


Life cycle sustainability assessment of thermo-chemical recycling for future circular plastics

Doctoral Thesis

Author(s):

Salah, Cecilia 

Publication date:

2025

Permanent link:

<https://doi.org/https://doi.org/10.3929/ethz-c-000789423>

Funding acknowledgement:

- NCCR Catalysis (phase I) ()

*LIFE CYCLE SUSTAINABILITY ASSESSMENT OF
THERMO-CHEMICAL RECYCLING FOR FUTURE CIRCULAR
PLASTICS*

A thesis submitted to attain the degree of

DOCTOR OF SCIENCES

(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

CECILIA MARIA SALAH

born on *15.08.1996*

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Gonzalo Guillén Gosálbez, examiner
Prof. Dr. Mar Pérez Fortes, co-examiner

Abstract

The global plastics crisis is driven by an increasing polymer demand in a mostly linear system, marked by low recycling rates and widespread waste mismanagement. This high-emitting, fossil-based sector is responsible for substantial greenhouse gas (GHG) emissions globally. Therefore, tackling the plastics problem requires sustainable solutions that address the problem both at the production and end-of-life levels, among which chemical recycling has emerged as a promising way forward.

The present thesis aims to evaluate the environmental and economic potential of chemical recycling technologies in a current and prospective circular economy for plastics. It uses process systems engineering (PSE) tools to model the implementation of these technologies within the plastics value chain at a system level as a means to mitigate the environmental burdens of conventional production pathways. Therefore, this thesis recurrently uses process simulation, techno-economic analysis (TEA), and life cycle assessment (LCA) to conclude on the environmental and economic viability of these technologies within a circular economy. Four studies are hereby presented, progressively increasing the level of carbon circularity within the chemical sector.

A first study aimed to assess the economic and environmental potential of producing H_2 from plastics through gasification. Two routes involving plastics-to- H_2 were simulated in Aspen Plus and compared to 11 alternative production routes, including fossil, bio-based, and electrolytic H_2 . From the economic viewpoint, we found that plastics-to- H_2 is not competitive with fossil routes, but is cheaper than most electrolytic alternatives. The environmental assessment linked LCA with the planetary boundaries (PBs) framework to quantify the environmental footprint of the 13 assessed H_2 production routes. We found that, although no technology alone could meet the global H_2 demand within the downscaled PBs, environmentally sustainable production can be achieved by deploying an optimized portfolio of H_2 technologies.

Next, we assess the conversion of plastic waste to hydrocarbons as a means to give a second life to the carbon content within plastic materials. Thus, we bridge process simulation, TEA, and LCA with experimental catalyst design to assess the economic

and environmental performance of high-density polyethylene hydrogenolysis over a Ru-Ni bimetallic catalyst in a *Plastic-to-X* concept. We find that the conversion of plastic waste to hydrocarbons can yield GHG emission reductions compared to conventional fuel production and reach competitive costs for certain product distributions—achieved by changing the bimetallic composition in the catalyst. Results of this study highlight the relevance of coupling experimental innovation with PSE tools to help establish targets for future catalyst development.

Circular solutions are, however, preferred in the scope of plastic waste management, as they allow the carbon content to stay within the plastics loop, thus reducing fossil dependence and GHG emissions linked to production and end-of-life operations. Therefore, we next deploy high-readiness level technologies to convert waste low-density polyethylene to methanol and subsequently to ethylene in a circular system. We perform TEA and prospective LCA to determine the techno-economic and environmental potential of this circular production route (CPR) compared to the conventional, mostly linear route in 2020 and 2050. We found that CPR could enable significant impact reductions, notably in 2050, assuming a low-carbon electricity mix based on renewables. However, burden-shifting to other impact categories occurs in the shift from linear to circular. Nevertheless, this solution could significantly support the development of a sustainable circular plastics economy, namely, as ethylene obtained in the CPR is significantly cheaper than its green analogs.

Finally, in the last chapter of this thesis, we combined material flow analysis with LCA and externalities monetization to quantify the true cost of plastics in 14 selected European countries. We found that consuming plastics in the current, mainly linear fossil economy comes with hidden costs two to three times higher than their market price, with externalities being mainly driven by plastics' impacts on global warming and resource scarcity. Deploying chemical recycling technologies that enable monomer recovery can substantially lower these impacts, decreasing fossil dependence and significantly reducing the external cost of plastics. Therefore, we performed a prospective LCA to quantify the cumulative emissions and external cost savings that can be achieved by progressively implementing chemical recycling in the 14 selected countries until 2050. We found that a faster implementation yields substantial cost savings in the range of trillions of euros while avoiding GHG emissions.

Overall, this doctoral thesis provides a comprehensive understanding of the environmental and economic potential of deploying chemical recycling to close the carbon loop for plastics. The results discussed here provide a scientific basis and valuable insights to support policymakers, industries, and researchers in shaping a sustainable circular economy for future plastics.

Résumé

La crise mondiale des plastiques se doit à une demande croissante en polymères dans un système encore largement linéaire, marqué par de faibles taux de recyclage et une gestion insuffisante des déchets. Ce secteur est responsable d'importantes émissions de gaz à effet de serre (GES) au niveau global, et dépend fortement de ressources fossiles pour produire du matériau vierge. Pour y répondre, des solutions durables sont nécessaires à la fois au niveau de la production et de la fin de vie des matériaux. Parmi elles, le recyclage chimique émerge comme une voie prometteuse.

Cette thèse vise à évaluer le potentiel environnemental et économique des technologies de recyclage chimique dans une économie circulaire actuelle et future des plastiques. Elle s'appuie sur des outils d'ingénierie des procédés (process systems engineering, PSE) pour modéliser l'intégration de ces technologies au sein de la chaîne de valeur des plastiques, dans le but d'atténuer les impacts environnementaux des filières de production conventionnelles. Pour cela, elle recourt de manière récurrente à la simulation de procédés, l'analyse technico-économique (TEA) et l'analyse de cycle de vie (ACV) afin d'évaluer la viabilité environnementale et économique de ces technologies dans un cadre circulaire. Quatre études sont présentées, augmentant progressivement le niveau de circularité du carbone dans le secteur chimique.

La première étude évalue le potentiel économique et environnemental de la production d' H_2 à partir de plastiques par gazéification. Deux voies plastiques-vers- H_2 ont été simulées dans Aspen Plus et comparées à 11 filières alternatives (fossiles, biosourcées et électrolytiques). Sur le plan économique, les voies plastiques-vers- H_2 ne sont pas compétitives face aux filières fossiles, mais restent moins coûteuses que la plupart des voies électrolytiques. L'évaluation environnementale combine l'ACV au cadre des limites planétaires (PBs) pour quantifier l'empreinte environnementale des 13 voies de production d' H_2 . Il en ressort que, bien qu'aucune technologie ne puisse satisfaire seule la demande mondiale en H_2 tout en respectant les PBs, une production durable peut être atteinte avec un portefeuille optimisé de technologies.

La deuxième étude s'intéresse à la conversion de déchets plastiques en hydrocarbures, afin de prolonger la durée d'utilisation du carbone contenu dans les plastiques. À cette fin, nous avons intégré la simulation de procédés, la TEA et l'ACV à la conception expérimentale de catalyseurs pour évaluer la performance économique et environnementale de l'hydrogénolyse de polyéthylène haute densité sur un catalyseur bimétallique Ru-Ni, dans un concept *Plastic-to-X*. Les résultats montrent que cette voie peut réduire les émissions de GES par rapport à la production conventionnelle de carburants, et atteindre des coûts compétitifs pour certaines distributions de produits—obtenues en modifiant la composition bimétallique du catalyseur. L'étude souligne l'intérêt de relier travaux expérimental et outils PSE pour guider la conception de futurs catalyseurs.

Les solutions véritablement circulaires restent cependant préférables pour garder le carbone dans la boucle des plastiques. Une troisième étude explore ainsi l'utilisation de technologies à niveau de maturité élevé pour convertir du polyéthylène basse densité en méthanol, puis en éthylène dans un système circulaire. Une TEA et une ACV prospective sont réalisées pour déterminer le potentiel techno-économique et environnemental de cette filière circulaire (CPR) par rapport à la filière conventionnelle, majoritairement linéaire, en 2020 et 2050. Les résultats indiquent que la CPR peut réduire significativement les impacts environnementaux, surtout en 2050 avec un mix électrique décarboné, bien qu'un transfert d'impacts puisse se produire. De plus, cette solution pourrait soutenir de manière significative le développement d'une économie circulaire durable des plastiques, notamment parce que l'éthylène obtenu via la CPR est significativement moins coûteux que ses équivalents verts.

Enfin, la dernière étude combine analyse de flux de matières, ACV et monétarisation des externalités pour quantifier le véritable coût des plastiques dans 14 pays européens. Il en ressort que les coûts cachés associés aux plastiques linéaires actuels sont deux à trois fois supérieurs à leur prix de marché, principalement en raison des impacts sur le climat et sur les ressources. L'intégration de technologies de recyclage chimique permettant la récupération de monomères peut réduire fortement ces externalités en diminuant la dépendance aux ressources fossiles. Une ACV prospective permet donc de quantifier les émissions évitées et les économies associées à un déploiement progressif du recyclage chimique d'ici 2050. Une mise en œuvre rapide pourrait permettre des économies de plusieurs milliers de milliards d'euros tout en réduisant les émissions de GES.

Dans l'ensemble, cette thèse apporte des éléments solides pour comprendre le rôle potentiel du recyclage chimique dans la réduction des impacts environnementaux et économiques de la filière plastique. Les résultats peuvent servir de base aux décideurs, aux industriels et aux chercheurs engagés dans la transition vers une économie circulaire des plastiques.