	4.95E-02	2.91E-04		
		3.61E-06	5.20E-08	5.88E-08	8.07E-11	1.97E-08	0.00E+00	2.12E-05	2.22E-09	0.00E+00	3.99E-07	3.92E-09		
		6.77E-03	3.36E-04	2.38E-03	1.78E-04	1.48E-04	0.00E+00	1.39E-02	1.66E-05	2.26E-02	1.13E-03	3.45E-05		
S2A	Sewer network	Sludge production			Sludge treatment			Sludge treatment			Avoided impacts			
		Pretreatment	Primary treatment	Biological treatment	Thickening	Infrastructure - AD	Electricity - AD	Reactants - AD	Biogas valorisation - AD	Biogas leakage - AD	Infrastructure - dewatering	Electricity - dewatering	Reactants - dewatering	Emissions - storage
		2.64E-05	3.51E-06	2.82E-07	4.68E-06	1.02E-06	3.96E-07	9.50E-07	2.42E-08	0.00E+00	1.28E-06	6.22E-07	2.33E-06	0.00E+00
		9.50E+02	3.67E+01	1.25E+00	5.69E+01	8.60E+00	1.28E+01	2.38E-03	1.07E-06	0.00E+00	3.39E+00	8.24E+03	3.49E+01	0.00E+00
		1.14E-01	2.00E-02	5.55E-04	3.07E-02	4.79E-03	4.40E-04	6.86E-03	1.77E-08	0.00E+00	1.87E-03	4.49E-03	4.95E-01	1.59E-01
		4.33E-02	6.55E-03	1.68E-04	1.48E-02	2.81E-02	1.74E-04	2.24E-03	8.33E-07	0.00E+00	1.15E-04	1.47E-03	3.17E-03	6.13E-02
		1.64E+01	3.45E+00	2.62E-01	2.77E+01	3.21E+01	1.59E-01	1.19E+00	1.60E-04	3.31E+01	3.50E-01	7.76E-01	1.23E+01	1.05E-02
		2.63E+00	1.49E+00	2.69E-02	2.22E+00	3.11E-01	5.55E-02	5.10E-01	1.60E-10	0.00E+00	4.61E-01	3.34E-01	0.00E+00	0.00E+00
		6.66E+00	4.71E+00	1.04E-01	7.07E+00	1.02E+00	1.92E-01	1.62E+00	3.99E-04	0.00E+00	1.34E-01	1.06E+00	2.25E-02	0.00E+00
		7.57E+03	5.35E+03	6.93E+01	7.94E+03	1.11E+03	8.80E+01	1.84E+03	4.34E-01	0.00E+00	1.63E+01	1.20E+03	3.47E-01	9.92E-03
		7.76E-02	3.37E-02	1.81E-03	5.24E-02	1.85E-02	6.03E-01	1.15E-02	6.36E-06	0.00E+00	3.35E-02	7.55E-03	6.10E-03	0.00E+00
		8.62E-06	1.71E-07	1.11E-08	2.80E-07	8.48E-09	5.88E-08	1.37E-11	0.00E+00	0.00E+00	5.71E-11	3.85E-08	4.99E-08	0.00E+00
		1.62E-02	1.29E-03	6.53E-05	2.06E-03	1.31E-03	6.93E-05	4.41E-04	8.23E-08	6.73E-03	1.28E-04	2.89E-04	6.50E-04	1.53E-02
S2B	Sewer network	Sludge production			Sludge treatment			Sludge treatment			Avoided impacts			
		Pretreatment	Primary treatment	Biological treatment	Thickening	Infrastructure - AD	Electricity - AD	Reactants - AD	Biogas valorisation - AD	Biogas leakage - AD	Infrastructure - effluents	Electricity - effluents	Reactants - effluents	Mineral fertilisers
		5.31E-05	7.07E-06	5.67E-07	3.05E-06	7.97E-07	1.91E-06	4.87E-08	0.00E+00	0.00E+00	1.68E-06	8.44E-07	5.58E-04	2.71E-06
		2.33E+01	7.19E+01	1.43E+06	1.72E+01	2.95E+00	1.38E+01	4.11E-06	2.03E+00	0.00E+00	3.83E+00	1.97E+03	3.43E+01	1.60E+01
		2.33E-01	4.03E-01	6.17E-02	1.61E-01	3.86E-04	4.15E-03	1.68E-06	2.13E-08	0.00E+00	1.74E-03	8.64E-01	6.35E-03	7.60E-03
		8.71E-02	1.32E-02	3.38E-04	6.47E-01	3.92E-04	4.15E-03	2.92E-04	1.68E-06	0.00E+00	4.59E-04	1.98E-03	1.79E-02	3.00E-03
		3.31E+01	5.28E-01	5.48E+01	6.47E-01	1.12E+01	1.03E+00	3.72E-04	9.18E+00	6.66E+01	4.19E-02	1.95E+01	9.54E-01	2.60E-03
		5.29E+00	3.00E+00	4.48E+01	6.24E-01	1.13E+01	1.03E+00	3.72E-04	2.58E-01	6.66E+01	1.53E-02	2.83E+01	3.87E-02	2.21E-01
		1.34E+00	9.07E-01	1.40E+00	2.04E+00	3.86E+01	3.25E+00	8.03E-04	3.20E-06	0.00E+00	1.85E-01	5.29E+01	7.93E-01	8.93E-01
		1.53E+04	1.08E+04	1.60E+04	2.22E+03	1.77E+03	3.69E+01	8.77E-04	0.00E+00	0.00E+00	3.85E+01	8.75E+04	1.53E+03	6.79E+01
		1.54E-01	6.79E-02	3.65E-03	1.05E-01	1.21E-02	2.31E-02	2.18E-05	2.94E-11	0.00E+00	4.44E-02	1.02E+03	1.70E+00	1.77E-02
		1.73E-05	3.45E-07	2.24E-08	7.73E-08	1.71E-08	1.16E-07	2.76E-11	0.00E+00	0.00E+00	1.31E-09	5.20E-08	1.10E-07	1.41E-07
		3.25E-02	2.59E-03	1.32E-04	2.63E-03	1.40E-04	8.87E-04	1.66E-07	3.74E-09	1.35E-02	1.48E-04	3.90E-04	6.76E-02	4.08E-04

Onglet “Graphs Origin”



Annexe 5. Analyse de sensibilité des impacts environnementaux de chaque scénario évalué au regard des paramètres procédés et produits utilisés pour le calcul du facteur d'allocation proposé à l'aide de la méthode Monte Carlo

Données de paramétrage utilisées pour l'analyse de sensibilité

Le détail du calcul des plages de variation pour chaque paramètre procédé et produit se trouve en Annexe 1. Les paramètres, leur description et la plage de variation des valeurs sont récapitulées dans le Tableau 19 pour les paramètres procédés et le Tableau 20 pour les paramètres produits.

Tableau 19. Synthèse des paramètres procédés utilisés pour réaliser l'analyse de sensibilité Monte Carlo

Paramètre	Description	Code paramètre GaBi	Valeur actuelle	Valeur min	Valeur max
Qté O ₂ consommée Traitement Carbone	Quantité d'oxygène consommée pour traiter 1 kg DBO ₅ lors du traitement du carbone (kg)	C_qté_O2_conso	1.4	1.049	1.562
Qté O ₂ consommée Traitement Azote	Quantité d'oxygène consommée pour traiter l'équivalent d'1 kg DBO ₅ lors du traitement de l'azote (kg)	N_qté_O2_conso	0.85	0.638	0.85
Durée présence O ₂	Durée totale de présence d'O ₂ dans le bassin d'aération par cycle de 24 h (h)	Durée_présence_O2	16	15	18

Tableau 20. Synthèse des paramètres produits utilisés pour réaliser l'analyse de sensibilité Monte Carlo

Paramètre	Description	Code paramètre GaBi	Valeur actuelle	Valeur min	Valeur max
Taux de capture des MES sans floculation	Taux de capture des MES lors du traitement primaire sans présence de flocculants (-)	Tx_capt_SF_MES	0.575	0.5	0.65
Nb de moles d'O ₂ stœchiométrique lors de la respiration endogène	Nb de mole d'O ₂ utilisée dans l'équation stœchiométrique de la respiration endogène des bactéries lors du traitement du carbone	C_nbmol_O2_resp	4.35	4.015	6.55
Nb de moles de NO ₃ produites lors de la nitrification	Nb de mole de NO ₃ obtenue dans l'équation stœchiométrique de la nitrification lors du traitement de l'azote	N_nbmol_NO3	0.98	0.294	0.98
Nb de mole de boue émise lors de la nitrification	Nb de mole de boue obtenue dans l'équation stœchiométrique de la nitrification lors du traitement de l'azote	N_nbmol_boue	0.021	0.0063	0.021
Nb de mole de boue émise lors de la dénitrification	Nb de mole de boue obtenue dans l'équation stœchiométrique de la dénitrification lors du traitement de l'azote	DN_nbmol_boue	0.222	0.1887	0.222
Nb de mole de N ₂ émis lors de la dénitrification	Nb de mole de N ₂ obtenue dans l'équation stœchiométrique de la dénitrification lors du traitement de l'azote	DN_nbmol_N2	0.5	0.425	0.5
Nb de mole de CO ₂ émis	Nb de mole de CO ₂ obtenue dans l'équation stœchiométrique de la dénitrification lors du traitement de l'azote	DN_nbmol_CO2	1.33	1.1305	1.33
% de rendement d'assimilation bactérienne	% de rendement d'assimilation bactérienne prenant en compte l'assimilation bactérienne et la déphosphatation biologique accrue	P_rdt_ass_bact	S1 : 0.3 S2-3: 0.527	S1 : 0.2 S2-3: 0.50	S1 : 0.4 S2-3: 0.7
Ratio molaire Fe/P	Ratio molaire Fe/P conditionnant le calcul du rendement physico-chimique	P_rat_mol_FePv	1.8	1.5	2

Réalisation de l'analyse de sensibilité à l'aide du logiciel GaBi 6 ®

L'analyse de sensibilité avec la méthode Monte Carlo a été réalisé à l'aide du logiciel ACV GaBi 6® suivant une loi uniforme, les valeurs des paramètres pouvant en effet se positionner de manière uniforme entre les bornes minimales et maximales des valeurs des paramètres.

Le Tableau 21 et le Tableau 22 récapitulent respectivement les plages de variation utilisées et les % de variation entre chaque borne par rapport à la valeur initiale du paramètre pour le scénario S1 et les scénarios S2A et S2B.

Tableau 21. Données utilisées pour réaliser l'analyse de sensibilité avec Monte Carlo pour le scénario S1

Nom paramètre	Valeur utilisée	Plage à faire varier		%SD à saisir dans GaBi	
		Min	Max	% borne min	% borne max
C_qté_O2_conso	1.4	1.049	1.562	-25.07%	11.57%
N_qté_O2_conso	0.85	0.638	0.85	-24.94%	0.00%
Durée_présence_O2	16	15	18	-6.25%	12.50%
C_nbmol_O2_resp	4.35	4.015	6.55	-7.70%	50.57%
N_nbmol_NO3	0.98	0.294	0.98	-70.00%	0.00%
N_nbmol_boue	0.021	0.0063	0.021	-70.00%	0.00%
DN_nbmol_boue	0.222	0.1887	0.222	-15.00%	0.00%
DN_nbmol_N2	0.5	0.425	0.5	-15.00%	0.00%
DN_nbmol_CO2	1.33	1.1305	1.33	-15.00%	0.00%
P_rdt_ass_bact	0.3	0.2	0.4	-33.33%	33.33%
P_rat_mol_FePv	1.8	1.5	2	-16.67%	11.11%

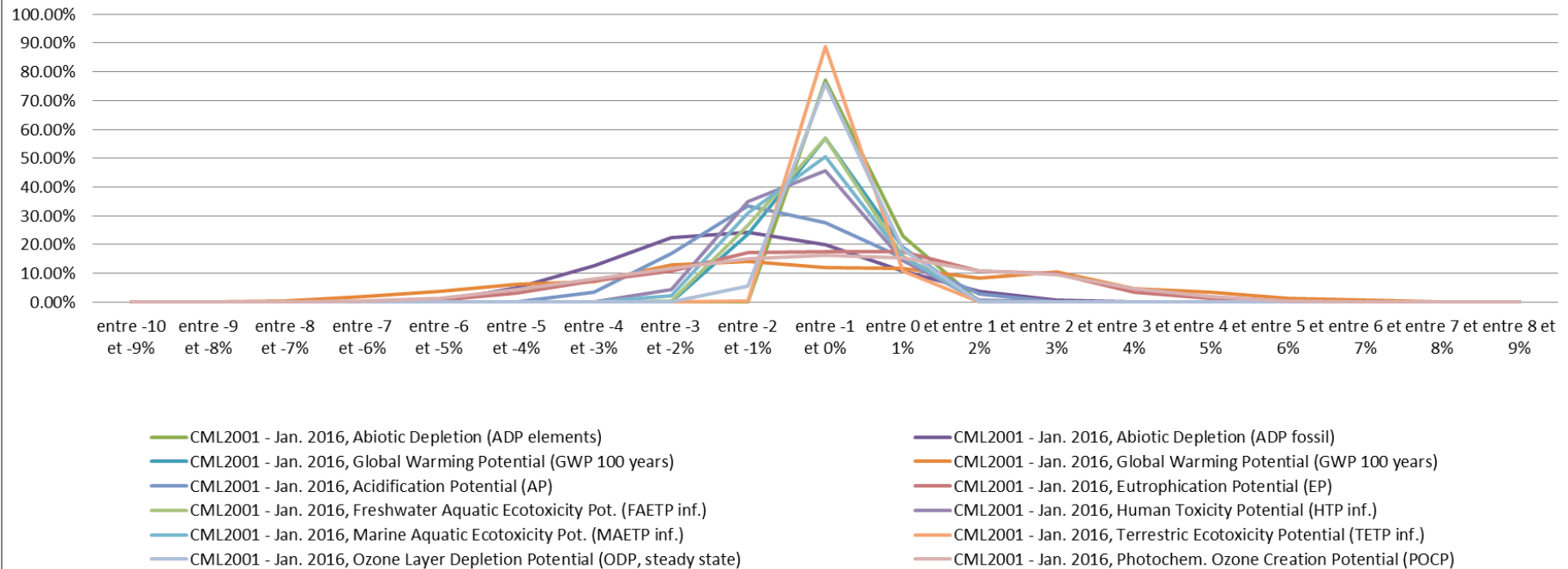
Tableau 22. Données utilisées pour réaliser l'analyse de sensibilité avec Monte Carlo pour les scénarios S2A et S2B

Nom paramètre	Valeur utilisée	Plage à faire varier		%SD à saisir dans GaBi	
		Min	Max	% borne min	% borne max
C_qté_O2_conso	1.4	1.049	1.562	-25.07%	11.57%
N_qté_O2_conso	0.85	0.638	0.85	-24.94%	0.00%
Durée_présence_O2	16	15	18	-6.25%	12.50%
Tx_capt_SF_MES	0.575	0.5	0.65	-13.04%	13.04%
C_nbmol_O2_resp	4.35	4.015	6.55	-7.70%	50.57%
N_nbmol_NO3	0.98	0.294	0.98	-70.00%	0.00%
N_nbmol_boue	0.021	0.0063	0.021	-70.00%	0.00%
DN_nbmol_boue	0.222	0.1887	0.222	-15.00%	0.00%
DN_nbmol_N2	0.5	0.425	0.5	-15.00%	0.00%
DN_nbmol_CO2	1.33	1.1305	1.33	-15.00%	0.00%
P_rdt_ass_bact	0.527	0.5	0.7	-5.12%	32.83%

Résultats de l'analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S1

<u>Résultats pour 1 000 runs</u>		basic scenario	mean value	SD	10% percentile	25% percentile	mediane	75% percentile	90% percentile
Abiotic Depletion (ADP elements)	kg Sb-Equiv.	3.88E-04	3.88E-04	1.44E-03	3.87E-04	3.87E-04	3.88E-04	3.88E-04	3.88E-04
Abiotic Depletion (ADP fossil)	MJ	6.96E+02	6.85E+02	1.52E-02	6.72E+02	6.78E+02	6.85E+02	6.93E+02	6.99E+02
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Resources	kg CO2-Equiv.	1.94E+00	1.93E+00	5.90E-03	1.91E+00	1.92E+00	1.93E+00	1.93E+00	1.94E+00
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Emissions	kg CO2-Equiv.	2.87E+02	2.85E+02	2.90E-02	2.74E+02	2.80E+02	2.85E+02	2.91E+02	2.96E+02
Acidification Potential (AP)	kg SO2-Equiv.	1.92E-01	1.90E-01	1.11E-02	1.88E-01	1.89E-01	1.90E-01	1.92E-01	1.93E-01
Eutrophication Potential (EP)	kg Phosphate-Equiv.	1.71E-01	1.70E-01	2.09E-02	1.65E-01	1.68E-01	1.70E-01	1.73E-01	1.75E-01
Freshwater Aquatic Ecotoxicity Pot. (FAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	1.53E+01	1.52E+01	5.96E-03	1.51E+01	1.52E+01	1.52E+01	1.53E+01	1.53E+01
Human Toxicity Potential (HTP inf.)	kg DCB-Equiv.	3.57E+01	3.54E+01	7.21E-03	3.51E+01	3.52E+01	3.54E+01	3.56E+01	3.58E+01
Marine Aquatic Ecotoxicity Pot. (MAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	4.56E+04	4.53E+04	6.81E-03	4.49E+04	4.50E+04	4.52E+04	4.55E+04	4.57E+04
Terrestic Ecotoxicity Potential (TETP inf.)	kg DCB-Equiv.	7.41E-01	7.39E-01	2.64E-03	7.36E-01	7.37E-01	7.39E-01	7.40E-01	7.41E-01
Ozone Layer Depletion Potential (ODP, steady state)	kg R11-Equiv.	2.49E-05	2.48E-05	3.89E-03	2.47E-05	2.47E-05	2.48E-05	2.49E-05	2.49E-05
Photochem. Ozone Creation Potential (POCP)	kg Ethene-Equiv.	4.74E-02	4.72E-02	2.32E-02	4.58E-02	4.64E-02	4.72E-02	4.80E-02	4.87E-02

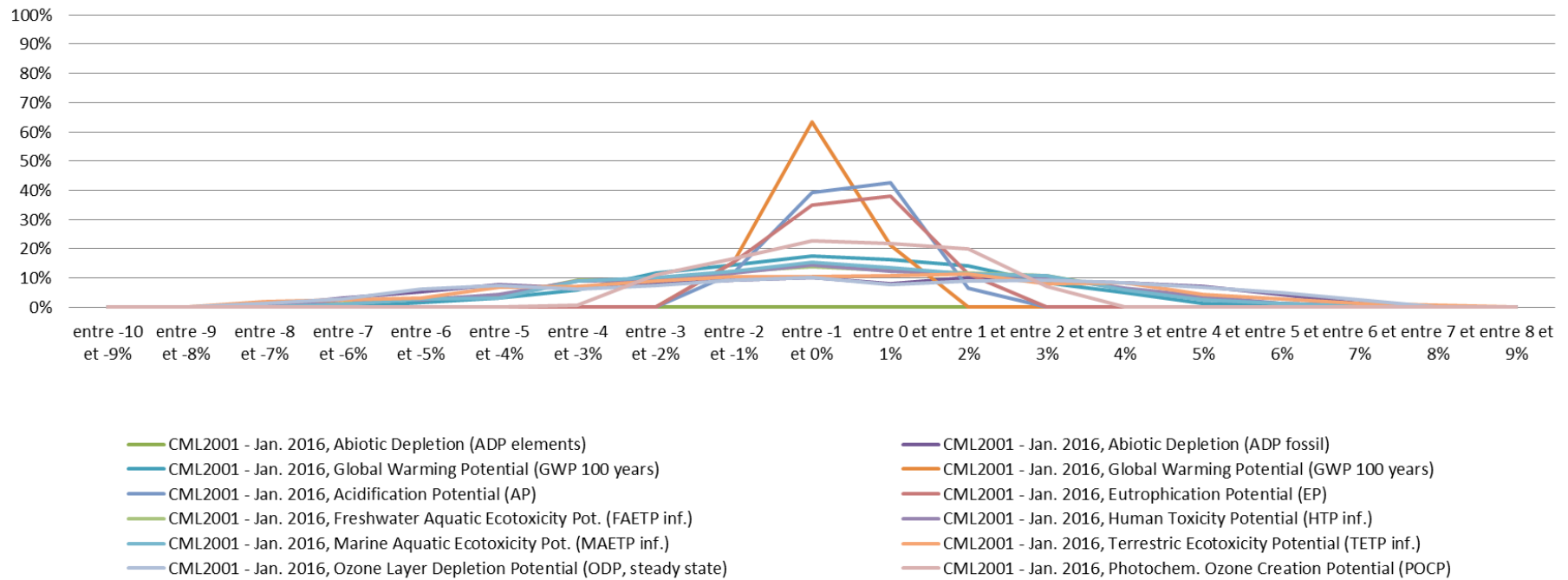
Scenario 1 - Résultats de simulation Monte Carlo



Résultats de l'analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S2A

<u>Résultats pour 1 000 runs</u>		basic scenario	mean value	SD	10% percentile	25% percentile	mediane	75% percentile	90% percentile
Abiotic Depletion (ADP elements)	kg Sb-Equiv.	-4.55E-06	-4.61E-06	-23%	-6.06E-06	-5.42E-06	-4.59E-06	-3.76E-06	-3.23E-06
Abiotic Depletion (ADP fossil)	MJ	991	989	3.39%	94200.00%	963	989	1.02E+03	1.03E+03
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Resources	kg CO2-Equiv.	0.776	0.774	2.19%	75.20%	0.762	0.773	0.786	0.795
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Emissions	kg CO2-Equiv.	253	252	0.52%	25100.00%	251	252	253	254
Acidification Potential (AP)	kg SO2-Equiv.	0.658	0.658	0.73%	65.10%	0.654	0.658	0.662	0.664
Eutrophication Potential (EP)	kg Phosphate-Equiv.	0.215	0.215	0.84%	21.20%	0.214	0.215	0.216	0.217
Freshwater Aquatic Ecotoxicity Pot. (FAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	6.26	6.25	2.67%	602.00%	6.13	6.25	6.37	6.46
Human Toxicity Potential (HTP inf.)	kg DCB-Equiv.	17.2	17.1	2.80%	1650.00%	16.8	17.1	17.5	17.7
Marine Aquatic Ecotoxicity Pot. (MAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	2.12E+04	2.11E+04	2.57%	2.04E+04	2.07E+04	2.11E+04	2.15E+04	2.18E+04
Terrestrial Ecotoxicity Potential (TETP inf.)	kg DCB-Equiv.	0.135	0.134	3.29%	12.90%	0.131	0.134	0.138	0.14
Ozone Layer Depletion Potential (ODP, steady state)	kg R11-Equiv.	8.36E-06	8.35E-06	3.56%	7.93E-06	8.12E-06	8.35E-06	8.60E-06	8.75E-06
Photochem. Ozone Creation Potential (POCP)	kg Ethene-Equiv.	4.19E-02	4.18E-02	1.44%	4.10E-02	4.14E-02	4.18E-02	4.23E-02	4.26E-02

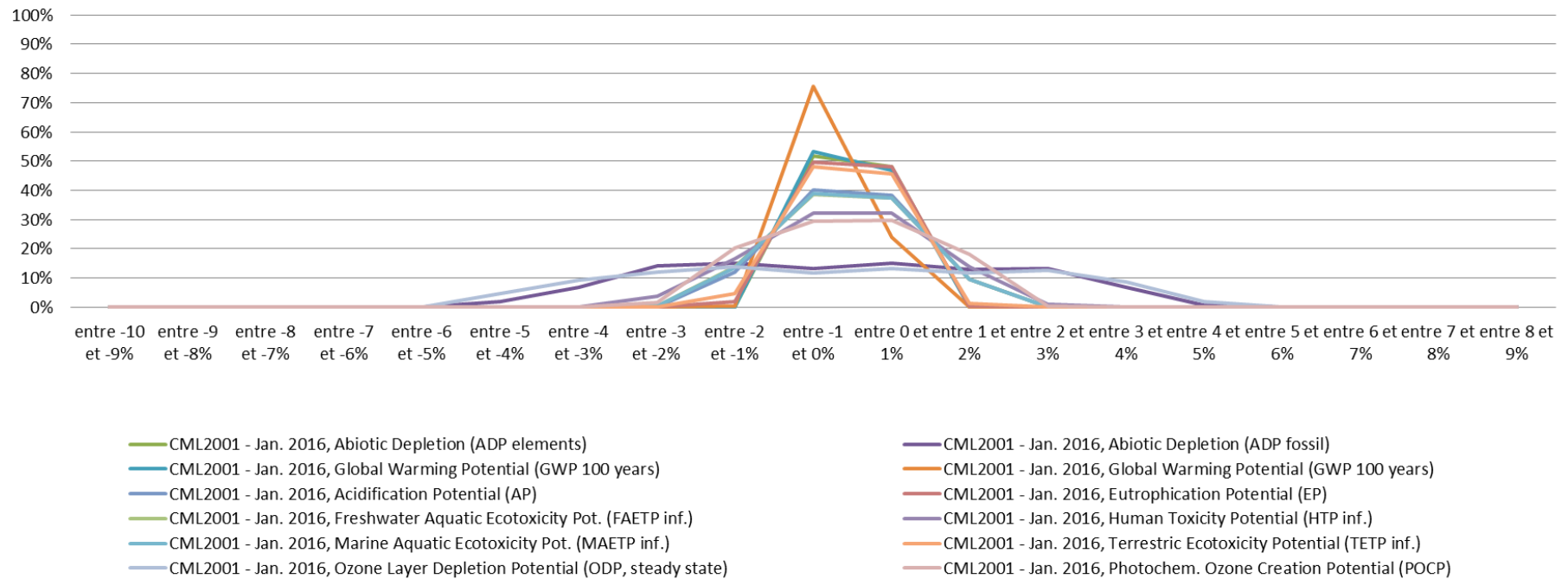
Scenario 2A - Résultats de simulation Monte Carlo



Résultats de l'analyse de sensibilité obtenus pour le Scenario S2B

<u>Résultats pour 1 000 runs</u>		basic scenario	mean value	SD	10% percentile	25% percentile	mediane	75% percentile	90% percentile
Abiotic Depletion (ADP elements)	kg Sb-Equiv.	0.00127	0.00127	0.17%	0.00127	0.00127	0.00127	0.00127	0.00127
Abiotic Depletion (ADP fossil)	MJ	3.24E+03	3.24E+03	2.12%	3.15E+03	3.18E+03	3.24E+03	3.30E+03	3.33E+03
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Resources	kg CO2-Equiv.	27.3	27.3	0.13%	27.3	27.3	27.3	27.4	27.4
Global Warming Potential (GWP 100 years) - Emissions	kg CO2-Equiv.	825	823	0.33%	819	821	823	825	826
Acidification Potential (AP)	kg SO2-Equiv.	1.29	1.29	0.77%	1.27	1.28	1.29	1.29	1.3
Eutrophication Potential (EP)	kg Phosphate-Equiv.	0.74	0.74	0.50%	0.735	0.737	0.74	0.743	0.745
Freshwater Aquatic Ecotoxicity Pot. (FAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	43	43	0.81%	42.5	42.7	43	43.3	43.5
Human Toxicity Potential (HTP inf.)	kg DCB-Equiv.	97.4	97.3	1.03%	95.9	96.6	97.3	98	98.6
Marine Aquatic Ecotoxicity Pot. (MAETP inf.)	kg DCB-Equiv.	1.38E+05	1.38E+05	0.82%	1.37E+05	1.37E+05	1.38E+05	1.39E+05	1.40E+05
Terrestrial Ecotoxicity Potential (TETP inf.)	kg DCB-Equiv.	1.68	1.68	0.55%	1.67	1.67	1.68	1.69	1.69
Ozone Layer Depletion Potential (ODP, steady state)	kg R11-Equiv.	2.56E-05	2.55E-05	2.38%	2.47E-05	2.50E-05	2.55E-05	2.60E-05	2.63E-05
Photochem. Ozone Creation Potential (POCP)	kg Ethene-Equiv.	0.12	0.12	1.03%	0.119	0.119	0.12	0.121	0.122

Scenario 2B - Résultats de simulation Monte Carlo



NNT : 2017LYSEM032

Marilys BRUSTEL-PRADEL

Definition of a parameter-dependent allocation methodology for Life Cycle Assessment of waste-based products – Application to sludge-based phosphate fertilizers

Specialty: Science and Environmental Engineering

Keywords: sewage sludge, Life Cycle Analysis, allocation, process-related parameter, product-related parameter

Human and industrial activities produce wastewater that inevitably generates sludge, a waste which is currently recycled on agricultural soils or for energy recovery. However, due to increasingly stringent European regulations, extensive research is currently undergone on sludge to develop processes that can convert it into products with high-added value. In this context, sludge could move from a fatal waste status to the status of an expected co-product of wastewater treatment. This paradigm shift has implications for the assessment of environmental impacts of "sludge-based" materials with Life Cycle Assessment. Indeed, sludge, like treated water, becomes an expected co-product from the wastewater treatment plant and the environmental burden of their production must be distributed among these co-products by means of an allocation factor.

This thesis aims at defining a mathematical construction of this allocation factor by combining process- and product-related parameters, integrating *de facto* the causal relationships between process operations and products generation and the technological reality of the process. The result is a matrix of which each element associates, for each inventory data, an allocation factor to each of the generated co-products. Applied to the production of sludge-based phosphate fertilizers, the LCA highlights the major contribution of the production stage compared to the stages of treatment and recovery of the sludge.

However, even if the recovery process makes it possible to preserve the phosphorus mineral resource, the balance remains unfavorable to the sludge-based products (limited yields of phosphorus recovery, low phosphorus content of the sludge, high need of energy and reagents).

Nevertheless, the method developed within this thesis to allocate an environmental load to each co-products of an indivisible production system paves the way for a more coherent environmental assessment of waste-based products. This methodology can also be used effectively in the environmental assessment of thermal, chemical or physical separation processes.

NNT : 2017LYSEM032

Marilys BRUSTEL-PRADEL

Proposition d'une méthode d'allocation paramètre-dépendant pour l'Analyse du Cycle de Vie des produits déchet-sourcés – Application aux fertilisants phosphatés boue-sourcés

Spécialité: Science et Génie de l'Environnement

Mots clefs : boue d'épuration urbaine, Analyse du Cycle de Vie, allocation, paramètres produits, paramètres procédés

Les activités humaines et industrielles produisent des eaux usées dont le traitement est générateur de déchets, les boues d'épuration urbaines. Initialement valorisées en agriculture ou incinérées, du fait de réglementations européennes de plus en plus contraignantes, les boues d'épuration font désormais l'objet de recherches visant à développer des procédés permettant de les transformer en produits à forte valeur ajoutée. Dans ce contexte, les boues pourraient donc passer d'un statut de déchet fatal au statut de coproduit attendu à l'issue de l'épuration des eaux. Ce changement de paradigme a des conséquences sur l'évaluation environnementale par Analyse du Cycle de Vie (ACV) des produits « boue-sourcés ». La boue, devient, au même titre que l'eau épurée, un coproduit attendu de la station de traitement des eaux et la charge environnementale liée à leur production doit pouvoir être répartie entre ces coproduits au moyen d'un facteur d'allocation.

Cette thèse propose une construction mathématique de ce facteur d'allocation en combinant des paramètres « procédés » et « produits », intégrant *de facto* les relations causales entre la conduite du procédé et l'obtention des produits et reflétant la réalité technologique du procédé. La résultante se présente sous la forme d'une matrice dont chaque élément associe, pour chaque donnée d'inventaire, un facteur d'allocation à chacun des coproduits générés. Appliquée à la production de fertilisants phosphatés boue-sourcés, l'ACV réalisée et utilisant les facteurs d'allocation obtenus a permis de mettre en lumière la contribution majeure de l'étape de production par rapport aux étapes de traitement et valorisation de la boue.

Toutefois, même si le procédé de récupération permet de préserver la ressource minérale en phosphore, la balance reste défavorable aux produits boue-sourcés (rendements parfois limités de récupération du phosphore, faible concentration en phosphore des boues, utilisation importante d'énergie et de réactifs lors de la fabrication de ces produits).

Cependant, cette méthodologie de construction d'un facteur d'allocation permettant d'attribuer une charge environnementale à chacun des coproduits d'un système de production indivisible ouvre la voie à une évaluation environnementale plus cohérente des produits déchet-sourcés. Cette méthodologie peut également être utilisée de manière pertinente lors de l'évaluation environnementale des procédés de séparation de nature thermique, chimique ou physique.