

Umweltverträglichkeit von zement-  
gebundenen Baustoffen -  
- Untersuchungen zum Auslaugverhalten

**T 2695**

T 2695

Dieser Forschungsbericht wurde mit modernsten Hochleistungskopierern auf Einzelanfrage hergestellt.

Die in dieser Forschungsarbeit enthaltenen Darstellungen und Empfehlungen geben die fachlichen Auffassungen der Verfasser wieder. Diese werden hier unverändert wiedergegeben, sie geben nicht unbedingt die Meinung des Zuwendungsgebers oder des Herausgebers wieder.

Die Originalmanuskripte wurden reprotechnisch, jedoch nicht inhaltlich überarbeitet. Die Druckqualität hängt von der reprotechnischen Eignung des Originalmanuskriptes ab, das uns vom Autor bzw. von der Forschungsstelle zur Verfügung gestellt wurde.

© by Fraunhofer IRB Verlag

1999

Vervielfältigung, auch auszugsweise,  
nur mit ausdrücklicher Zustimmung des Verlages.

**Fraunhofer IRB Verlag**

Fraunhofer-Informationszentrum Raum und Bau

Postfach 80 04 69

70504 Stuttgart

Nobelstraße 12

70569 Stuttgart

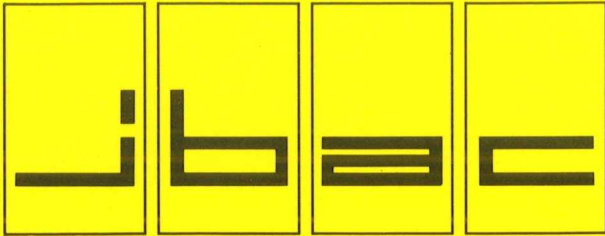
Telefon (07 11) 9 70 - 25 00

Telefax (07 11) 9 70 - 25 08

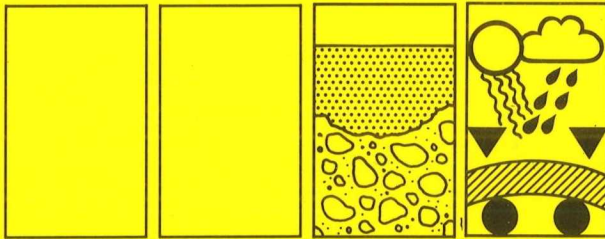
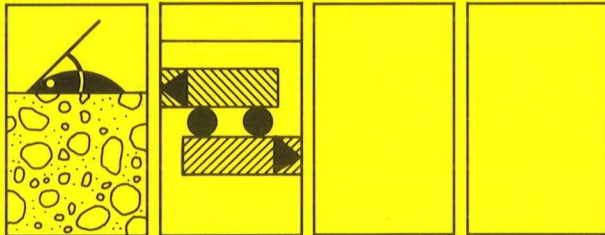
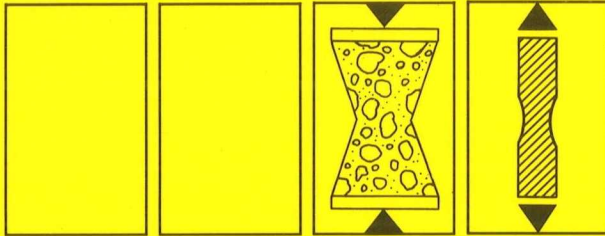
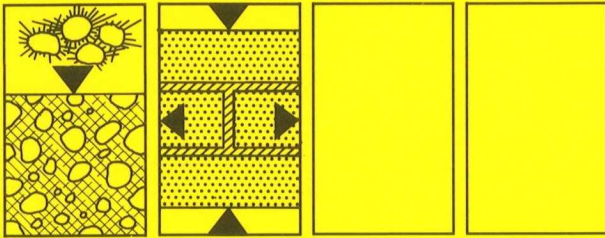
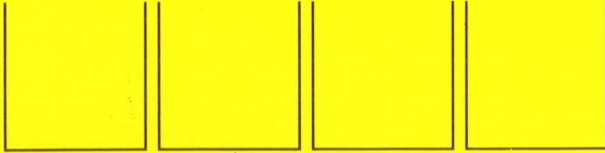
E-Mail [irb@irb.fraunhofer.de](mailto:irb@irb.fraunhofer.de)

[www.baufachinformation.de](http://www.baufachinformation.de)



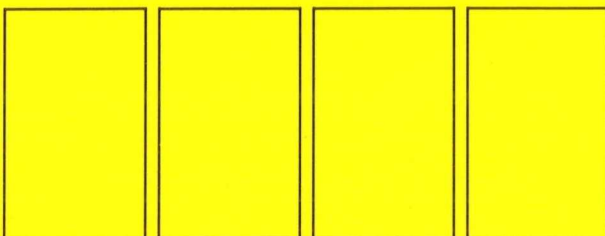


**Institut für Bauforschung Aachen**  
 Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule



**Baustoff · Bauteil · Bauwerk**

**Forschung · Entwicklung  
 Überwachung  
 Prüfung · Beratung**

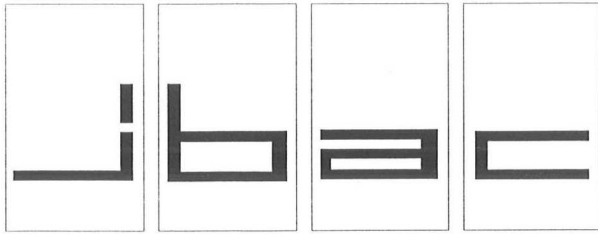


Postfach · D-52056 Aachen  
 Schinkelstr. 3 · D-52062 Aachen (Direktzustellung)  
 Tel. (02 41) 80-5100 · Telex 832 704 THACD  
 Telefax (02 41) 80-5120

Umweltverträglichkeit von zementgebundenen Baustoffen - Untersuchungen zum Auslaugverhalten

ABSCHLUSSBERICHT

F 414  
 vom 22.11.1995



# INSTITUT FÜR BAUFORSCHUNG

Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen

Direktoren: Professor Dr.-Ing. H. R. Sasse · Professor Dr.-Ing. P. Schießl

Schinkelstraße 3, D-52056 Aachen

Telefon (02 41) 80-51 00 · Telex 8 32 704 thacd · Telefax (02 41) 88 88-139

Hb/EE

7. Ausfertigung

## THEMA

Umweltverträglichkeit von zementgebundenen Baustoffen - Untersuchungen zum Auslaugverhalten

## ABSCHLUSSBERICHT

Forschungsbericht Nr.

F 414

vom 22.11.1995

Projektleiter

Prof. Dr.-Ing. P. Schießl

Sachbearbeiterin

Dipl.-Chem. Inga Hohberg

Auftraggeber/  
Förderer

Deutsches Institut für Bautechnik  
Kolonnenstr. 30

10829 Berlin

Auftragsdatum

01.07.92

Aktenzeichen

IV 1-5-679/92

Dieser Bericht umfaßt 91 Seiten, davon 57 Textseiten.

Soweit Versuchsmaterial nicht verbraucht ist, wird es nach 4 Wochen vernichtet.

Eine längere Aufbewahrung bedarf einer schriftlichen Vereinbarung.

Die auszugsweise Veröffentlichung dieses Berichtes, seine Verwendung für Werbezwecke sowie die inhaltliche Übernahme in Literaturdatenbanken bedürfen der Genehmigung des ibac.

<b><u>INHALTSVERZEICHNIS</u></b>		<b>Seite</b>
1	EINLEITUNG .....	1
2	AUSLAUGVERHALTEN VON ZEMENTGEBUNDEN BAUSTOFFEN.	1
2.1	Allgemeines.....	1
2.2	Auslaugmechanismen und Einflußgrößen .....	4
2.2.1	Diffusion (allgemein) .....	5
2.2.2	Diffusion in der Zementsteinmatrix .....	6
2.2.3	Beschreibung der Auslaugvorgänge .....	8
2.2.4	Betontechnische Einflußgrößen .....	12
3	AUSLAUGVERFAHREN.....	13
3.1	Allgemeines.....	13
3.2	Einflußgrößen.....	14
3.3	Beschreibung der Auslaugverfahren .....	17
3.3.1	Schütteltests .....	17
3.3.2	Säulentests.....	19
3.3.3	Standtests .....	20
3.4	Zusammenfassung .....	22
4	KRITERIEN ZUR ABSCHÄTZUNG DER UMWELTVERTRÄGLICHKEIT	24
5	UNTERSUCHUNGEN .....	26
5.1	Allgemeines.....	26
5.2	Ausgangsstoffe .....	28
5.2.1	Zemente .....	28
5.2.2	Zusatzstoffe.....	28
5.2.3	Zuschläge .....	28
5.2.4	Herstellung der Zementsteine .....	29
5.2.5	Herstellung der Mörtel.....	29
5.2.6	Herstellung der Betone .....	30
5.2.7	Herstellung der Probekörper .....	31

<u>INHALTSVERZEICHNIS</u>		Seite
5.3	Charakterisierung der Proben.....	31
5.3.1	Schwermetallgehalte.....	31
5.3.2	Bestimmung der Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen.....	32
5.4	Praxisorientierte Untersuchungen .....	34
5.4.1	Allgemeines.....	34
5.4.2	Einfluß des Bindemittels und der Zusatzstoff-/Zuschlagart auf die Auslaugraten .....	37
5.4.3	Wassercementwert.....	43
5.4.4	Hydratationsalter .....	45
5.4.5	Karbonatisierung .....	46
5.4.6	Bestimmung der Tortuosität.....	47
5.5	Zusammenfassung der Untersuchungsergebnisse .....	48
6	ZUSAMMENFASSUNG.....	49
7	LITERATUR.....	51
	Tabellen	A1 - A15
	Bilder	B1 - B10
	Anhang C: Parameterstudie	C1 - C9

## 1 EINLEITUNG

Eine Beeinflussung der Umwelt durch Baustoffe ist nicht grundsätzlich auszuschließen. So können beispielsweise Salze, Laugen und Schwermetalle bei Feuchteeinwirkung aus dem Baustoff gelöst werden und/oder leicht flüchtige, organische Stoffe aus den Baustoffen gasförmig freigesetzt werden. Bei einer mechanischen Belastung (z. B. Erosion) können von der Oberfläche der Baustoffe staubförmige Partikel abgerieben werden. Durch Emission radioaktiver Strahlung und Partikel kann unter Umständen die natürliche Radioaktivität erhöht werden. Umweltrelevante Stoffe können sowohl durch die Rohstoffe (primäre und sekundäre Rohstoffe) als auch durch den Herstellungsprozeß in den Baustoff gelangen. Diese umweltrelevanten Stoffe können möglicherweise während der Nutzung oder später beim Abbruch bzw. der Deponierung des Abbruchmaterials freigesetzt werden.

Bislang ist eine objektive, vergleichende Bewertung von Baustoffen nicht möglich, da kein festgeschriebenes Verfahren zur Prüfung der Umweltverträglichkeit, hier speziell des Auslaugverhaltens von Bauteilen/-stoffen, zur Verfügung steht. Solch ein Verfahren ist notwendig, um vor der Verwendung eines Baustoffes ausreichende Informationen über das Langzeitauslaugverhalten zu erhalten.

Dieser Forschungsbericht soll einen Beitrag zur Klärung der notwendigen Grundlagen zur Beurteilung des Auslaugverhaltens zementgebundener Stoffe leisten. Dazu werden zementgebundene Baustoffe mit und ohne Einsatz von industriellen Nebenprodukten systematisch hinsichtlich ihres Auslaugverhaltens untersucht.

## 2 AUSLAUGVERHALTEN VON ZEMENTGEBUNDENEN BAUSTOFFEN

### 2.1 Allgemeines

Eine mögliche Belastung der Umwelt durch zementgebundene Baustoffe besteht darin, daß Schwermetalle und Salze durch den Kontakt mit Wasser, z. B. Regen oder Grundwasser, ausgelaugt werden können. Die Auslaugung organischer Substanzen ist bei den konventionellen zementgebundenen Baustoffen nur von untergeordneter Bedeutung. Organische Emissionen sind, wenn überhaupt, nur während des Herstellungsprozesses bzw. der Bauphase zu erwarten. Im Rahmen dieses Forschungsprojektes kann darauf nicht näher eingegangen werden. Dies sollte aber an anderer Stelle erfolgen.

Um eine mögliche Auswirkung auf die Umwelt bewerten zu können, ist die Kenntnis des zeitabhängigen Auslaugverhaltens unter den gegebenen bzw. zu erwartenden Bedingungen am Bauwerk oder Bauteil erforderlich. Diese Informationen können im Labor durch Auslaugtests erhalten werden. In Auslaugtests wird versucht, definierte Randbedingungen zu schaffen und spezifische Einflußgrößen nachzustellen. Bei zusätzlicher Klärung der Auslaugmechanismen kann dann eine Beurteilung des Langzeitauslaugverhaltens vorgenommen werden.

Zur Zeit ist eine Vielzahl von Elutionsverfahren in Anwendung /29/. Gleichzeitig sind die chemischen Analyseverfahren immer einfacher und genauer geworden, so daß umweltrelevante Stoffe in beliebig geringer Konzentration nachgewiesen werden können. Unkommentierte Angaben von Analysenergebnissen mit für den Laien nicht bewertbaren Einheiten (z. B. ppb) führen oft zur Verwirrung der Öffentlichkeit und machen eine Einordnung der Resultate fast unmöglich. Um zu einem einheitlichen, reproduzierbaren und praxisgerechten Prüfverfahren zu gelangen, welches das Auslaugverhalten von zementgebundenen Baustoffen widerspiegelt, muß der Einfluß von Versuchsparametern sowie betontechnischer Parameter auf die Auslaugraten näher betrachtet werden.

Das Auslaugverhalten von Baustoffen/Bauteilen muß von der Herstellung eines Bauteils bis zum Abriß und der Deponierung oder Wiederverwendung betrachtet werden. Die gesamte Betrachtung der Auslaugungsproblematik ergibt ein komplexes Schema, das in Bild 1 wiedergegeben ist. Die Zusammenhänge werden im folgenden beschrieben.

Bevor die Prüfbedingungen eines Auslaugverfahrens festgelegt werden können, muß man die dominierenden Auslaugmechanismen für die betrachteten Stoffe klären. Die Auslaugmechanismen sind von der "Umwelt", der die Baustoffe ausgesetzt sind (z. B. Boden, Grundwasser usw.), genauso abhängig wie von der Art des Baustoffes selbst (stückiges oder monolithisches Material, poröses oder dichtes Material usw.). Ausgehend von diesen Randbedingungen müssen der geschwindigkeitsbestimmende Prozeß (Diffusion, Oberflächenauswaschung usw.) bestimmt und die jeweiligen Auslaugbedingungen (stehendes Wasser, Perkolation usw.) in Betracht gezogen werden (s. Bild 1).

Hat man alle Grundlagen des Auslaugverhaltens der betrachteten Stoffe geklärt, sollte der Freisetzungsmechanismus aufgrund der physikalischen bzw. physikalisch-chemischen Prozesse modelliert werden, um Testverfahren festzulegen, mit denen die Testergebnisse interpretiert und in die Praxis übertragen werden können. Hat man die richtigen Modelle formuliert, kann man aus den Testergebnissen auf die dominierenden Einflußgrößen schließen.



Alle angewandten Testmethoden müssen auf dem relevanten Auslaugmechanismus unter den gegebenen praxisrelevanten Bedingungen beruhen und den speziellen Anwendungsbereichen genügen.

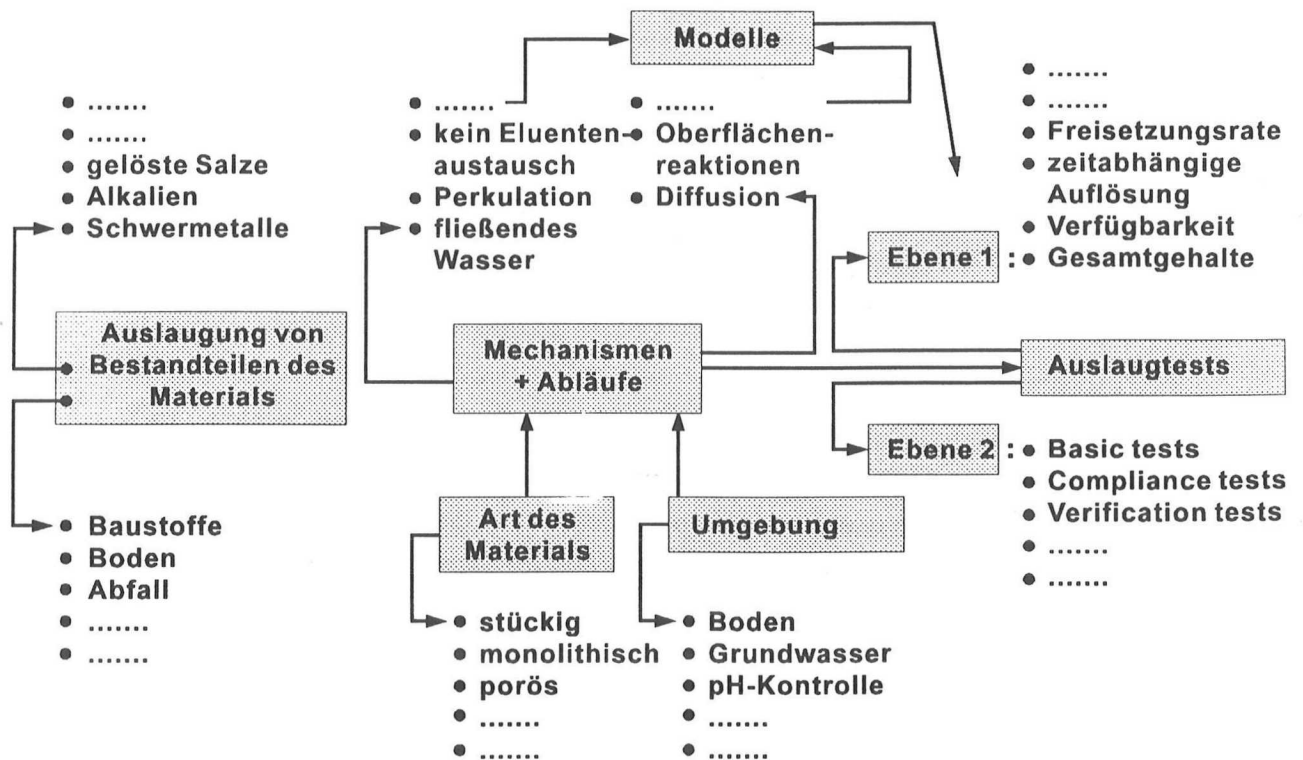
Betrachtet man die Auslaugverfahren, kann man grundsätzlich zwei Klassifizierungen treffen. In Ebene 1 hat man die unterschiedlichen Testverfahren, mit denen jeweils bestimmte Aspekte der Auslaugung untersucht werden können wie z. B.:

- Bestimmung der Gesamtgehalte,
- Bestimmung der Verfügbarkeit (Mobilisierbarkeit) der betrachteten Stoffe ohne Berücksichtigung des zeitabhängigen Eluierens,
- Testverfahren, die das zeitabhängige Eluieren in einer bestimmten Umgebung unter realistischen Bedingungen bestimmen (Freisetzungsraten).

Die Materialien werden mit diesen Verfahren umfangreich charakterisiert und die Mechanismen der Auslaugung werden bestimmt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen dienen zur Kalibrierung der Rechenmodelle. Dabei werden alle Parameter, die die Auslaugung des betrachteten Materials beeinflussen, berücksichtigt.

Andererseits ist zu unterscheiden zwischen "basic tests" (grundlegende Untersuchungen eines Materials zur Bestimmung des Auslaugverhaltens), vereinfachten "compliance tests" (Untersuchung eines bestimmten Aspektes der Auslaugung, z. B. zur Qualitätskontrolle oder Güteüberwachung) und schließlich noch weiter vereinfachten "verification tests" zur Identitätsprüfung eines Materials.

Um zu einem einheitlichen, reproduzierbaren und praxisgerechten Prüfverfahren zu gelangen, welches das Auslaugverhalten von zementgebundene Baustoffen widerspiegelt, muß zunächst der Einfluß von Versuchsparametern sowie baustofftechnischer Parameter auf die Auslaugmengen näher untersucht werden, um die dominierenden Auslaugmechanismen zu bestimmen. Hierzu sind Grundlagenuntersuchungen (basic tests) erforderlich. In dem vorliegenden Forschungsbericht werden solche Grundlagenuntersuchungen beschrieben.



**Bild 1:** Auslaugung von umweltrelevanten Bestandteilen aus Baustoffen -Schema-

## 2.2 Auslaugmechanismen und Einflußgrößen

Bringt man ein Probegut mit einer Auslaugflüssigkeit, einem Eluenten, in Kontakt, so können grundsätzlich folgende Phänomene auftreten /33/:

- Lösliche Salze, die auf der Oberfläche des Probematerials adsorbiert sind, können beim ersten Kontakt mit dem Eluenten abgelöst werden. Man spricht von der sogenannten Anfangsauswaschung ("wash-off-effect"). Dieser Prozeß ist bereits nach kurzer Zeit beendet.
- Ist die gesamte Matrix in dem Eluenten löslich, kommt es zu einer kontinuierlichen Auflösung von außen nach innen. Beim Auslaugen von Beton ist dies nur dann ein wesentlicher Mechanismus, wenn ein lösender Angriff vorliegt (z. B. durch Kohlensäures Wasser).



- Abhängig von der Konzentration des Porenwassers und des Eluenten kann Diffusion aus dem Feststoff heraus in den Eluenten oder vom Eluenten in den Feststoff stattfinden. Dabei findet die Diffusion in der Zementsteinmatrix vor allem in den Kapillarporen statt.

Zusätzlich kann es in der Matrix durch pH-Wert-Veränderungen zur Ausfällung oder Auflösung von Salzen kommen. An der Oberfläche des Probekörpers finden Absorptions- und Adsorptionsvorgänge statt.

Für zementgebundene Baustoffe konnte bereits gezeigt werden, daß der vorherrschende Auslaugmechanismus die Diffusion ist /29/. Im folgenden werden daher zunächst die grundsätzlichen Mechanismen der Diffusion näher beschrieben.

### 2.2.1 Diffusion (allgemein)

Die Diffusion ist ein Stofftransport, der auf der Eigenbewegung der Partikel (Brown'sche Molekularbewegung) basiert. In einem porösen Feststoff ist die Diffusion durch die Stöße (Impulsaustausch) der Teilchen untereinander sowie mit den Porenwänden gekennzeichnet. Die Diffusion wird durch Unterschiede in den Teilchenkonzentrationen ausgelöst.

Stationäre und instationäre Diffusionsvorgänge lassen sich durch das 1. und 2. Fick'sche Gesetz beschreiben.

Für die Beschreibung von stationären Diffusionsvorgängen (der Konzentrationsgradient bleibt über die Zeit konstant) gilt das 1. Fick'sche Gesetz in der Form:

$$\frac{dN}{dt} = -D \cdot A \frac{dc}{dx} \quad (\text{allgemein: } \dot{m} = -D \cdot \text{grad } c) \quad (1)$$

mit:

$dN/dt$  = Teilchenstrom (Zahl der Teilchen, die pro Zeiteinheit eine bestimmte Fläche passieren)

$dc/dx$  = Konzentrationsgradient

A = Flächeneinheit

D = spezifischer Diffusionskoeffizient

Bei der freien Diffusion ist der Diffusionskoeffizient für eine gegebene Ionen-/Stoffart eine Konstante. Die Größe des freien Diffusionskoeffizienten einer Ionenart in Wasser hängt von der Molmasse, der Beweglichkeit der Teilchen und von der Temperatur ab.

Der allgemeine Fall der instationären Diffusion (Konzentration als Funktion des Ortes und der Zeit) wird durch das 2. Fick'sche Gesetz (auch Diffusionsgleichung) ausgedrückt:

$$\frac{dc}{dt} = - \operatorname{div}(- D \cdot \operatorname{grad} c) \quad (2)$$

mit :

$D$  = spezifischer Diffusionskoeffizient

$\operatorname{grad} c$  = variables Konzentrationsgefälle

Diffusion kann sowohl im gasförmigen als auch im flüssigen Zustand (Lösungsdiffusion) stattfinden /21/. Im Falle von Auslaugvorgängen ist die Lösungsdiffusion, im speziellen die Ionen-Diffusion, maßgebend.

### 2.2.2 Diffusion in der Zementsteinmatrix

In den Kapillarporen der Zementsteinmatrix wird die freie Diffusion der Ionen behindert. Zum einen wird die Diffusion durch den längeren Weg in den Poren verlangsamt. Man kann von einem wirksamen Diffusionskoeffizient im Porensystem sprechen (physikalische Effekte). Zum anderen wird die Diffusion in der Zementsteinmatrix durch chemische Reaktionen im Porenwasser und an den Porenwänden beeinflusst (chemische Einbindung).

Die in Auslaugtests ermittelten Diffusionskoeffizienten sind daher kleiner als der Diffusionskoeffizient der freien Ionen in Wasser. Man spricht von einem "effektiven Diffusionskoeffizienten"  $D_e$ .

Zwischen  $D_e$  und  $D$  besteht allgemein folgender Zusammenhang:

$$D_e = a \cdot D \quad (3)$$

mit:

$D_e$  = "effektiver" Diffusionskoeffizient

$D$  = freier Diffusionskoeffizient in Wasser

$a$  = dimensionsloser Faktor, der die physikalischen und chemischen Einflüsse berücksichtigt

Der Faktor  $a$  ergibt sich aus dem physikalischen und dem chemischen Rückhaltevermögen. Das physikalische Rückhaltevermögen wird durch die Gesamtporosität und die Gewundenheit der Poren (Tortuosität) beeinflusst. Die Tortuosität  $T$  ist ein Maß für den verlängerten Weg, den die Ionen in den Poren zurückzulegen haben. Die Tortuosität kann über den Quotienten des freien und des effektiven Diffusionskoeffizienten des Natriumions ermittelt werden, wenn man voraussetzt, daß Natrium i. d. R. nicht chemisch eingebunden wird, so daß lediglich der physikalische Einfluß auf das Natrium wirkt /4, 32/:

$$T^2 = \frac{D_{Na}}{D_{e,Na}} \quad (4)$$

$D_{Na}$  = Diffusionskoeffizient für  $Na^+$  in Wasser ( $D_{Na} = 10^{-8,8} m^2/s$ )

$D_{e,Na}$  = effektiver Diffusionskoeffizient für Na in der Matrix [ $m^2/s$ ].

Das chemische Rückhaltevermögen läßt sich durch den sogenannten Retentionsfaktor  $R$  ausdrücken.  $R$  ist ein Maß für die Wirksamkeit der chemischen Stabilisierungsmaßnahmen (z. B. die Bildung von schwerlöslichen Salzen in der hoch alkalischen Zementsteinmatrix oder die Einbindung in die Klinkermineralien und Hydratationsprodukte wie das CSH-Gel).

$R$  kann folgendermaßen abgeschätzt werden:

$$R = \frac{D_x}{D_{e,x} \cdot T^2} \quad (5)$$

$R$  = Retentionsfaktor (dimensionslos)

$D_x$  = Diffusionskoeffizient für die Komponente  $x$  in Wasser [ $m^2/s$ ]

$D_{e,x}$  = effektiver Diffusionskoeffizient für Komponente  $x$  in der Matrix [ $m^2/s$ ]

Durch den Vergleich des in Auslaugtests ermittelten effektiven Diffusionskoeffizienten mit dem freien Diffusionskoeffizienten der einzelnen Ionenarten in Wasser kann die Wirksamkeit der Einbindung (physikalische und chemische Einbindung) von umweltrelevanten Stoffen in eine Zementmatrix beurteilt werden. Es konnte gezeigt werden, daß durch hy-

draulische Bindemittel der Diffusionskoeffizient um ca. 3 Größenordnungen herabgesetzt werden kann /29/.

### 2.2.3 Beschreibung der Auslaugvorgänge

Die Fick'schen Gesetze zur Beschreibung der Elutionsvorgänge aus zementverfestigten Proben können unter folgenden Bedingungen in einer vereinfachten Form zur Berechnung von Diffusionskoeffizienten verwendet werden /1/:

- wenn die Lösungsprozesse im Vergleich zur Diffusion sehr schnell verlaufen (leicht lösliche Salze),
- wenn die Probe ausreichend durchfeuchtet ist,
- wenn die Salze in dem Eluenten komplett löslich sind.

Aus den Fick'schen Gesetzen lassen sich dann die folgenden Gleichungen ableiten /8/:

$$J = S_0 \sqrt{\frac{D_e}{\pi \cdot t}} \Rightarrow D_e = \pi \cdot t \left(\frac{J}{S_0}\right)^2 \quad (6)$$

$J$  =  $dN/dt \cdot A$  = Diffusionsstromdichte der Ionen [ $\text{mmol}/(\text{s} \cdot \text{m}^2)$ ] (Zahl der Teilchen, die pro Fläche und Zeit transportiert werden)

$D_e$  = effektiver Diffusionskoeffizient der Ionen [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]

$t$  = Elutionszeit [s]

$S_0$  = Konzentration der Ionen im Feststoff zum Zeitpunkt  $t = 0$  [ $\text{mmol}/\text{m}^3$ ]

Für den Fall, daß die betrachteten Stoffe nicht vollständig im Eluenten löslich sind (dies ist bei den zementgebundenen Baustoffen die Regel), muß für  $S_0$  die maximal mobilisierbare Konzentration ( $S_a$ ) eingesetzt werden, da sonst die Näherungsgleichungen nicht angewendet werden können. Es gilt dann folgende Gleichung:

$$S_a = a \cdot S_0 \quad (7)$$

$S_0$  = Gesamtgehalt

$S_a$  = mobilisierbare Konzentration [ $\text{mmol}/\text{m}^3$ ]

$a$  = Verfügbarkeitsfaktor

$S_a$  muß experimentell bestimmt werden. Hierzu ist ein sogenannter Verfügbarkeitstest erforderlich. Ein Prüfverfahren zur Bestimmung der Verfügbarkeit, das allgemein anerkannt und relevant ist, existiert für zementgebundene Baustoffe bislang nicht. Zur Zeit werden zur Bestimmung von  $S_a$  Prüfverfahren eingesetzt, bei denen das Prüfgut fein aufgemahlen wird. Dieses Vorgehen ist nicht praxisnah.

In Elutionsversuchen mit praxisrelevanten Probekörpern (der Versuchsaufbau ist in Abschnitt 3 beschrieben) werden die Auslaugraten ermittelt, indem die Konzentrationen der einzelnen Ionenarten (z. B. Schwermetallionen) in den gewonnenen Eluaten bestimmt werden. Der Stofftransport wird nach folgender Gleichung berechnet:

$$J_i = \sum_{i=1}^n (C_i - C_0) \frac{V}{A \cdot t_i} \quad (8)$$

$J_i$  = Stofftransport; Menge der Teilchen, die pro Fläche und Zeit transportiert werden [mmol/(s·m<sup>2</sup>)]

$C_i$  = Konzentration der betrachteten Ionenart im Eluat [mmol/l] im i-ten Intervall

$C_0$  = ursprüngliche Konzentration der betrachteten Ionen [mmol/l] im Eluenten (Blindwert)

$V$  = Volumen des Eluenten [l]

$A$  = Oberfläche des Prüfkörpers [m<sup>2</sup>]

$t_i$  = gesamte Kontaktzeit nach der i-ten Eluentenerneuerung [s]

$n$  = Anzahl der Zyklen

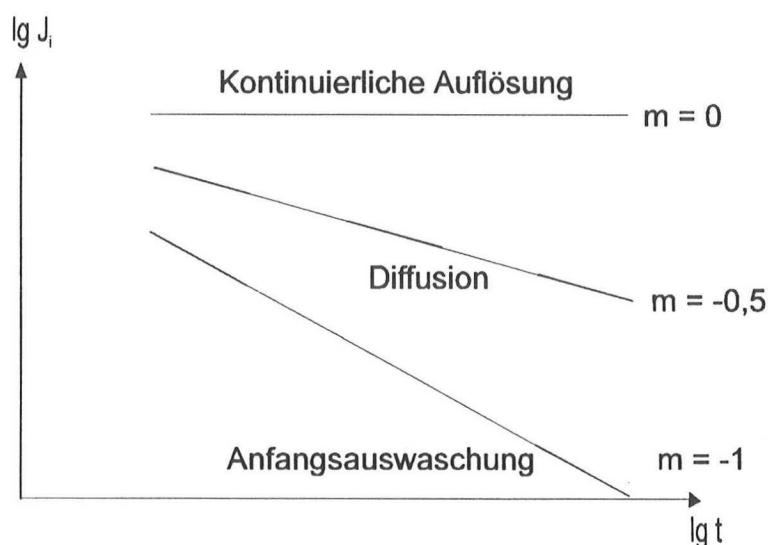


Bild 2: Veranschaulichung der Auslaugmechanismen /4/

Trägt man den aus Gleichung (8) berechneten Stofftransport gegen die Zeit doppelt logarithmisch auf, so erhält man erste Anhaltspunkte darüber, welcher Auslaugmechanismus vorherrscht. Bei Gültigkeit der oben aufgeführten Formeln ergeben sich im Diagramm Geraden mit unterschiedlichen Steigungen  $m$ . Am Zahlenwert der Steigung  $m$  läßt sich der dominierende Auslaugmechanismus erkennen (vgl. Bild 2). Erhält man eine horizontale Gerade ( $m = 0$ ), so liegt ein lösender Angriff mit kontinuierlichem Stofftransport vor. Ergeben die aufgetragenen Werte eine Gerade mit der Steigung  $m = -1$ , so dominiert der "wash-off"-Effekt (Anfangsauswaschung). Hat die erhaltene Gerade eine Steigung von  $m = -0,5$ , so ist der dominierende Auslaugmechanismus die Diffusion. Die verschiedenen Mechanismen können sich dabei auch überlagern, so daß sich in dem Diagramm Geraden ergeben, die zwischen den theoretischen liegen.

Im Rahmen dieses Projektes konnte ein praxisnaher, relevanter Verfügbarkeitstest nicht entwickelt werden. Um die untersuchten Mörtel und Betone miteinander vergleichen und die Versuchsergebnisse beurteilen zu können, wird im Rahmen dieses Forschungsprojektes folgendermaßen verfahren:

- in den praxisrelevanten Auslaugtests werden die Freisetzungsraten der Schwermetalle nach Gleichung (8) bestimmt:
- wenn Diffusion als dominierender Auslaugmechanismus vorliegt, wird die durch Diffusion verursachte Emission nach 1 Jahr nach folgenden Gleichungen berechnet:

$$E_{1a} = \frac{F_i}{5615,69[\sqrt{s}]} \quad (9)$$

$$F_i = J_i \cdot M \cdot \sqrt{t} \quad (10)$$

mit:

$E_{1a}$ : Emission nach 1 Jahr [ $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ ]

$F_i$ : Freisetzungsraten, d. h. während der Elution durch Diffusion freigesetzte Menge der betrachteten Ionenart [ $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \sqrt{s})$ ]

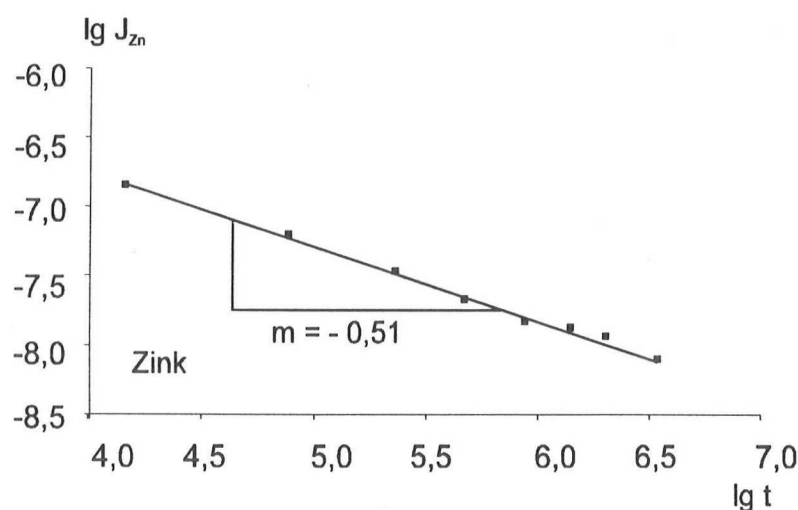
$J_i$ : Stofftransport nach Gl. 8 [ $\text{mmol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ ]

$M$ : Molgewicht der betrachteten Ionenart [ $\text{mg}/\text{mmol}$ ]

$t$ : Zeitraum während der Elution, in dem Diffusion vorliegt (Steigung im  $\lg J$ - $\lg t$ -Diagramm = -0,5) [s]

Bei der Bewertung von  $E_{1a}$  muß beachtet werden, daß es sich um errechnete Emissionen aufgrund der Diffusion während des Auslaugversuches handelt. Dies sind nicht die Emissionen, die in der Praxis tatsächlich freigesetzt werden. Zementgebundene Baustoffe werden mit zunehmenden Alter immer dichter, d. h. die Emission durch Diffusion wird mit zunehmenden Betonalter geringer. Dieser Einfluß wird bei der Berechnung von  $E_{1a}$  nicht berücksichtigt. Daher liegen die  $E_{1a}$ -Werte, die an Proben im Labor bestimmt werden, über den Emissionen in der Praxis. Die  $E_{1a}$  Werte dienen zum Vergleich der verschiedenen zementgebunden Baustoffe untereinander.

In Bild 3 sind die Ergebnisse von den in einem Standtest mit einem Mörtelprüfkörper (zum Prüfverfahren s. Abschn. 3) ermitteltem Stofftransport am Beispiel des Zinks dargestellt /29/. Es ergibt sich eine Steigung der resultierenden Gerade von -0,51. Auch für andere Elemente (Chrom, Kupfer, Blei etc.) liegen die aus den  $\lg J$ - $\lg t$ -Diagrammen ermittelten Steigungen in der Größenordnung von -0,5 /29/. Diese Ergebnisse belegen, daß bei den zementgebundenen Baustoffen der dominierende Auslaugmechanismus die Diffusion ist. Für den Fall, daß die oben genannten Bedingungen nicht gültig sind, d. h. der Vorgang nicht ausschließlich diffusionskontrolliert ist, läßt sich das Fick'sche Gesetz nicht so einfach anwenden.



**Bild 3:** Darstellung der Elutionsergebnisse aus der Untersuchung eines Mörtelprüfkörpers am Beispiel von Zink /29/

Coté /7/ hat einen halb empirischen Ausdruck zur Beschreibung der gesamten ausgelaugten Menge ( $\Sigma a_n$ ) einer Ionen- bzw. Stoffart entwickelt:

$$\Sigma a_n(t) = k_1 \cdot (1 - e^{-k_2 \cdot t}) + k_3 \cdot t^{1/2} + k_4 \cdot t \quad (11)$$

$k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_3$  und  $k_4$  sind empirische Konstanten.

Der erste Teil der Gleichung drückt die Kinetik des Austausches der Ionenart zwischen der Oberfläche der Matrix und der wäßrigen Lösung aus. Wenn die Anfangsauswaschung im Vergleich zu anderen Phänomenen schnell ist, reduziert sich dieser Term auf die Konstante  $k_1$ . Der zweite Term,  $k_3 \cdot t^{1/2}$ , beinhaltet den Transport der Spezies durch Diffusion. Der dritte Term steht für die Auslaugung durch eine langsame chemische Reaktion und/oder für die Korrosion bzw. strukturelle Auflösung der Matrix.

#### **2.2.4 Betontechnische Einflußgrößen**

Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, ist die Auslaugung von umweltrelevanten Stoffen aus zementgebundenen Baustoffen nach dem derzeitigen Kenntnisstand ein im wesentlichen diffusionsgesteuerter Prozeß. In praxisorientierten Auslaugtests, in denen das zeitabhängige Auslaugverhalten untersucht wird, können effektive Diffusionskoeffizienten für die einzelnen Ionen/Stoffe ermittelt werden. Die ermittelten Diffusionskoeffizienten erlauben eine Beurteilung der Wirksamkeit des Einschlusses von umweltrelevanten Stoffen in eine Zementmatrix. Je kleiner der Diffusionskoeffizient in der Matrix ist, desto besser ist ein umweltrelevanter Stoff eingebunden. Als wesentliche betontechnische Faktoren sind vor allem folgende Einflußgrößen zu berücksichtigen:

- die Porosität und Porenstruktur bzw. Dichte des Betons,
- der Hydratationsgrad bzw. das Betonalter,
- die Karbonatisierung.

Die Porosität und die Porenstruktur des Zementsteins hängen zunächst ganz wesentlich vom Wasserzementwert ab. Darüber hinaus sind die Verdichtung, die Nachbehandlung sowie der erreichte Hydratationsgrad von Bedeutung.



Auch die Zementart wirkt sich unmittelbar auf die Porenstruktur und damit auf die Dichtigkeit der Matrix aus. So steigt bei Hochofenzement im Vergleich zu Portlandzement bei ungefähr gleicher Gesamtporosität der Anteil der Gelporen, die gegenüber Flüssigkeiten und Gasen als praktisch dicht anzusehen sind /47, 34/. Der für die Auslaugvorgänge maßgebliche Porenraum sind die mit Wasser gefüllten Kapillarporen

Die Verwendung von Feinststoffen, z. B. der Betonzusatzstoffe Steinkohlenflugasche und Silicastaub bewirkt besonders aufgrund ihrer puzzolanischen Reaktionsfähigkeit im allgemeinen eine deutliche Veränderung des Porengefüges im Beton /16, 28/. In beiden Fällen findet eine signifikante Verdichtung des Zementsteinporenraumes statt.

Die Einbindung von umweltrelevanten Stoffen in eine Zementsteinmatrix ist außer von der Art des Bindemittels vor allem vom Hydratationsgrad der Produkte abhängig. Mit zunehmendem Hydratationsgrad wird die Durchlässigkeit der Betone bzw. Mörtel geringer, der Körper wird dichter und der physikalische Einschluß der umweltrelevanten Stoffe in die Zementmatrix ist somit effektiver. Gleichzeitig werden einige Elemente chemisch in die Mineralphasen eingebaut. Die Löslichkeit der eingeschlossenen umweltrelevanten Stoffe sollte also mit zunehmendem Hydratationsgrad abnehmen. Dies zeigen auch Untersuchungen in /31, 37, 38/.

Die Karbonatisierung (Reaktion des Calciumhydroxids mit dem Kohlendioxid aus der Luft) des Zementsteins setzt den pH-Wert der Porenlösung herab. Dadurch können möglicherweise zunächst gebundene oder als Salze immobilisierte umweltrelevante Stoffe in Lösung gehen und für Auslaugungsprozesse verfügbar werden. Mit der Karbonatisierung ist gleichzeitig eine Veränderung der Hydratationsprodukte und des Porengefüges verbunden. Zum Einfluß der Karbonatisierung auf die Auslaugung von umweltrelevanten Stoffen aus Zementprodukten liegen aber bislang keine Untersuchungsergebnisse vor.

### **3 AUSLAUGVERFAHREN**

#### **3.1 Allgemeines**

Betrachtet man zur Zeit angewendete Auslaugverfahren, kann man grundsätzlich zwischen drei Arten von Prüfverfahren unterscheiden (vgl. Abschnitt 2.1):

- Grundlagenuntersuchungen (basic tests) im Rahmen wissenschaftlicher Studien zur Aufklärung der Auslaugvorgänge und -mechanismen,
- vereinfachte Prüfverfahren (compliance tests) zur Untersuchung eines bestimmten Aspektes der Auslaugung, z. B. zur Qualitätskontrolle oder Güteüberwachung
- und schließlich noch weiter vereinfachte Verfahren (verification tests), die lediglich zur Identifizierung des Materials dienen.

Im folgenden wird ein kurzer Überblick über die Einflußgrößen sowie die zur Zeit angewendeten Auslaugverfahren gegeben.

### 3.2 Einflußgrößen

Folgende Parameter beeinflussen in Elutionsversuchen die Auslaugraten von Schwermetallen und Salzen aus zementgebundenen Materialien /29/:

- **Art des angewandten Prüfverfahrens (praxisrelevante Probekörper oder zerkleinerte Proben):**

Die Wahl des Prüfverfahrens spielt eine große Rolle. Je nach Fragestellung kann der Einsatz unterschiedlicher Verfahren (Auslaugtests an zerkleinertem Probematerial oder an Prüfkörpern mit Abmessungen, die mindestens so groß sind, daß die Konzentration der betrachteten Stoffe im Inneren des Baustoffes als nahezu konstant angenommen werden können) sinnvoll sein. Auslaugtests an zerkleinertem Probenmaterial sind nur dann sinnvoll, wenn die Stoffe chemisch charakterisiert werden sollen (z. B. Überprüfung der Löslichkeit), nicht aber zur Beurteilung des Langzeitauslaugverhaltens unter praxisgerechten Bedingungen. Hierzu müssen praxisorientierte Auslaugtests an Prüfkörpern durchgeführt werden.

- **Korngröße des Prüfgutes /Prüfkörpergröße:**

Die Korngröße des zu prüfenden Materials bzw. die Prüfkörpergröße, hier insbesondere das Oberflächen/Volumenverhältnis, beeinflußt die Auslaugrate. Je größer die für den Eluenten verfügbare Oberfläche ist, desto größer wird auch die Konzentration der umweltrelevanten Stoffe im Eluat sein. Neben dem Zerkleinerungsgrad (s. o.) spielt auch die

unterschiedliche Verteilung der Spurenelemente auf verschiedene Korngrößen eine wesentliche Rolle.

- **Flüssigkeits/Feststoff-Verhältnis (= L/S):**

Bei Schütteltests mit zerkleinertem Probenmaterial ist die Auslaugrate direkt proportional zum Flüssigkeit/Feststoffverhältnis (= L/S). Nimmt man an, daß in der Praxis im Laufe der Zeit das L/S stets größer wird, kann durch die Variation des L/S-Verhältnisses eine Zeitachse dargestellt werden.

- **pH-Wert des Eluenten:**

Die pH-Wert-Abhängigkeit der Auslaugrate kommt durch die unterschiedliche Löslichkeit der Schwermetallionen bei verschiedenen pH-Werten zustande. Jedoch beeinflusst nicht nur der pH-Wert der Auslaugflüssigkeit, sondern auch die Pufferkapazität des Feststoffes (z. B. Zementstein) selber die Auslaugrate, indem sie den pH-Wert des Eluenten verändert, d. h. auch die chemische Zusammensetzung des auszulaugenden Stoffes ist von Bedeutung.

- **Zusammensetzung des Eluenten:**

Die Zusammensetzung des Eluenten hat vor allem dann eine Bedeutung, wenn andere Elutionsflüssigkeiten als entmineralisiertes Wasser bzw. künstlicher saurer Regen eingesetzt werden. Hier sind vor allem Pufferlösungen und Eluenten mit unterschiedlichen Redoxpotentialen zu nennen.

- **Temperatur:**

Die Temperatur, bei der die Untersuchungen durchgeführt werden, hat einen sehr starken Einfluß auf die Auslaugrate, da die Reaktionsgeschwindigkeit exponentiell mit der Temperatur zunimmt. Ob dies als "Zeitraffereffekt" ausgenutzt werden kann, um die Versuchszeit zu verkürzen, muß überprüft werden.

Neben den aufgeführten Einflüssen ist auch die Elutionsdauer von Bedeutung. Die beton-technischen Einflüsse auf die Auslaugrate wurden bereits im vorhergehenden Abschnitt diskutiert.

Die Übersicht zeigt, daß zwangsläufig bei unterschiedlichen Versuchsbedingungen stark voneinander abweichende Ergebnisse zu erwarten sind, die z. B. bei zerkleinerten Proben unter Umständen sehr weit von den Bedingungen in der Praxis entfernt sein können.

### 3.3 Beschreibung der Auslaugverfahren

In der Literatur werden folgende Arten von Auslaugtests für Baustoffe beschrieben /29/:

- Schütteltests,
- Säulentests,
- Standtests.

Darüber hinaus gibt es einige spezielle Auslaugverfahren, die von verschiedenen Instituten entwickelt wurden. Auf diese Verfahren wird im Rahmen dieser Forschungsarbeit nicht näher eingegangen.

#### 3.3.1 Schütteltests

Bei den Schütteltests (batch-tests) wird das Probenmaterial mit dem Eluenten versetzt, und anschließend geschüttelt oder gerührt. Die Versuchsparameter, die in den Schütteltests variiert werden, sind folgende:

- Flüssigkeits/Feststoff-Verhältnis (L/S),
- Eluent,
- Korngröße des zu eluierenden Materials,
- Elutionsdauer,
- Bewegungsart (schütteln, rühren).

Bei den Schütteltests gibt es auch Verfahren, bei denen der pH-Wert während der gesamten Auslaugdauer konstant auf einen bestimmten pH-Wert eingestellt wird (pH-stat.-Verfahren).

In der Literatur werden eine Vielzahl von Schütteltests beschrieben, deren Ergebnisse untereinander nicht immer vergleichbar sind. Tabelle 1 gibt eine Übersicht über zur Zeit in verschiedenen Ländern genormte Schütteltests.

Als Testverfahren in Deutschland wird für die Elution vielfach der Schütteltest nach DIN 38 414 S-4 /13/, kurz DEV-S4-Verfahren genannt, eingesetzt.

Die Durchführung des Tests ist sehr einfach: 100 g Probenmaterial mit einer Korngröße < 10 mm werden in einer Weithalsflasche mit 1 l deionisiertem bzw. destilliertem und entgastem Wasser versetzt. Die Flasche wird dann 24 h bei Raumtemperatur geschüttelt, wobei eine weitere Zerkleinerung des Probenguts durch Abrieb vermieden werden soll. Anschließend wird filtriert, und die Zusammensetzung des so gewonnenen Eluates untersucht. Das Verfahren ist in Bild 4 schematisch dargestellt.

Die zu bestimmenden Parameter sind:

- die Massenkonzentration der umweltrelevanten Elemente,
- der pH-Wert des Eluates,
- die elektrische Leitfähigkeit des Eluates.

Der Rückstand der ersten Elution kann gegebenenfalls erneut eluiert werden.

Das Verfahren bietet, wie alle Schütteltests, den Vorteil, daß es einfach und schnell durchgeführt werden kann.

**Tabelle 1: Genormte Schütteltests in verschiedenen Ländern**

Bezeichnung	Land	Einwaage g	Korngröße mm	L/S	Eluent	Bewegungsart	Auslaug- dauer h
1	2	3	4	5	6	7	8
DEV-S4 /13/	Deutschland	100	< 10	10	deionisiertes Wasser	über Kopf schütteln	24
Schweizer TVA /31/	Schweiz	100 - 200	keine An- gabe	10	CO <sub>2</sub> -gesättigtes Wasser	durchblasen von CO <sub>2</sub>	2 x 24
AFNOR X 31- 210 /10/	Frankreich	100	< 4	10	deionisiertes Wasser	schütteln	3 x 16
ASTM-Fest- stoff-Test /2/	USA	350	keine An- gabe	4	deionisiertes Wasser	schütteln	48
TCLP /42/	USA	100	< 9,5	20	1. 1,57 ml Eisessig in 500 ml deion. Wasser und 64,3 ml 1 n NaOH in 1000 ml deion. Wasser pH = 4,93 ± 0,05 2. 5,7ml Eisessig in 1000 ml deion. Wasser, pH = 2,88 ± 0,05 <sup>1)</sup>	schütteln	18
NEN 7341 /24/	Niederlande	5	< 0,125	100	deionisiertes Wasser, das mit HNO <sub>3</sub> auf einen konstanten pH-Wert von 7 bzw. 4 eingestellt wird	rühren bzw. schütteln	2 x 3

Allerdings kann nicht vorhergesagt werden, in welcher Zeit unter realen Bedingungen die ermittelten Konzentrationen ausgelaugt werden. Die Untersuchung des zeitabhängigen Auslaugverhaltens von zementgebunden Baustoffen ist mit Schütteltests nicht möglich. Ursprünglich wurde das Verfahren für Schlämme konzipiert, also nicht für kompakte Stoffe, wie z. B. zementgebundene Baustoffe. Praxisrelevante Auslaugraten können mit diesem Verfahren nicht ermittelt werden, da das Material auf kleine Korngrößen zerkleinert wird. Die Zerkleinerung ist nicht sinnvoll, denn das Aufbrechen der Matrix von zementgebundenen Baustoffen führt zwangsläufig zur Erschließung neuer Reaktionsflächen, an denen zusätzlich Auslaugungsvorgänge stattfinden können. Langzeitprognosen oder Vorhersagen der Auslaugraten unter realen Bedingungen sind nicht möglich.

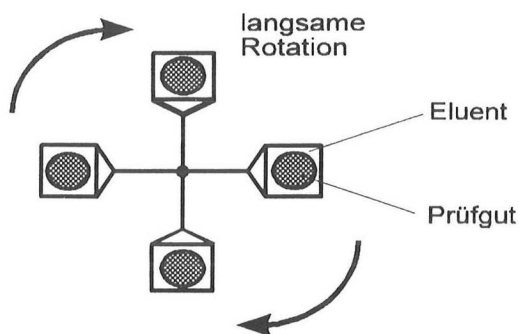


Bild 4: Schütteltest (Schematische Darstellung)

Obwohl diese Schwierigkeiten bekannt sind, wird dieser Test häufig durchgeführt, insbesondere auch auf Veranlassung von Genehmigungsbehörden. Dabei ist wohl die Festschreibung des Verfahrens in einer Norm ausschlaggebend, die zumindest die einheitliche Durchführung sicherstellt.

Alle anderen Schütteltests weisen die gleichen Schwierigkeiten auf, wie sie für das DEV-S4-Verfahren beschrieben wurden.

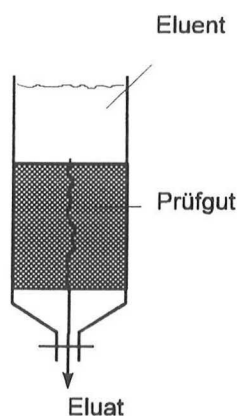
### 3.3.2 Säulentests

Säulentests sind in der Praxis für Stoffe unterschiedlicher Korngröße weit verbreitet. Sie eignen sich für stückiges bis feinkörniges Material, nicht aber für kompakte Festkörper. Säulentests werden häufig zur Überprüfung der Deponierbarkeit oder für den Einsatz eines Stoffes im Straßenbau eingesetzt. Üblicherweise wird das zu untersuchende Material in

Säulen (Länge z. B. 0,5 -1 m; Durchmesser 5-30 cm) eingebracht und dann auf verschiedene Weise mit dem Eluenten in Kontakt gebracht /29/:

- Überregnen/Percolation: die Flüssigkeit fließt von oben nach unten und wird unterhalb der Säule aufgefangen.;
- Inverse Säuleneelution: die Elutionsflüssigkeit wird von unten durch das Material gepumpt und durch eine Überlaufvorrichtung abgeleitet;
- Statische Elution: die Säule wird mit Elutionsflüssigkeit gefüllt, und erst zum Ende der Versuchsdauer wird das Eluat abgelassen und aufgefangen.

Der schematische Aufbau des Säulenverfahrens ist in Bild 5 dargestellt.



**Bild 5:** Säulentest (Schematische Darstellung)

Säulentests sind nur eingeschränkt geeignet, um das Auslaugverhalten zementgebundener Baustoffe zu überprüfen, zumal diese in der Säule aushärten. Säulentests führen für zementgebundene Baustoffe nicht zu praxisrelevanten Ergebnissen. Lediglich zur Untersuchung des Auslaugverhaltens von haufwerkporigen Betonen (z. B. Drainbetonen) kann dieses Verfahren bei zementgebundenen Baustoffen sinnvoll sein.

### 3.3.3 Standtests

Bei den Standtests werden Probekörper so in einen Behälter eingebracht, daß sie von allen Seiten mit dem Eluenten umgeben sind. Die Probekörper sollten so gewählt sein, daß wäh-



rend der Auslaugdauer die Konzentrationen der betrachteten Stoffe im Inneren des Probekörpers als konstant anzusehen sind. Das Verfahren ist in Bild 6 skizziert.

Man unterscheidet verschiedene Arten von Standtests:

- Standtests, in denen der Eluent über die gesamte Auslaugdauer nicht ausgewechselt und nach Ende des Versuches untersucht wird. Dabei können verschiedene Probekörper unterschiedlich lange eluiert werden (z. B. 1 Tag, 7 Tage, 28 Tage usw.) /1, 33/.

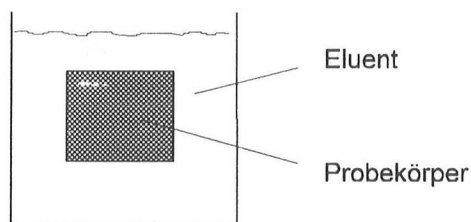


Bild 6: Standtest (Schematische Darstellung)

- Standtests, bei denen der Eluent in festgelegten Zeitabständen komplett ausgewechselt wird /7, 29, 32/. Die Zeitabstände sollten dabei so gewählt werden, daß in den Eluatens jeweils ungefähr gleiche Konzentrationen der einzelnen Elemente nachzuweisen sind. Da bei den Standtests mit zementgebundenen Baustoffen die Konzentration im Eluat durch die Diffusion bestimmt wird, und somit einem  $\sqrt{t}$ -Gesetz gehorcht, empfiehlt es sich, die Zeitintervalle in denen der Eluent ausgetauscht wird nach der Formel  $t_n = n^2 \cdot t_1$  ( $n$  = Auslaugperiode,  $t_1$  = Ende der 1. Auslaugperiode,  $t_n$  = Ende der  $n$ -ten Auslaugperiode) festzulegen /7/.
- Standtests bei denen der Eluent über den Probekörper fließt und im Kreislauf zurückgeführt wird /48/.

Folgende Versuchsparameter können in Standtests variiert werden:

- Oberfläche der Probekörper,
- Verhältnis Volumen des Eluenten zu Volumen des Probekörpers (bzw. Masse des Eluenten zur Masse des Probekörpers (L/S)),
- Art des Eluenten,
- Temperatur (in der Regel Raumtemperatur),
- Zeit bis zum ersten Eluentenwechsels ( $t_1$ ),
- Bewegungsart des Eluenten (rühren/nicht rühren).

Bei Gültigkeit der allgemeinen Diffusionsgesetze können diese Parameter frei gewählt werden, weil man die Ergebnisse entsprechend umrechnen kann. Wie die Parameter die Auslaugrate beeinflussen, ist im einzelnen noch nicht überprüft worden. In einem einheitlichen Auslaugtest, der zu vergleichbaren Ergebnissen führen soll, sollten diese Parameter genau festgelegt werden.

Um die Zeitabhängigkeit der Auslaugung ausreichend zu erfassen, sollten im Rahmen von Grundlagenuntersuchungen Standtests mit mehrmaligem Eluentenaustausch durchgeführt werden. Dies gewährleistet, daß es nicht zu Sättigungen im Eluenten kommt. Die transportierten Stoffmengen können dann nach Gleichung (8) berechnet und der dominierende Auslaugmechanismus, wie in Bild 2 dargestellt, bestimmt werden. Wird Diffusion als dominierender Auslaugmechanismus festgestellt, dann kann über die Berechnung der Freisetzungsraten eine Prognose der ausgelagten Mengen und eine Abschätzung des Langzeitauslaugverhaltens vorgenommen werden. Ist ein sinnvoller und akzeptierter Verfügbarkeitstest gefunden, kann über den Vergleich von effektiven und freien Diffusionskoeffizienten bzw. an der Größenordnung des Diffusionskoeffizienten eine Beurteilung des physikalischen und chemischen Rückhaltevermögens von umweltrelevanten Stoffen in der Zementmatrix vorgenommen werden.

### **3.4 Zusammenfassung**

Für zementgebundene Baustoffe gibt es bislang kein genormtes Verfahren zur Prüfung des Auslaugverhaltens. In Deutschland wird vielfach nach dem DEV-S4-Verfahren vorgegangen, obwohl dieses Verfahren für zementgebundene Baustoffe ungeeignet ist. In der Literatur werden eine Vielzahl von Verfahren beschrieben, die für die unterschiedlichsten Anwendungsbereiche entwickelt wurden. Diese Verfahren führen zu Ergebnissen, die untereinander nicht vergleichbar sind, da es keine einheitliche Regelung der Prüfbedingungen gibt (z. B. verwendeter Eluent, Prüfkörpergröße, Auslaugdauer usw.).

Für Grundlagenversuche (basic tests) im Labor ist eine Kombination verschiedener Auslaugtests sinnvoll, um ausreichende Informationen über das Auslaugverhalten der untersuchten Stoffe zu erhalten. Durch die Kombination der Daten aus den einzelnen Testmethoden können die dominierenden Auslaugmechanismen identifiziert und Rückschlüsse auf das Langzeitauslaugverhalten der zementgebundenen Baustoffe gezogen sowie die dominierenden Mechanismen festgestellt werden. Ein einheitliches Prüfverfahren für

Grundlagenuntersuchungen (basic tests) sollte aus einem System folgender Versuche bestehen:

- Bestimmung des Gesamtgehalts der prüfungsrelevanten Stoffe,
- Bestimmung der Verfügbarkeit (Mobilisierbarkeit),
- praxisorientierte Auslaugtests (Freisetzungsraten unter realen Bedingungen).

Unter praxisorientierten Auslaugtests werden hier z. B. Standtests verstanden. Zur Bestimmung der Verfügbarkeit gibt es bislang kein allgemein anerkanntes, relevantes Prüfverfahren. Die Entwicklung eines solchen Verfahrens für Grundlagenuntersuchungen von Baustoffen ist erforderlich (s. auch Abschn. 2.2.3). Bislang werden zur Bestimmung der Verfügbarkeit häufig Schütteltests (DEV-S4-Verfahren, pH-stat.-Verfahren) durchgeführt. Diese Prüfverfahren sind für zementgebundene Baustoffe nicht geeignet. In diesem Bericht werden die Ergebnisse solcher Auslaugtests lediglich zur Charakterisierung der Probenmaterialien wiedergegeben. Als charakteristischen Wert für die zementgebundenen Stoffe werden im vorliegenden Bericht nicht effektive Diffusionskoeffizienten dokumentiert, sondern Freisetzungsraten. Aus den Freisetzungsraten können Diffusionskoeffizienten ermittelt werden, wenn ein geeigneter Verfügbarkeitstest entwickelt wurde.

Durch die Kombination der Daten aus den einzelnen Testmethoden lassen sich Rückschlüsse auf das Langzeitauslaugverhalten von Baustoffen ziehen.

#### 4 KRITERIEN ZUR ABSCHÄTZUNG DER UMWELTVERTRÄGLICHKEIT

Sollen Aussagen über das mögliche Gefährdungspotential durch die Auslaugung von umweltrelevanten Stoffen aus zementgebundenen Baustoffen getroffen werden, so muß zunächst ein einheitliches Prüfverfahren festgelegt werden, das allgemein akzeptiert und anerkannt ist. In diesem Bericht werden drei Prüfmethoden zum Nachweis von Schwermetallen bzw. Spurenelementen in zementgebundenen Baustoffen eingesetzt:

- i. Bestimmung des Gesamtgehalts der prüfungsrelevanten Stoffe,
- ii. Bestimmung der Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen,
- iii. praxisorientierte Auslaugtests (Freisetzungsraten unter realen Bedingungen; z. B. Standtest).

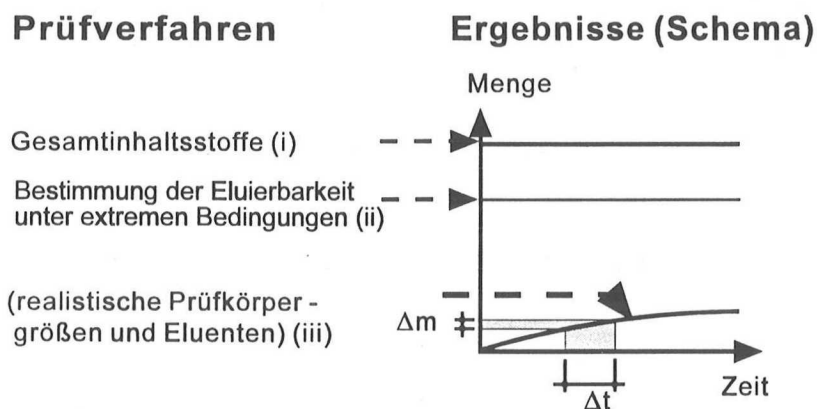
Bei den Prüfverfahren nach i werden die Gesamtmengen an umweltrelevanten Stoffen weitgehend unabhängig von den tatsächlichen Bindungsverhältnissen und ihrer Löslichkeit erfaßt.

Bei dem Verfahren nach ii wird der Anteil des Gesamtgehalts bestimmt, der unter extremen Auslaugbedingungen (niedriger pH-Wert, fein aufgemahlenes Prüfgut) eluierbar ist. Dieser Anteil ist meist sehr viel kleiner als der Gesamtgehalt. Mit diesen Verfahren sind keine Aussagen darüber möglich, in welcher Zeit diese Mengen unter realistischen Bedingungen tatsächlich ausgelaugt werden. Die erhaltenen Ergebnisse stellen lediglich eine Charakterisierung des Probematerials dar. In diesem Bericht werden die Ergebnisse aus solchen Auslaugversuchen unter extremen Prüfbedingungen zur Charakterisierung der Materialien angegeben.

Lediglich mit den Auslaugversuchen nach iii können Ergebnisse erzielt werden, die die zeitabhängige Auslaugung unter praktischen Auslaugbedingungen beschreiben. Hier können das chemische und physikalische Rückhaltevermögen der Matrix sowie praxisnahe Prüfkörper und Eluenten berücksichtigt werden. Aus den Prüfergebnissen lassen sich der dominierende Auslaugmechanismus und Auslaugraten bestimmen. Da bislang ein geeigneter Verfügbarkeittest nicht zur Verfügung steht, können die effektiven Diffusionskoeffizienten nicht errechnet werden. Daher werden in diesem Bericht die Emissionen  $E_{1a}$  nach Gleichung (9) berechnet. Durch Vergleich der  $E_{1a}$  für die

verschiedenen zementgebundenen Materialien können die Stoffe untereinander verglichen werden.

In Bild 7 werden die in den verschiedenen Verfahren gewonnenen Ergebnisse schematisch dargestellt.



**Bild 7:** Prüfverfahren zur Beurteilung der Umweltverträglichkeit zementgebundener Baustoffe bzgl. der Auslaugung von Schwermetallen bzw. anderer umweltrelevanter Stoffe

In diesem Bericht wird keine Bewertung der Ergebnisse anhand von Grenzwerten vorgenommen, da für Baustoffe bislang keinerlei Grenzwerte gesetzlich vorgeschrieben sind. Den in diesem Bericht angegebenen Schwermetall- bzw. Spurenelementgehalten der untersuchten Materialien können die Gesamtgehalte dieser Elemente in natürlichen Böden und Gesteinen (Anhang: Tabellen A2 und A3) vergleichend gegenübergestellt werden, um eine Einordnung der Meßergebnisse zu ermöglichen.

## 5 UNTERSUCHUNGEN

### 5.1 Allgemeines

Im Rahmen dieses Projektes wurden Grundlagenuntersuchungen ("basic tests") durchgeführt, um das Auslaugverhalten von Schwermetallen aus zementgebundenen Baustoffen mit und ohne Einsatz von industriellen Nebenprodukten zu beurteilen. Anhand der Ergebnisse sollte neben den prüftechnischen vor allem der Einfluß mörtel- bzw. betontechnischer Parameter auf die Auslaugraten geklärt werden. Um ausreichende Informationen über das Auslaugverhalten zu erhalten, wurden folgende Verfahren zur Untersuchung gewählt (vgl. Abschn. 4):

- die Bestimmung des Gesamtgehalts an Spurenelementen sowie die Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen zur Charakterisierung der Probe,
- die Bestimmung der Auslaugraten unter praxisrelevanten Bedingungen.

Die durchgeführten Untersuchungen hatten zum Ziel, den Einfluß mörtel- bzw. betontechnischer Parameter auf die Auslaugraten zu bestimmen. Tabelle 2 gibt eine Übersicht über alle Mischungsvarianten, die in das Untersuchungsprogramm einbezogen worden sind. Dieser Tabelle sind die im weiteren Text und in den Tabellen verwendeten Probenbezeichnungen zu entnehmen. Gleichzeitig gibt sie auch einen Überblick über die verschiedenen Einflußgrößen, die im Rahmen die in den Versuchen variiert wurden. Dies waren die folgenden Parameter:

- Art des Bindemittels,
- Art des Zusatzstoffs bzw. Zuschlags,
- Wasserzementwert (Wasserbindemittelwert),
- Alter der Proben,
- Karbonatisierung.

Die durchgeführten Versuche sollten zu in der Praxis verwertbaren Ergebnissen führen. Daher wurden die Ausgangsmaterialien und die hergestellten Proben nach praxisorientierten Gesichtspunkten ausgewählt. Die Auswahl der Ausgangsstoffe und die Herstellung der Proben wird im folgenden beschrieben.

Tabelle 2: Im Rahmen des Forschungsvorhabens untersuchte Proben; Überblick über die Probenart und -bezeichnungen sowie die studierten Einflußgrößen

Mischung	Probenart	Zementart	Zusatzstoff/ Zuschlag	w/(z+0,5f)- Wert	Parameter	
1	2	3	4	5	6	
Z0	Zementstein	Portland- zement	-	0,50	Parameter- studie (s. Anhang C)	
Z1			SFA 1			
Z2			SFA 2			
M0.1	Mörtel		-	0,40	w/z-Wert, Probenalter	
M0				0,50		
M0.2				0,60		
M1.1			SFA 1	0,40	w/(z + 0,5 f)- Wert, Probenalter, Zusatzstoff	
M1				0,50		
M1.2				0,60		
M2			SFA 2	0,50	Bindemittel, Zusatzstoff	
M3		-				
M4		SFA 1				
M5	SFA 2	Hochofen- zement	-	0,50	Bindemittel, Zusatzstoff, Zuschlag	
B0	Portland- zement					-
B1						SFA 1
B2						SFA 2
B3						MHS
B4	Hochofen- zement	-				

SFA: Steinkohlenflugasche  
MHS: Metallhüttenschlacke



## **5.2 Ausgangsstoffe**

### **5.2.1 Zemente**

In Vorversuchen wurden verschiedene Portlandzemente nach DIN 1164 ausgewählt. Dabei wurden die Zemente herangezogen, aus deren Klinker auch Hochofenzemente hergestellt werden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Tabelle A1 zusammengefaßt. Aufgrund dieser Untersuchungen wurde ein Portlandzement CEM I 32,5 ausgewählt, dessen Schwermetallgehalt im mittleren Bereich der analysierten Proben lag. Als Hochofenzement wurde ein CEM III/A 32,5 mit gleichem Klinker wie der Portlandzement in das Versuchsprogramm aufgenommen.

### **5.2.2 Zusatzstoffe**

Verschiedene Steinkohlenflugaschen mit Zulassung des Deutschen Institut für Bautechnik wurden auf ihre Schwermetallgehalte hin untersucht. Dabei wurden Proben verwendet, die im Institut für Bauforschung vorhanden waren. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Tabelle A1 zusammengestellt. Aufgrund der Untersuchungsergebnisse wurden zwei Steinkohlenflugaschen, SFA1 mit relativ hohem und SFA2 mit mittlerem Schwermetallgehalt im Rahmen der ermittelten Spannbreiten, für das Versuchsprogramm ausgewählt. Schwerpunktmäßig wurden die Versuche mit der Steinkohlenflugasche SFA1 durchgeführt, um den ungünstigeren Fall zu untersuchen.

### **5.2.3 Zuschläge**

Für die Herstellung sämtlicher Mörtel wurde Normsand nach EN 196 T1 verwendet.

Als Betonzuschlag wurden Rheinkies bzw. -sand aus Beständen des Instituts in den Korngruppen 0/0,25, 0,25/1, 1/2, 2/4, 4/8 und 8/16 mm verwendet. Die Kornzusammensetzung des Zuschlag entsprach für alle Betone der Sieblinie A/B 16.

Für die Betonmischung B4 wurde ca. 50 Vol.-% des Zuschlags durch Metallhüttenschlacke ausgetauscht. Die Sieblinie entsprach der Sieblinie A/B 16.



### 5.2.4 Herstellung der Zementsteine

Aus den ausgewählten Zementen und SFA wurden Zementsteine hergestellt. Dabei wurde eine Mischung ohne und zwei Mischungen mit Zusatz von Steinkohlenflugasche hergestellt. Der Gehalt an Steinkohlenflugasche betrug jeweils 20 M.-% des Zementgehalts. Tabelle 3 zeigt die Zusammensetzung der verschiedenen Mischungen. Die Zementsteine wurden in der Parameterstudie untersucht. In der Parameterstudie sollten die Versuchsbedingungen für die Charakterisierung der Materialien festgelegt werden.

### 5.2.5 Herstellung der Mörtel

Es wurden Mörtelmischungen ohne und mit Zusatz von Steinkohlenflugasche, nach EN 196 T1 hergestellt. Dabei erfolgte bei den Mischungen mit Zusatz von SFA ein praxisüblicher massebezogener Austausch von Zement gegen SFA. Der Gehalt an SFA betrug jeweils 20 % des Zementgehalts. Dies entsprach einem f/z-Wert von 0,25. Der gesamte SFA-Gehalt wurde mit einem Anrechenbarkeitswert von  $k = 0,5$  auf den Wasserzementwert angerechnet. Der Zuschlaggehalt (1350 g Normsand) blieb konstant. Die Wassermenge wurde zur Variation  $w/(z+0,5f)$ -Wertes verändert. Tabelle 3 gibt eine Übersicht über die hergestellten Mörtel.

**Tabelle 3:** Zusammensetzung der im Labor hergestellten Zementsteine und Mörtel

Probe	Z0	Z1	Z2	M0.1	M0	M0.2
Vorschrift	EN 196 T1					
Bestandteil	Einwaage in g					
1	2	3	4	5	6	7
CEM I 32,5 R	450	400	400	450	450	450
CEM III/A 32,5	-	-	-	-	-	-
SFA1	-	100	-	-	-	-
SFA2	-	-	100	-	-	-
Normzuschlag	-	-	-	1350	1350	1350
Wasser	225	225	225	180	225	270
$w/(z+0,5f)$ -Wert <sup>1)</sup>	0,50	0,50	0,50	0,40	0,50	0,60

1)  $k = 0,5$ ;  $k$  = Wirksamkeitswert zur Anrechnung der SFA auf den  $w/z$ -Wert

Tabelle 3: Fortsetzung

Probe	M1.1	M1	M1.2	M2	M3	M4	M5
Vorschrift	EN 196 T1						
Bestandteil	Einwaage in g						
1	2	3	4	5	6	7	8
CEM I 32,5 R	400	400	400	400	-	-	-
CEM III/A 32,5	-	-	-	-	450	400	400
SFA 1	100	100	100	-	-	100	-
SFA 2	-	-	-	100	-	-	100
Normzuschlag	1350	1350	1350	1350	1350	1350	1350
Wasser	180	225	270	270	225	225	225
w/(z+0,5f)-Wert <sup>1)</sup>	0,40	0,50	0,60	0,50	0,50	0,50	0,50

1)  $k = 0,5$ ;  $k$  = Wirksamkeitswert zur Anrechnung der SFA auf den w/z-Wert

### 5.2.6 Herstellung der Betone

Die Betonrezepturen wurden nach dem gleichen, bereits in Abschnitt 5.2.5 erläuterten Prinzip des Austausches von SFA gegen Zement gewählt. Der gesamte Flugaschegehalt wurde mit einem Anrechenbarkeitswert von  $k = 0,5$  auf den Wasserzementwert angerechnet. Tabelle 4 gibt eine Übersicht über die hergestellten Betone.

Tabelle 4: Zusammensetzung der im Labor hergestellten Betone

Probe	B 0	B 1	B 2	B3	B4
Bestandteil	kg/m <sup>3</sup>				
1	2	3	4	6	5
CEM I 32,5 R	360	320	320	360	-
CEM III/A 32,5	-	-	-	-	360
SFA 1	-	80	-	-	-
SFA 2	-	-	80	-	-
Zuschlag (Sieblinie A/B 16)	1817	1777	1771	796	1807
MHS	-	-	-	1106	-
Wasser	180	180	180	180	180
(w/z+0,5f)-Wert <sup>1)</sup>	0,50	0,50	0,50	0,50	0,50

1)  $k = 0,5$ ;  $k$  = Wirksamkeitswert zur Anrechnung der SFA auf den w/z-Wert

### 5.2.7 Herstellung der Probekörper

Aus den Mörtelmischungen (Zusammensetzung s. Tabelle 3) wurden Mörtelprismen mit den Abmessungen  $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$  nach DIN EN 196 T1 hergestellt. Die Mörtelprismen wurden nach 1 d Wasserlagerung ausgeschalt und lagerten abweichend von der oben genannten Norm bis zu den Untersuchungen im Klima  $20 \text{ °C}/95 \text{ \% rel. Feuchte}$ .

Zur Untersuchung der Betone wurde aus den Betonmischungen (s. Tabelle 4) Betonwürfel mit den Abmessungen  $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$  hergestellt, die nach dem Ausschalen zunächst 7 Tage im Klima  $20 \text{ °C}/95 \text{ \% rel. Feuchte}$  und anschließend bis zu den Untersuchungen im Klima  $20 \text{ °C}/65 \text{ \% rel. Feuchte}$  lagerten.

## 5.3 Charakterisierung der Proben

### 5.3.1 Schwermetallgehalte

Zur Charakterisierung der Ausgangsmaterialien sowie der hergestellten Mörtel und Betone wurde an allen Materialien (vgl. Tabelle 2) der Gesamtgehalt an Schwermetallen bestimmt. Hierzu wurde das Material auf eine Korngröße kleiner  $125 \text{ }\mu\text{m}$  aufgemahlen und mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse untersucht. Zur Bestimmung des Chrom-, Cadmium- und Thalliumgehaltes wurde das Material komplett in Lösung gebracht (Totalaufschluß) und mit Hilfe der ICP-AES (Atomemissionsspektroskopie mit induktiv gekoppeltem Plasma) die Gehalte der einzelnen Elemente bestimmt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Tabelle A4 dargestellt. Die in den Tabellen A2 und A3 angegebenen Schwermetallgehalte können als Vergleichsmaßstab zur Einordnung der Schwermetallgehalte in zementgebundenen Stoffen herangezogen werden. Im Vergleich zu den Gehalten in Ton, Kalkstein und Böden weisen die im Rahmen dieses Projektes untersuchten Mörtel und Betone kaum erhöhte Gehalte an Schwermetallen auf. Deutlich meßbare Werte erhält man lediglich bei Chrom, Zink, Blei sowie Barium. Die Cadmium-, Quecksilber- und Thalliumwerte sind in allen Mörtel- und Betonproben nahe an oder unterhalb der Bestimmungsgrenze. Etwas anders sind die Schwermetallgehalte des Betons mit Metallhüttenschlacke als Zuschlag. Die Metallhüttenschlacke weist sehr hohe Gehalt von Kupfer und Zink auf, so daß auch im Beton B3 (Zusammensetzung s. Tabelle 4) hohe Gehalte an Kupfer und Zink auftreten. Die Metallhüttenschlacke enthält ungefähr gleich viel Chrom wie die Steinkohlenflugaschen. Durch den hohen Gehalt des Betons B3 an Metallhüttenschlacke erhöht sich auch der

Chromgehalt in Beton B3. Der Beton B3 ist in diesem Forschungsvorhaben der Beton mit den höchsten Schwermetallgehalten.

### **5.3.2 Bestimmung der Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen**

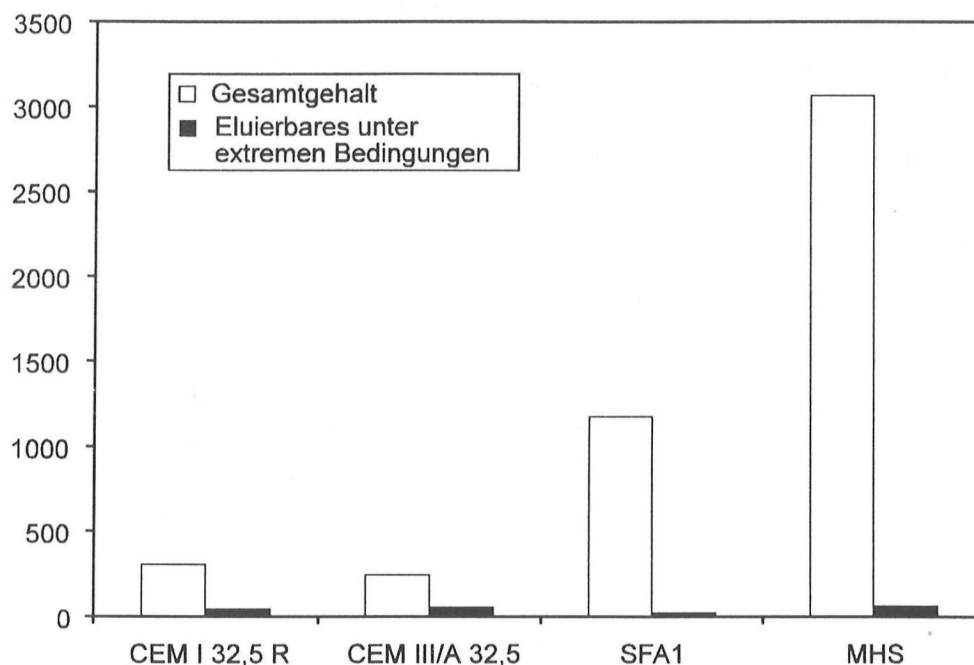
Zur weiteren Charakterisierung der Materialien wurde an allen Proben die Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen (vgl. Abschn. 4) untersucht. Die Untersuchungen wurden nach einem Laborverfahren in Anlehnung an die niederländische Norm NEN 7341 /23/ durchgeführt. Dabei wird das zu untersuchende Material mit dem Eluenten im Verhältnis 1 : 100 versetzt und während der Versuchsdauer gerührt. Der pH-Wert wird während der Elution auf einen konstanten Wert eingestellt (pH-stat.-Verfahren) Um die optimalen Prüfbedingungen (Auslaugdauer, pH-Wert, Korngröße des Materials) festzulegen wurde zunächst eine Parameterstudie durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Parameterstudie sind im Anhang C zusammengefaßt.

Aufgrund der Ergebnisse aus der Parameterstudie wurde für die Untersuchungen der Eluierbarkeit unter extremen Bedingungen Teilproben der Materialien auf eine Korngröße < 125 µm aufgemahlen und bei einem pH-Wert von pH = 4 wie oben beschrieben eluiert. Der pH-Wert von 4 wurde gewählt, weil ein solcher pH-Wert in Böden und in Regenwasser vorkommen kann; niedrigere pH-Werte sind in der Praxis kaum relevant. Der pH-Wert wurde während der gesamten Dauer der Elution konstant gehalten. Die Auslaugdauer betrug jeweils eine Stunde. In den gewonnenen Eluaten wurden die Schwermetallgehalte mittels der Atomabsorptionsspektroskopie (AAS) bzw. der ICP-AES (ICP-AES) bestimmt. Alle Probematerialien wurden mit Hilfe dieses Verfahrens charakterisiert. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in der Tabelle A4 für die Zemente und Flugaschen sowie für die Metallhüttenschlacke und in den Tabellen A6 bis A9 für die Mörtel und Betone zusammengestellt.

Ein Vergleich des unter extremen Bedingungen Eluierbaren mit den jeweiligen Gesamtgehalten der Proben zeigt, daß von den in den Proben vorhandenen Schwermetallgehalten lediglich ein gewisser Anteil mobilisiert wird, trotz der großen Oberfläche, die bei diesem Verfahren für die Auslaugungsvorgänge zur Verfügung steht. Bei den Ausgangsstoffen (Zemente und Flugaschen sowie Metallhüttenschlacke) sind die Mengen, die unter diesen extremen Bedingungen mobilisiert werden können, noch relativ hoch (s. Tabelle A4). In Bild 8 sind die Ergebnisse für die beiden Zemente, für die Steinkohlenflugasche SFA1 und

für die Metallhüttenschlacke am Beispiel des Zinks graphisch dargestellt. Die eluierten Mengen sind für das Zink bei allen Proben in der gleichen Größenordnung, auch wenn die Zinkgehalte wie bei der Steinkohlenflugasche und der Metallhüttenschlacke sehr hoch sind. Die Ergebnisse zeigen deutlich, daß die unter extremen Bedingungen eluierbaren Mengen nicht vom Gesamtgehalt der Proben abhängen, sondern vielmehr davon, in welcher Weise die Schwermetalle im Stoff gebunden sind.

Zinkmenge in mg/kg



**Bild 8:** Unter extremen Bedingungen eluierbare Mengen an Zink im Vergleich zum Gesamtgehalt an Zink; Ausgangsstoffe

Betrachtet man die Mörtel und Betone, so stellt man fest, daß lediglich von den Schwermetallen Chrom, Zink, Kobalt und Barium deutlich nachweisbare Mengen eluiert werden (über 5 mg/kg). Die eluierten Mengen der anderen Schwermetalle liegen nahe an bzw. unter der Bestimmungsgrenze. An diesen Ergebnissen erkennt man bereits, daß die Schwermetalle in der Matrix des Zementsteins sehr fest eingebunden werden, wie unter Abschnitt 2.2.4 beschrieben wurde. Es ist zu erwarten, daß bei diesen Proben die Auslaugraten/Emissionen unter praxisrelevanten Bedingungen sehr gering sein werden. Etwas anders sind die Verhältnisse bei dem Beton mit der Metallhüttenschlacke. Die Metallhüttenschlacke weist sehr hohe Gehalte an Zink und Kupfer auf. Im Beton ist durch die große Menge an Zuschlag die Gesamtmenge an Kupfer und Zink im Vergleich zu den anderen Betonen recht hoch. Daher

wurden hier im Vergleich zu den anderen Proben relativ hohe Mengen an Kupfer und Zink eluiert.

An einigen Proben (Ausgangsstoffe und Mörtel) wurde zum Vergleich auch das DEV-S4-Verfahren durchgeführt. Die Ergebnisse sind den Tabellen A4, A6 und A8 zu entnehmen. Generell sind die im DEV-S4-Verfahren ausgelaugten Mengen an Schwermetallen sehr viel niedriger als die ausgelaugten Mengen unter extremen Bedingungen.

Die dargestellten Ergebnisse zeigen, wie unterschiedlich die Ergebnisse aus den verschiedenen Verfahren sein können. Daher ist es sehr wichtig, vor Durchführung oder Festschreibung eines Auslaugverfahrens festzustellen, wofür die Ergebnisse eines Verfahrens verwendet werden sollen. Entsprechend sind die Prüfbedingungen genau festzulegen.

## **5.4 Praxisorientierte Untersuchungen**

### **5.4.1 Allgemeines**

Die Ergebnisse der Verfahren, die in Abschnitt 5.3 beschrieben wurden, dienen hauptsächlich zur Charakterisierung der untersuchten Materialien. Um das Auslaugverhalten von zementgebundenen Stoffe zu untersuchen und zu beurteilen, müssen praxisnahe Auslaugversuche durchgeführt werden.

Im Rahmen dieses Projektes wurden als praxisnahe Labortests sogenannte Standtests (vgl. Abschnitt 2.2.3) durchgeführt. Wie bereits in Abschnitt 3.3.3 beschrieben wurde, sollten folgende Randgrößen in den Standtests vor Durchführung festgelegt werden, um zu vergleichbaren Ergebnissen in den einzelnen Untersuchungen zu kommen:

- Oberfläche der Probekörper,
- Verhältnis Volumen des Eluenten zu Volumen des Probekörpers (bzw. Masse des Eluenten zur Masse des Probekörpers (L/S)),
- Art des Eluenten,
- Temperatur,
- Zeit des ersten Eluentenwechsels ( $t_1$ ),
- Bewegungsart des Eluenten (rühren/nicht rühren).



Zur Festlegung der oben genannten Parameter für die Standtests wurden die folgenden Überlegungen angestellt:

Die Prüfkörpergröße sollte möglichst so gewählt werden, daß das Verhältnis von Oberflächen des Prüfkörpers zu Volumen des Eluenten (Auslaugflüssigkeit) nicht zu gering ist, da sonst der "wash-off"-Effekt, der zu Anfang eines Standtest in der Regel auftritt, einen zu großen Einfluß gegenüber der eigentlichen Diffusion hat. Die Salz-/Schwermetallmengen, die am Anfang des Tests ausgewaschen werden, sind dann sehr hoch, wodurch die Diffusion in den Eluenten behindert wird. Die Analysenergebnisse der ersten Eluate können dann unter Umständen nicht zur Diffusionsberechnung herangezogen werden. Im Rahmen dieses Projektes sollten möglichst im Labor vorhandene Prüfkörperformen und Behälter benutzt werden können. Aufgrund der Versuchsergebnisse aus /29/ und Tastversuchen im Rahmen dieses Projektes wurden für die Mörteluntersuchungen Mörtelprismen mit den Abmessungen  $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$  und für die Betonuntersuchungen Betonwürfel mit den Abmessungen  $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$  gewählt. Als Behälter, in denen die Standtests durchgeführt wurden, wurden Polyethylendosen und -flaschen verwendet.

Wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben wurde, kann die Dauer der Perioden zwischen den Eluentenwechseln nach der Formel  $t_n = n^2 \cdot t_1$  ( $n$  = Auslaugperiode,  $t_1$  = Ende der 1. Auslaugperiode,  $t_n$  = Ende der  $n$ -ten Auslaugperiode) bestimmt werden. Grundsätzlich hat  $t_1$  keinen oder nur geringen Einfluß auf die Auslaugrate.  $t_1$  sollte aber aus analysetechnischen Gründen möglichst so gewählt werden, daß die Konzentrationen der zu bestimmenden Elemente ausreichend groß ist.

Um möglichst wenig störende Einflüsse und einen gut reproduzierbaren Eluenten zu haben, in dem alle Elemente grundsätzlich nachzuweisen sind, wurde als Eluent entionisiertes Wasser (super rein) gewählt.

Um den Versuchsaufbau möglichst einfach zu halten, wurden die Versuche bei Raumtemperatur durchgeführt. Der Eluent wurde während der Versuchsdauer nicht gerührt.

Es ergeben sich aus dem geschilderten Überlegungen folgende konstanten Versuchsparameter für die durchgeführten Standtests:

- Prüfkörper: Mörtelprismen ( $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ ) und Betonwürfel ( $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$ ),
- Verhältnis Volumen des Eluenten zu Volumen des Probekörpers 5 : 1,
- Eluent: entionisiertes Wasser,
- Versuchstemperatur: Raumtemperatur,
- Eluentenaustausch nach: 6, 24, 54, 96, 150, 384, 864, 1344 h,
- Bewegungsart: nicht rühren.

Dabei wurden die Zeiten, zu denen der Eluent ausgetauscht werden mußte, jeweils den Arbeitszeiten im Labor angepaßt.

In den praxisorientierten Tests sollte vor allem der Einfluß der mörtel- bzw. betontechnischen Parameter auf die Auslaugraten bestimmt werden. Dies sind vornehmlich die Einflüsse der folgenden Größen:

- Art des Bindemittels,
- Art des Zusatzstoffs bzw. Zuschlags,
- Wassercementwert ( $w/(z+0,5f)$ -Wert),
- Alter der Proben,
- Karbonatisierung.

Da die eluierten Mengen selbst unter extremen Bedingungen (scharfer Eluent, fein aufgemahlene Material) für die Mörtel- und Betonproben zum großen Teil nahe an den Bestimmungsgrenzen lagen und aufgrund der Versuchsergebnisse aus /29/, wurde in den Standtests lediglich das Auslaugverhalten der Schwermetalle Chrom, Kupfer, Zink, Blei und Arsen untersucht. Darüber hinaus erschien es wenig sinnvoll, andere Schwermetalle zu untersuchen, da erfahrungsgemäß die in den Standtests eluierten Mengen weit unter den eluierten Mengen unter extremen Bedingungen liegen. Neben den Schwermetallgehalten wurden in den Standtest auch das Auslaugverhalten des Elements Natrium untersucht. Natrium gehört zu leicht nachzuweisenden Elementen. Liegen die Schwermetallgehalte in den Eluat unter der Bestimmungsgrenze, so kann man anhand der Natriumgehalte zumindest feststellen, ob Diffusion als Auslaugmechanismus vorliegt. Durch Vergleich des effektiven Diffusionskoeffizienten von Natrium mit dem freien Diffusionskoeffizienten läßt sich auch die Größe des physikalischen Einschlusses beurteilen (vgl. Abschn. 2.2.2).

Aus den Ergebnissen der Standtests sollen die durch Diffusion verursachten Emissionen der einzelnen Schwermetalle nach Gleichung (9) berechnet werden. Dies ist nur dann möglich,



wenn sich in dem lgJ-igt-Diagramm (vergl. Abschnitt 2.2.2) eine Gerade mit der Steigung  $m = -0,5 (\pm 0,05)$  ergibt. Ist dies nicht der Fall, kann man lassen sich die  $E_{1a}$ -Werte nicht ermitteln, da diese dann mit den unter Diffusionsbedingungen ermittelten Werten nicht vergleichbar sind.

#### 5.4.2 Einfluß des Bindemittels und der Zusatzstoff-/Zuschlagart auf die Auslaugraten

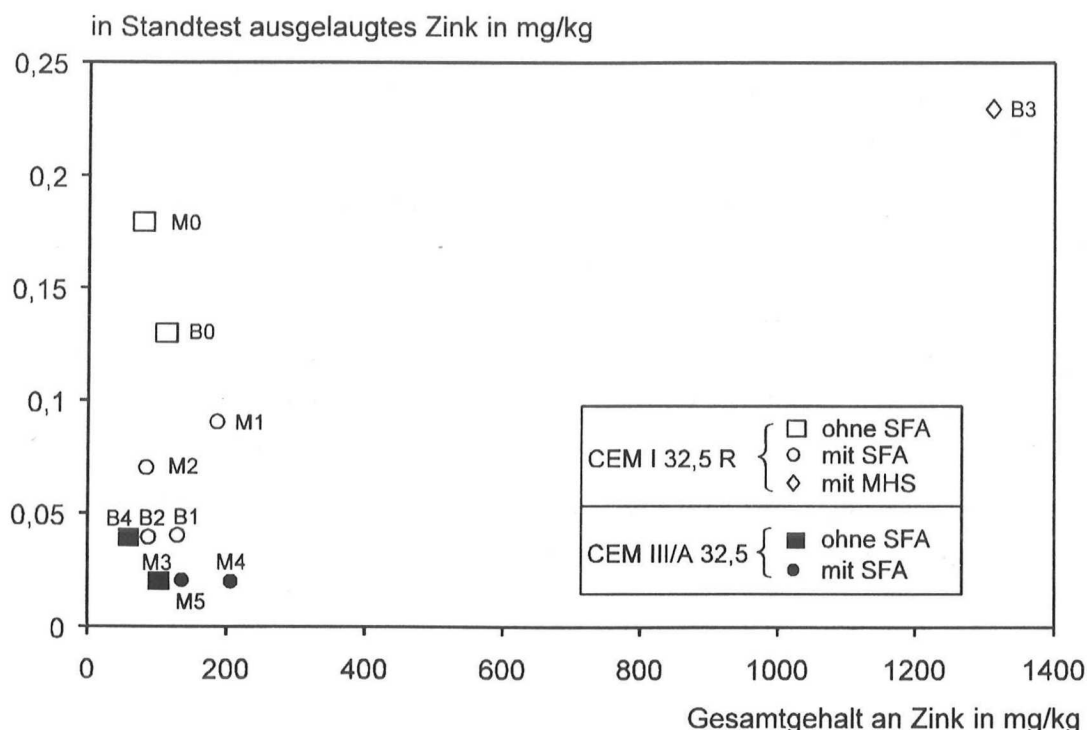
Um den Einfluß des Bindemittels sowie des Zusatzstoffes bzw. Zuschlags auf die Auslaugraten zu untersuchen, wurden Mörtel- und Betonprobekörper der Mörtel-/Betonmischungen M0, M1, M2, M3, M4, M5, B0, B1, B2, B3 und B4 (Zusammensetzung s. Tabelle 3 und 4) untersucht. Der Wasserzementwert ( $w/(z+0,5f)$ -Wert) betrug bei allen Mischungen 0,50. Die Randgrößen in den Standtests wurden wie in Abschnitt 5.4.1 beschrieben festgelegt.

**Tabelle 5:** In Standtests mit Mörtelprismen ausgelaugte Schwermetallmengen in Abhängigkeit von der Zementart und dem Zusatzstoff<sup>1)</sup>

Probe		Zementart	Zusatzstoff/ Zuschlag	$w/(z+0,5f)$	eluierte Menge				
					Chrom	Zink	Kupfer	Blei	Arsen
					mg/kg				
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Mörtel	M0	CEM I 32,5 R	-	0,50	0,09	0,18	< 0,02	0,01	< 0,01
	M1		SFA1		0,15	0,09	< 0,02	0,03	< 0,01
	M2		SFA2		0,02	0,07	0,02	< 0,01	< 0,01
	M3	CEM III/A 32,5	-		0,08	0,02	< 0,02	0,03	< 0,01
	M4		SFA1		0,09	0,02	< 0,02	< 0,02	0,02
	M5		SFA2		0,10	0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02
Beton	B0	CEM I 32,5 R	-	0,02	0,13	0,02	< 0,03	< 0,01	
	B1		SFA1	0,09	0,04	0,02	< 0,02	0,02	
	B2		SFA2	0,04	0,04	0,02	< 0,02	0,02	
	B3		MHS	0,39	0,23	0,03	< 0,02	< 0,01	
	B4	CEM III/A 32,5	-	0,05	0,04	< 0,02	< 0,02	0,03	

1) eluierte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch

Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in der Tabelle 5 zusammengestellt. In Bild 9 wurden die Ergebnisse aus Tabelle 5 am Beispiel des Zinks grafisch ausgewertet. Dazu wurden die ausgelaugten Mengen an Zink für die verschiedenen Proben in Abhängigkeit vom Gesamtgehalt dargestellt.



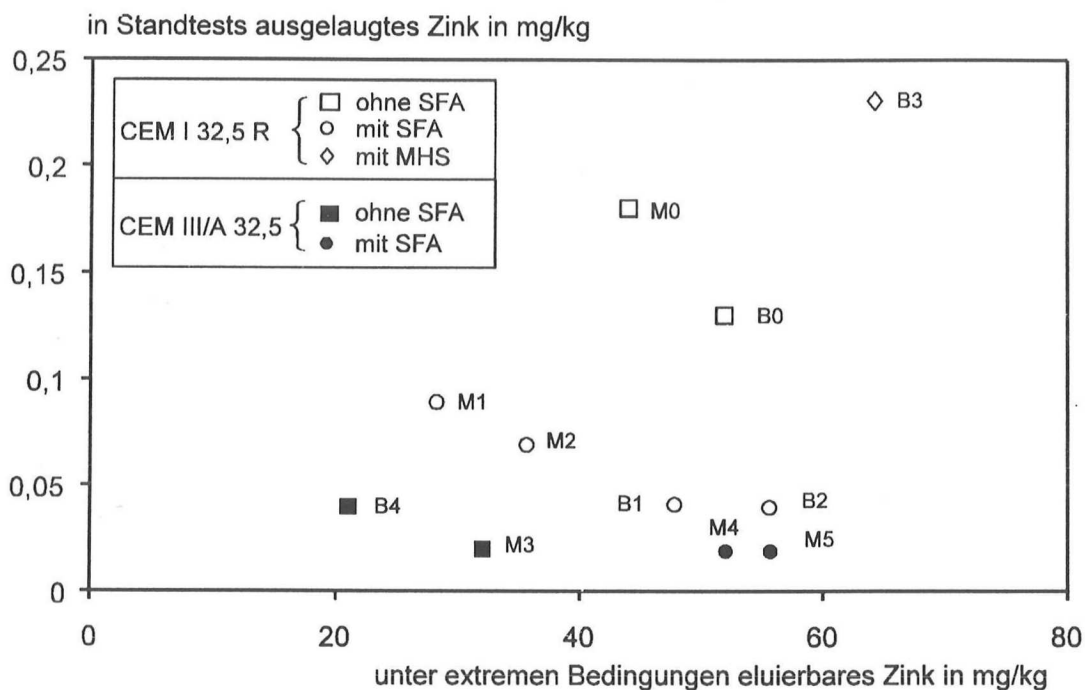
**Bild 9:** In Standtests ausgelaugte Mengen an Zink in Abhängigkeit vom Gesamtgehalt an Zink; Einfluß der Bindemittel und Zusatzstoff-/Zuschlagart

Bild 9 ist zu entnehmen, daß die ausgelaugten Zinkmengen nicht vom Gesamtgehalt an Zink abhängig sind. Die ausgelaugten Zinkmengen sind bei den Mischungen ohne Zusatz von Steinkohlenflugaschen oder Hüttensand größer als bei den Mischungen mit SFA und HÜS. Das heißt, sowohl der HÜS als auch die SFA wirken sich positiv hinsichtlich der Auslaugung aus, auch wenn die Gesamtgehalte höher sind.

Die Ergebnisse aus Bild 9 und Tabelle 5 zeigen, daß die ausgelaugten Schwermetallmengen nicht von dem Schwermetallgehalt des eingesetzten Zusatzstoff/Zuschlag abhängig sind, auch wenn die Gehalte relativ hoch sind. Der Einsatz von Steinkohlenflugasche macht sich positiv bemerkbar, da dadurch die Mengen an ausgelaugtem Chrom und Zink herabgesetzt werden. Für Blei und Kupfer liegen die ermittelten Werte in der Regel nahe an oder unter der Nachweisgrenze. Diese Elemente werden sehr stark in die Zementsteinmatrix einge-

bunden und stehen für die Diffusion nicht zur Verfügung (Bildung von schwer löslichen Salzen). Beim Einsatz von Metallhüttenschlacke mit relativ hohen Gehalten an Kupfer, Zink und Blei sind die in den Standtests ausgelaugten Mengen an Chrom und Zink deutlich höher als bei den anderen Betonen, aber absolut immer noch gering (vor allem im Verhältnis zu den hohen Gesamtgehalten).

In Bild 10 wurden die im Standtest ausgelaugten Mengen an Zink in Abhängigkeit von der unter extremen Bedingungen eluierbaren Menge aufgetragen. Das Bild zeigt keine Abhängigkeit der im Standtest ausgelaugten Mengen vom "löslichen" Anteil in der Proben.



**Bild 10:** In Standtests ausgelaugte Mengen an Zink in Abhängigkeit vom Eluierbaren unter extremen Bedingungen; Einfluß der Bindemittel und Zusatzstoff-/Zuschlagart

Eine graphische Auswertung der Ergebnisse aus den Standtests, in der auch der zeitliche Verlauf der Auslaugung zu erkennen ist, wurde für den Zementmörtel M0 sowie für den Zementmörtel M1 in Bild 11 am Beispiel des Zinks vorgenommen. Weitere graphische Auswertungen finden sich im Anhang B in den Bildern B1 - B19. Bei den Elementen, deren Konzentrationen in den Eluat unterhalb der Nachweisgrenzen lagen, war eine graphische Auswertung in der dargestellten Form nicht möglich. Eine Auswertung der ausgelaugten Mengen im Vergleich zum Gesamtgehalt und den eluierten Mengen unter extremen

Bedingungen zeigen die Tabellen A6 bis A9 im Anhang A. In Bild 13 sind die Ergebnisse den Tabellen A6-A9 am Beispiel des Zinks für verschiedene Mörtelmischungen dargestellt. Dieses Bild zeigt noch einmal, daß weniger der Gesamtgehalt an Schwermetallen (hier Zink) entscheidend für die Auslaugung ist, sondern vielmehr wie die Schwermetalle in die Mörtrematrix eingebunden werden (physikalische und chemische Einbindung).

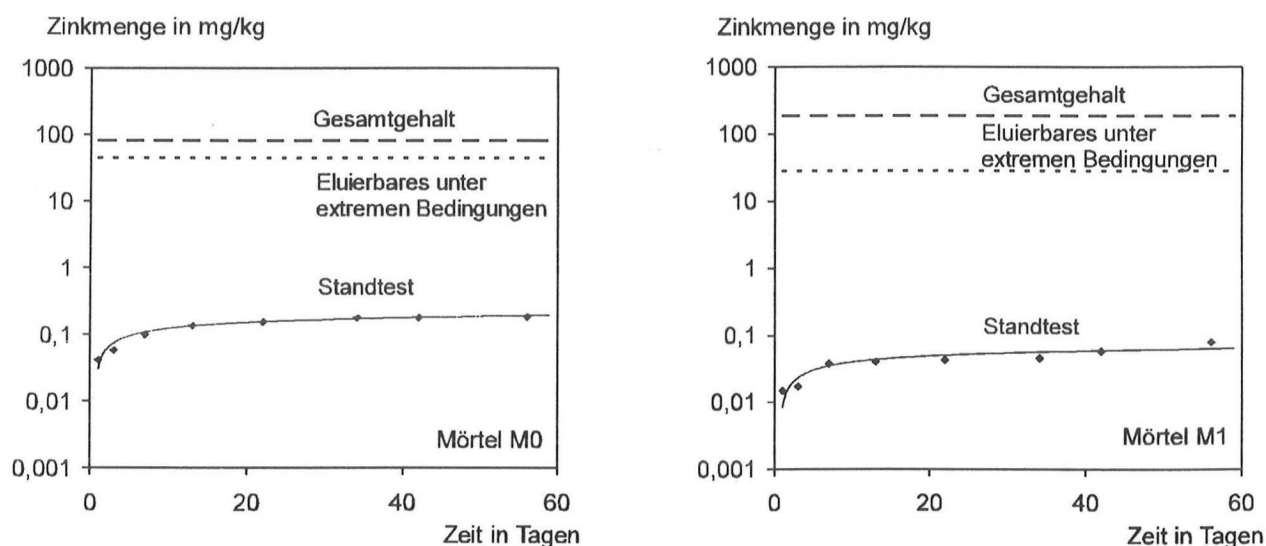
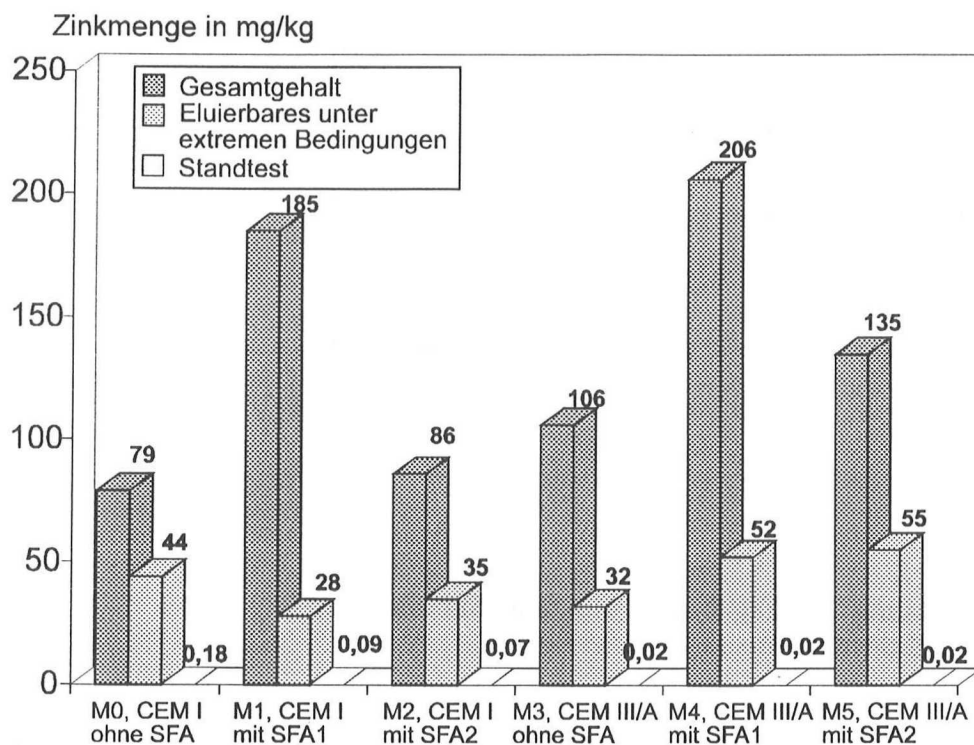


Bild 12: Untersuchungsergebnisse aus den Standtests mit Mörtelprüfkörpern; ausgelaugte Zinkmengen; M0 (ohne Zusatz von SFA) und M1 (mit Zusatz von SFA1)

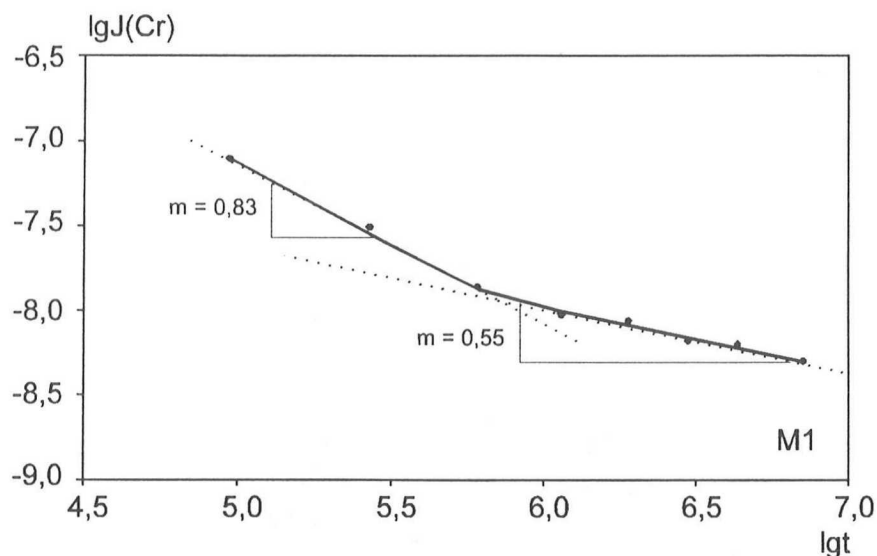
Aus den dargestellten Ergebnissen wird noch einmal deutlich, daß von den Gesamtinhaltsstoffen nur ein gewisser Anteil für die Auslaugung zur Verfügung steht. Dieser Anteil ist unter "scharfen" Bedingungen (niedriger pH-Wert) noch relativ hoch, während in den Standtests erheblich geringere Mengen ausgelaugt werden.



**Bild 13:** Untersuchungsergebnisse aus Standtests mit Mörtelprüfkörpern

Der Einfluß der verwendeten Zementart und Zusatzstoff/Zuschlag wird deutlicher, wenn man die durch Diffusion nach 1 Jahr freigesetzten Mengen ( $E_{1a}$ ) berechnet. Dazu wird zunächst im IgJ-Igt-Diagramm überprüft, ob Diffusion als Auslaugmechanismus vorliegt. Ist dies der Fall, lassen sich die Emissionen nach Gleichung (9) berechnen. In Bild 14 ist die Auswertung am Beispiel des Chroms für den Mörtel M1 dargestellt. Am Anfang des Auslaugversuches ergaben sich durch den wash-off-Effekt relativ hohe Freisetzungsraten ( $m = -0,83$ ). Nach dem dritten Eluentenaustausch war Diffusion der dominierende Auslaugmechanismus. Die Emission nach 1 Jahr konnte aufgrund der Freisetzungsraten nach Abklingen der Anfangsauswaschung berechnet werden.

Die nach Gleichung (9) berechneten Emissionen nach einem Jahr und die nach Gleichung (10) berechneten Freisetzungsraten in Abhängigkeit von der Zementart und dem Zusatzstoff/Zuschlag sind in Tabelle A10 zusammengestellt. Aus den Ergebnissen läßt sich folgendes entnehmen:



**Bild 14:** Auswertung der Ergebnisse aus dem Standtest am Beispiel des Chroms (Mörtel M1)

- Für die Mischungen mit Steinkohlenflugasche ergeben sich geringere durch Diffusion verursachte Freisetzungen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Steinkohlenflugasche verdichtend wirkt, was sich in einer Behinderung der Diffusion und somit einer Verkleinerung der Freisetzung ausdrückt. Beide Flugaschen haben einen diffusionshemmenden Einfluß auf die Schwermetalle Chrom, Zink Kupfer und Blei.
- Bei den Mörtel aus Hochofenzement sind die berechneten Emissionen für Chrom größer als bei den Portlandzementmörteln. Für die Mischung mit Zusatz von Steinkohlenflugasche ergeben sich geringere Freisetzungsraten. Für die Elemente Kupfer und Blei waren die ausgelaugten Mengen so niedrig, daß die Freisetzungsraten nicht bestimmt werden konnten.
- Die für 1 Jahr berechneten Emissionen sind für die Betone sind generell etwas größer als die der Mörtel.
- Für den Beton mit Metallhüttenschlacke sind die Emissionen für Chrom deutlich größer als für die anderen Betone. Anscheinend liegt das Chrom hier in einer Oxidationsstufe vor, in der es nicht (zumindest in jungem Alter) chemisch eingebunden wird. Es wirkt lediglich die Behinderung der Diffusion durch die Struktur der Matrix. Für Zink und Kupfer sind die Freisetzungsraten in der Größenordnung der anderen Betone.

In Tabelle A16 sind aus den effektiven Diffusionskoeffizienten für Natrium die Tortuositäten nach Gleichung (4) berechnet worden. Dies ist möglich, da alle Natriumverbindungen leicht löslich sind. Die Ergebnisse zeigen deutlich den verdichtenden Einfluß der Steinkohlenflugaschen (größere Tortuosität, stärkere Diffusionshemmung) und den Einfluß des Hütensandes (ebenfalls diffusionshemmende Wirkung durch größere Dichtigkeit, da mehr Gelporen bei gleicher Gesamtporosität im Vergleich zum Portlandzement (vergl. Abschn. 2.2.4).

### 5.4.3 Wasserzementwert

Um den Einfluß des Wasserzementwertes und damit der Gesamtporosität auf die Auslaugraten zu untersuchen, wurden Mörtelmischungen mit unterschiedlichem  $w/(z+0,5f)$ -Wert hergestellt. Die Zusammensetzung ist der Tabelle 3 zu entnehmen. Es wurden drei unterschiedliche  $w/z$ -Werte gewählt: 0,4, 0,5 und 0,6. Dabei wurde jeweils eine Mischung ohne Zusatz von Steinkohlenflugasche und eine Mischung mit Zusatz von Steinkohlenflugasche untersucht. Aus den Mörtelmischungen wurden Mörtelprismen hergestellt wie in Abschnitt 5.2.7 beschrieben. Die Mörtelprismen lagerten bis zu den Untersuchungen im Klima 20 °C/95 % rel. Feuchte. Nach 28 Tagen wurde mit der Durchführung der Standtests begonnen. Es wurden dieselben Randbedingungen für die Standtests gewählt, wie unter Abschnitt 5.4.1 beschrieben.

In Tabelle 5 sind die im Standtest nach 56 Tagen (8 Eluentenwechsel) ausgelaugten Mengen aus den verschiedenen Probekörpern zusammengestellt.

**Tabelle 6:** In Standtests mit Mörtelprismen ausgelaugte Schwermetallmengen in Abhängigkeit vom Wasserzementwert ( $w/(z+0,5f)$ -Wert)<sup>1)</sup>

Probe	Zementart	Zusatzstoff	$w/(z+0,5f)$	ausgelaugte Menge			
				Chrom	Zink	Kupfer	Blei
				mg/kg			
1	2	3	4	5	6	7	8
M1.1	CEM I 32,5 R	-	0,40	0,04	0,25	0,05	0,05
M1.2			0,50	0,03	0,23	0,04	0,04
M1.3			0,60	0,04	0,32	0,02	0,03
M2.1	SFA1	SFA1	0,40	0,07	0,24	0,06	0,03
M2.2			0,50	0,09	0,23	0,02	0,02
M2.3			0,60	0,07	0,49	0,09	0,03

1) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch



Generell sind auch hier die ausgelaugten Mengen an Schwermetallen sehr gering, sie liegen z. T. nahe an der Bestimmungsgrenze. Der Einfluß des Wasserzementwertes läßt sich anhand der absoluten Mengen allein nicht ablesen. Dies ist darauf zurückzuführen, daß ein relativ große Menge der Schwermetallsalze zu Beginn des Standtests von den Probekörpern abgewaschen wird (wash-off-effect). Diese Menge hat an der gesamten ausgelaugten Menge an Schwermetallen einen relativ großen Anteil. Die auf den Oberflächen der Probekörpern haftenden Schwermetallmengen sind verschieden groß und hängen kaum vom Wasserzementwert ab.

Um den Einfluß des Wasserzementwertes besser beurteilen zu können, wurden aus den Ergebnissen der Standtests die transportierten Stoffmengen nach Gleichung 6 berechnet. Wieder wurden nur dann die Emissionen nach 1 Jahr berechnet, wenn sich im lgJ-igt-Diagramm (vgl. Abschn. 2.2.3) eine Gerade mit der Steigung -0,5 ergibt. Dabei wird der erste Teil der Kurve aus den Berechnungen herausgelassen werden, wenn der "wash-off"-Effekt (Steigung -1) auftritt (s. Bild 14). Dadurch hat der "wash-off"-Effekt keinen Einfluß auf die Ergebnisse. Die errechneten Emissionen für die verschiedenen Mörtelproben sind in Tabelle A11 zusammengefaßt. An den Ergebnissen läßt sich folgendes erkennen:

- Erwartungsgemäß (s. Abschnitt 2.2.4) sind die emittierten Mengen für die Elemente Natrium und Chrom mit abnehmenden Wasserzementwert (und entsprechend höherer Gesamtporosität) kleiner. D. h. mit zunehmenden Wasserzementwert wird und entsprechend höherer Gesamtporosität die Diffusion in der Mörtelmatrix weniger behindert. Dies ist darauf zurückzuführen, daß mit höherem Wasserzementwert der Anteil der Kapillarporen an den Gesamtporen zunimmt. Die Diffusion findet vornehmlich in den Kapillarporen statt.
- Für Kupfer und Blei sind die Konzentrationen in den Eluaten der Mischungen mit Zusatz von Steinkohlenflugasche nahe an oder unter der Bestimmungsgrenze.
- Grundsätzlich sind emittierten Mengen für die Mischungen mit Zusatz von Steinkohlenflugasche etwas kleiner.

Der Einfluß des Wasserzementwertes wird ist nicht eindeutig aus den Untersuchungsergebnissen zu entnehmen. Dies ist darauf zurückzuführen, daß die in den Eluaten ermittelten Konzentrationen z. T. nahe an der Bestimmungsgrenze liegen. Für die gut zu bestimmenden Elemente Natrium, Chrom und Zink ist die Freisetzungsrates bei



höherem Wasserzementwert größer. Für ein Standardprüfverfahren zur Beurteilung neuer zementgebundener Baustoffe sollte demnach ein hoher Wasserzementwert gewählt werden, um einen ungünstigen Fall zu prüfen.

#### 5.4.4 Hydratationsalter

Um den Einfluß des Probenalters auf die Auslaugraten zu untersuchen, wurden Mörtelprüfkörper aus den Mörtelmischungen ohne (M0) und mit Zusatz von Steinkohlenflugasche (M1) unterschiedlich lange im Klima 20 °C, 95 % rel. Feuchte gelagert. Die Zusammensetzung der Mörtelmischungen ist der Tabelle 3 zu entnehmen. Die Untersuchungen wurden dann an den Mörtelprismen nach 28 d, 180 d und 360 Tagen Lagerung durchgeführt. Es wurden für die Standtests dieselben Randgrößen gewählt, wie unter Abschnitt 5.4.1 beschrieben. Die nach 56 Tagen (8 Eluentenwechsel) ausgelaugten Schwermetallmengen sind in Tabelle A12 wiedergegeben. Hier sieht man deutlich die Abnahme der ausgelaugten Menge mit zunehmendem Probenalter. Nach einem Jahr sind bis auf Zink keine Schwermetalle in den Eluaten mehr zu bestimmen.

In Tabelle A13 sind die nach Gleichung (9) errechneten Emissionen  $E_{1a}$  sowie die Freisetzung nach Gleichung (10) in Abhängigkeit vom Probenalter zusammengestellt. Es läßt sich eindeutig erkennen, daß die durch Diffusion freigesetzten Metallmengen mit zunehmendem Alter erheblich kleiner wird. Dieser Einfluß ist sehr viel deutlicher ausgeprägt als der Einfluß des Wasserzementwertes oder des Bindemittels/Zusatzstoffes. Bei den ein Jahr alten Proben ließen sich lediglich für das Natrium noch Freisetzungsraten ermitteln. Für Chrom, Zink und Blei sind die errechneten Emissionen schon bei den 90 Tage alten Probekörpern sehr klein. Die Konzentrationen in den Eluaten liegen meist nahe an der Bestimmungsgrenze. Wieder sind die Freisetzungsraten durch Diffusion für die Mischung mit Zusatz von Steinkohlenflugasche etwas kleiner als für die Mischung ohne Steinkohlenflugasche.

An den Ergebnissen läßt sich die mit zunehmenden Probenalter zunehmende Dichtheit der Mörtelmatrix sowie die Einbindung der Schwermetalle in die Zementsteinmatrix gut erkennen. Um in einem Standtests mit Mörtelprüfkörpern reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten, müssen die Probekörper möglichst gleich alt sein. Das Probenalter muß also in einem standardisierten Auslaugverfahren festgelegt werden. Die Probekörper, die untersucht werden, sollten nicht zu jung sein, da sich die Zementsteinmatrix in jungem Alter noch stark

verändert. Andererseits dürfen die Prüfzeiten nicht zu lang werden. Empfehlenswert ist ein Alter der Proben von 28 d. Es wird ein ungünstiger Fall geprüft, da die Auslaugrate mit zunehmenden Probenalter abnimmt, die  $E_{1a}$ -Wert aber aufgrund der 28 d alten Proben ermittelt werden.

### 5.4.5 Karbonatisierung

Zur Untersuchung des Einflusses der Karbonatisierung auf die Auslaugraten wurden verschiedene Untersuchungen durchgeführt. Es wurden Mörtelprüfkörper untersucht, die schon für ein anderes Forschungsprojekt hergestellt worden waren, um ausreichend karbonatisierte Probekörper zu haben. Die Zusammensetzung dieser Mörtelprobekörper entspricht der Zusammensetzung von Mörtelmischung M2 (s. Tabelle 3). Die Probekörper lagerten bis zum Untersuchungszeitpunkt etwa 4 Jahre im Klima 20/65. Die Karbonatisierungstiefe ist der Tabelle 7 zu entnehmen. Mit den Mörtelprüfkörpern wurden Standtests unter den in Abschnitt 5.4.1 Bedingungen beschriebenen durchgeführt. Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in Tabelle 7 zusammengestellt. Parallel zu den Standtests wurde aus anderen Prüfkörpern derselben Mörtelmischungen karbonatisiertes Material abgetragen und die unter extremen Bedingungen eluierbaren Schwermetallmengen bestimmt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in der Tabelle A15 zusammengestellt.

**Tabelle 7:** In Standtests mit Mörtelprismen ausgelaugte Schwermetallmengen; karbonatisierte Probekörper im Vergleich zu nicht karbonatisierten Probekörpern

Probe	Zementart	Zusatzstoff	w/(z+0,5f)	Alter	Karbonatisierungstiefe mm	ausgelaugte Menge			
						Chrom	Zink	Kupfer	Blei
						mg/kg			
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
M0	CEM I 32,5 R	-	0,50	28 d	0	0,04	0,10	0,03	0,02
M0				4 a	32	0,12	0,16	0,05	0,04
M2	SFA2	28 d		0	0,10	0,13	0,02	0,02	
M2		4 a		26	0,28	0,17	0,04	0,04	

Aus den Ergebnissen in Tabelle 7 ist zu entnehmen, daß die Mengen an ausgelaugten Schwermetallen in Standtests bei karbonatisierten Probekörpern größer ist als bei nicht kar-

mit Steinkohlenflugasche. Dies ist darauf zurückzuführen, daß durch den niedrigen pH-Wert in der karbonatisierten Zone vorher unlösliche Schwermetallverbindungen wieder löslich geworden sind. In Tabelle A14 sind die aus den Ergebnissen der Standtests errechneten Freisetzungsraten und des Emissionen  $E_{1a}$  zusammengestellt. Die berechneten Emissionen für die karbonatisierten Probekörper sind zwar kleiner als die der nicht karbonatisierten Proben, aber nicht so klein wie aufgrund der Ergebnisse aus Abschnitt 5.4.4 für das hohe Alter der Proben zu erwarten gewesen wäre. Ein Problem bei der Beurteilung des Einflusses der Karbonatisierung auf die Auslaugmengen ist die Überlagerung des Einflusses des Probenalters.

Dieses Ergebnis spricht dafür, daß durch die Karbonatisierung die Porenstruktur der Probekörper verändert wurde. Die Freisetzungsraten sind aber immer noch so klein, daß man von einer sehr guten Einbindung der Schwermetalle in die Mörtelmatrix sprechen kann.

#### **5.4.6 Bestimmung der Tortuosität**

Für alle untersuchten Probekörper aus den Mörtel- und Betonmischungen wurde jeweils der Quotient aus dem freien und dem effektiven Diffusionskoeffizienten für Natrium bestimmt. Nach Gleichung (4) ergibt sich daraus die Tortuosität ( $T^2$ ), die ein Maß ist für die Behinderung der Diffusion in der Matrix (je größer der Quotient  $D_{Na}/D_{e,Na}$  desto ungehinderter ist die Diffusion). Gleichung (4) gilt nur unter der Voraussetzung, daß das Natrium nicht chemisch mit der Matrix reagiert. In Tabelle A16 sind die Ergebnisse dieser Berechnungen wiedergegeben. An den Ergebnissen lassen sich die in den Abschnitten 5.4.2 bis 5.4.4 beschriebenen Einflüsse der Bindemittel-, Zusatzstoff- bzw. Zuschlagart, des Wasserzementwertes sowie des Hydratationsalters deutlich erkennen. In Bild 15 ist die Abhängigkeit der Tortuosität für Mörtelproben mit und ohne Zusatz von Steinkohlenflugasche in Abhängigkeit vom Wasserzementwert und vom Probenalter graphisch dargestellt. In dem Bild erkennt man, daß die Tortuosität mit zunehmendem Wasserzementwert abnimmt und mit zunehmendem Probenalter zunimmt. Die Tortuosität der Proben mit SFA ist generell höher als bei den Mörtelproben ohne SFA.

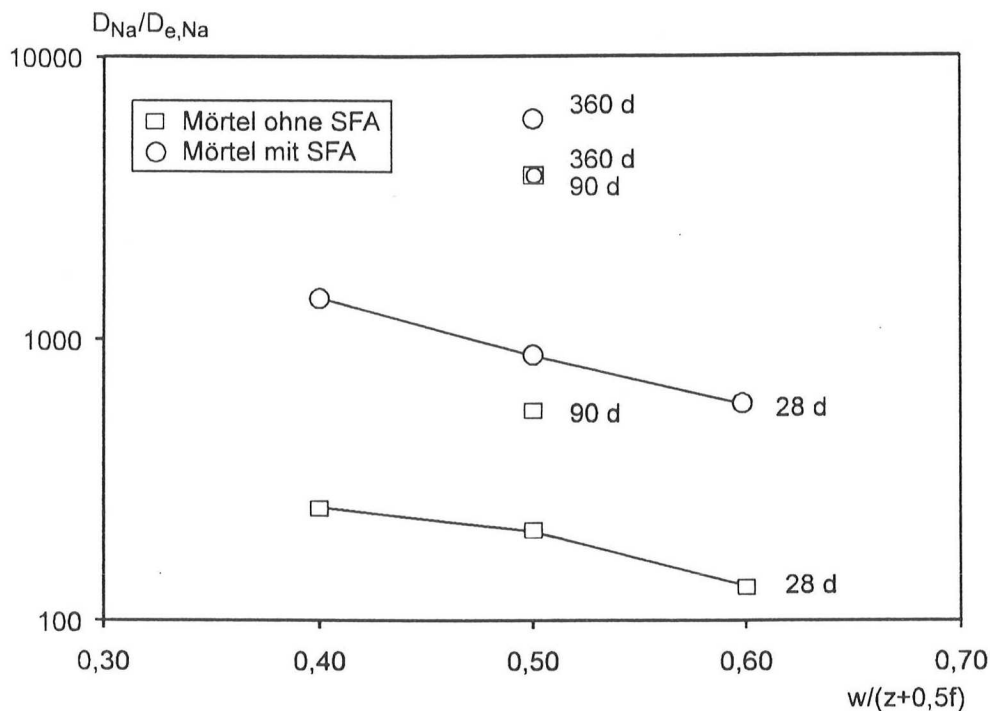


Bild 15: Tortuosität von Mörtelproben in Abhängigkeit vom Wasserzementwert und vom Probenalter

## 5.5 Zusammenfassung der Untersuchungsergebnisse

Die dargestellten Untersuchungsergebnisse haben gezeigt, daß sich durch die Standtests das Auslagverhalten zementgebundener Baustoffe gut beschreiben läßt. Die Versuchsergebnisse haben einen deutlichen Einfluß der betontechnischen Parameter gezeigt.

Die Ermittlung der Emission durch Diffusion für die einzelnen Schwermetalle stellt ein sinnvolles und praxisorientiertes Prüfkriterium für die zementgebundenen Baustoffe dar, mit denen das Auslagverhalten der zementgebundenen Baustoffe beurteilt werden kann.

Generell sind die in den Standtests ausgelagten Schwermetallmengen der in diesem Forschungsprojekt untersuchten Mörtel- und Betonproben mit und ohne Zusatz von industriellen Nebenprodukten sehr gering. Die ermittelten Werte können als Vergleichswerte bei der Einführung neuer Materialien dienen.

Die dargestellten Untersuchungen zeigen, wie wichtig die Festlegung der einzelnen Prüfparameter in einem Standardauslagverfahren ist.

## 6 ZUSAMMENFASSUNG

Für zementgebundene Baustoffe mit und ohne Einsatz von industriellen Nebenprodukten und/oder Recyclingmaterialien besteht eine potentielle Belastung der Umwelt hauptsächlich darin, daß Schwermetalle und/oder schädliche Salze ausgelaugt werden können. Um eine mögliche Auswirkung auf die Umwelt beurteilen zu können, ist die Kenntnis des zeitabhängigen Auslaugverhaltens unter den gegebenen bzw. zu erwartenden Bedingungen am Bauwerk oder Bauteil erforderlich. Diese Informationen können im Labor durch sogenannte Auslaugtests erhalten werden.

Die Untersuchungsergebnisse dieses Forschungsvorhabens belegen, daß die Auslaugung umweltrelevanter Bestandteile (hier: Schwermetalle) aus zementgebundenen Baustoffen weitgehend unabhängig von der vorhandenen Menge dieser Bestandteile im Baustoff ist. Maßgebend für die Auslaugung sind die Mobilisierbarkeit (Löslichkeit) der betrachteten Stoffe und der Diffusionswiderstand der Matrix. Diese beeinflussen in Kombination letztlich die Größe des effektiven Diffusionskoeffizienten in der Zementsteinmatrix, der in praxisorientierten Auslaugtests ermittelt werden kann.

In Deutschland gibt es bislang kein genormtes oder vorgeschriebenes Verfahren, mit dem das Auslaugverhalten von zementgebundenen Baustoffen geprüft werden kann. Im allgemeinen wird der Test nach DIN 38 414 S-4 /13/, kurz DEV-S4 genannt, eingesetzt. Dieses ursprünglich zur Analyse von Schlämmen o. ä. ausgelegte Verfahren ist zur Prüfung kompakter Baustoffe ungeeignet.

Um genügend Informationen über das Auslaugverhalten eines Stoffes zu erhalten, ist eine Kombination verschiedener Auslaugtests nötig. Ein einheitliches Prüfverfahren für Grundlagenuntersuchungen (basic tests) sollte aus einem System folgender Versuche bestehen:

- Bestimmung des Gesamtgehalts der prüfungsrelevanten Stoffe,
- Bestimmung der Verfügbarkeit (Mobilisierbarkeit),
- praxisorientierte Auslaugtests (Freisetzungsraten unter realen Bedingungen).

Unter praxisorientierten Auslaugtests werden dabei Standtests verstanden. Durch die Kombination der Ergebnisse dieser Versuche lassen sich Rückschlüsse auf das Langzeitauslaugverhalten von Baustoffen ziehen. Das DEV-S4-Verfahren liefert weder Informationen

über die zeitabhängige Freisetzungsrates, noch kann es die Anforderungen an einen Verfügbarkeitsstest erfüllen. Der verfügbare Anteil der Gesamtkonzentration wird jedoch benötigt, um aus den Ergebnissen eines Standtests effektive Diffusionskoeffizienten berechnen zu können, da in der Regel die betrachteten umweltrelevanten Stoffe nicht komplett im Eluenten löslich sind. Daher ist die Entwicklung eines für zementgebundene Baustoffe relevanten Verfügbarkeitsstests sinnvoll und erforderlich.

Im vorliegenden Forschungsvorhaben wurde der Einfluß von Prüfparameter sowie mörtel/betontechnischer Parameter auf die Auslaugraten untersucht. Es konnte gezeigt werden, daß das Auslaugverhalten zementgebundener Baustoffe durch praxisorientierte Auslaugtests (Standtests) gut beschrieben wird. Durch die Ermittlung der zeitabhängigen Auslaugung lassen sich Emissionsraten berechnen, die einen sinnvollen Kennwert darstellen, um das Auslaugverhalten von zementgebundenen Baustoffen zu beurteilen.

Die vorliegenden Untersuchungsergebnisse zeigen, daß von zementgebundenen Baustoffen, die aus genormten oder bauaufsichtlich zugelassenen Stoffen hergestellt werden, keine Gefahr für Boden und Grundwasser ausgeht.

Ziel zukünftiger Aktivitäten sollte es sein, auf der Grundlage der vorliegenden Ergebnisse einen Auslaugtest (compliance-test) für zementgebundene Baustoffe zu normen, mit dem der dominierende Auslaugmechanismus (Diffusion) erfaßt werden kann. Mit Hilfe der Ergebnisse aus diesen Auslaugtests können dann die zementgebundenen Baustoffe objektiv bewertet werden. Ein solcher Auslaugtest sollte ein Standtest mit folgenden Randgrößen sein:

- Prüfkörper: Mörtelprismen ( $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ ) oder Betonwürfel ( $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$ ),
- $w/(z+0,5f) = 0,60$
- Probenalter: 28 Tage
- Verhältnis Volumen des Eluenten zu Volumen des Probekörpers 5 : 1,
- Eluent: entionisiertes Wasser,
- Versuchstemperatur: Raumtemperatur,
- 5(-8)maliger Eluentenaustausch nach: 6, 24, 54, 96, 150, (384, 864, 1344) h,
- Bewegungsart: nicht rühren.



## 7 LITERATUR

- /1/ Amarantos, S.G.; Papadokostaki, K.G.; Petropoulos, J.H.: Comparison of leaching tests and study of leaching mechanisms. Athen: National research centre for the physical sciences democritos, 1985
- /2/ American Society for Testing and Materials: Annual Book of ASTM Standards, Part 31, 1979
- /3/ Bishop, P.L. ; Gress, D.L. ; Olofsson, J.A.: Cement Stabilization of Heavy Metals: Leaching Rate Assessment. Michigan/USA : Annual Arbor Science Publication, 1982. - In: Proceedings of Mid-atlantic Industrial Waste Conference 14th, S. 459-467
- /4/ Bijen, J.M.J.M.; Sloot, H.A. van der: Leaching test for fly ash containing products. Quelle unbekannt.
- /5/ Bliefert, C. Umweltchemie. Weinheim: VCH, 1994
- /6/ Coté, P.L.; Constable, T.: Evaluation of Experimental Conditions in Batch Leaching Conditions. In: Resources and Conservation 9 (1982), S. 59-73
- /7/ Coté, P.L.; Constable, T.W.; Moreira, A.: An evaluation of cement-based waste forms using the results of approximately two years of dynamic leaching. In: Nuclear and waste management 7 (1987) Nr.2, S.129-139
- /8/ Crank, J.: The mathematics of diffusion. 2. Auflage, Oxford: Clarendon Press, 1975
- /9/ Deutsches Institut für Bautechnik (DIBT): Verzeichnis der Prüfzeichen. In: Mitteilungen Deutsches Institut für Bautechnik 24 (1993), Nr. 7 Sonderheft
- /10/ Déchets: Essai de Lixiviation X 31-210, 1988. Association Francaise de Normalisation (AFNOR), Paris
- /11/ DIN 1164 Teil 1 10.94. Zement; Zusammensetzung, Anforderungen
- /12/ DIN 4301 04.81. Eisenhüttenschlacke und Metallhüttenschlacke im Bauwesen.
- /13/ DIN 38 414 Teil 7 01.83. Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser und Schlammuntersuchung; Schlamm und Sedimente (Gruppe S)
- /14/ Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen; Arbeitsgruppe "Mineralstoffe im Straßenbau"; Arbeitsausschuß "Umweltverträglichkeit von Mineralstoffen": FGSV-Arbeitspapier Nr. 28/1: Umweltverträglichkeit von Mineralstoffen. Teil "Wasserwirtschaftliche Verträglichkeit". Fassung 10.94
- /15/ Gesetz zur Ordnung des Wasserhaushalts (Wasserhaushaltsgesetz - WHG). In der Fassung der Bekanntmachung vom 23. September 1998, BGBl. I. S. 1529, ber. S. 1654

- /16/ Hårdtl, R.: Veränderung des Betongefüges durch die Wirkung von Steinkohlenflugasche und ihr Einfluß auf die Betoneigenschaften. Berlin : Beuth. - In: Schriftenreihe des Deutschen Ausschusses für Stahlbeton (1995), Nr. 448
- /17/ Hohberg, I.; Rankers, R.: Leaching properties of cement-bound materials. Amsterdam: Elsevier, 1994. In: Environmental aspects of construction with waste materials. Proceedings, Maastricht, Netherlands, 1-3 June 1994, (Goumans, J.J.J.M.; et al (Ed.)), S. 387-396
- /18/ Hünert, R.: Entwicklung von Verfahren zur Beurteilung des Deponieverhaltens. Paderborn, Technische Universität, Diss., 1986
- /19/ Kloke, A.: Richtwerte '80: Orientierungsdaten für tolerierbare Gesamtgehalte einiger Elemente in Kulturböden. Mitteilung des Verbandes Darmstadt: Deutscher Landwirtschaftlicher Untersuchungs- und Forschungsanstalten (VDLUFA), 1980
- /20/ Lutz, P.; Jenisch, R.; Klopfer, H.; Freymuth, H.; Krampf, L.; Petzold, K.: Lehrbuch der Bauphysik: Schall, Wärme, Feuchte, Licht, Brand. 3. Aufl. Stuttgart : Teubner, 1994
- /21/ Meng, B.: Charakterisierung der Porenstruktur im Hinblick auf die Interpretation von Feuchtetransportvorgängen. In: Aachener Beiträge zur Bauforschung (1993), Nr. 3, Aachen, Technische Hochschule, Diss., 1993
- /22/ NEN 7345 (Draft) 08.92: Leaching characteristics of building and solid waste materials - Leaching tests : Determination of the leaching behaviour of inorganic components from shaped building materials, monolithic and stabilised waste materials
- /23/ NEN 7341 (Draft) 10.92: Leaching characteristics of building and solid waste materials - Leaching tests : Determination of the leaching availability of inorganic compounds
- /24/ ÖNorm S 2072 12.90. Eluatklassen (Gefährdungspotential) von Abfällen
- /25/ Rat der Europäischen Gemeinschaften; EG; EWG: Richtlinie des Rates vom 17. Dezember 1979 über den Schutz des Grundwassers gegen Verschmutzung durch bestimmte gefährliche Stoffe. (80/68/EWG) (Anhang: Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Vollzug der Richtlinie); In: Ministerialblatt für das Land Nordrhein-Westfalen 43 (1990), Nr. 56, S. 943-948
- /26/ Rösler, H. J.; Lange, H.: Geochemische Tabellen. Stuttgart: Ferdinand Enke Verlag, 1976
- /27/ Scheffer, F.; Schachtschnabel, P.: Lehrbuch der Bodenkunde. 12. Aufl., Stuttgart: Enke Verlag, 1973
- /28/ Schießl, P. ; Alfes, Ch.: Verwendung von künstlichen Puzzolanen als Zusatzstoff im Beton. Phase I: Grundsätze der Wirksamkeit. Teil B: Silicastaub. Aachen : Institut für Bauforschung, 1993. - Sachstandsbericht Nr. F 344 - 1B



- /29/ Schießl, P.; Rankers, R.; Hohberg, I.: Umweltverträglichkeit von zementgebunden Baustoffen - Sachstandsbericht - Aachen: Institut für Bauforschung, 1991. Forschungsbericht Nr. F 366
- /30/ Schweizer Bundesrat: Technische Verordnung über Abfälle (TVA). Bern 10. Dezember 1990
- /31/ Shively, W.; Bishop, P.; Gress, D.; Brown, T.: Leaching tests of heavy metals stabilized with portland cement. - In: Journal of water pollution control federation 58 (1986), Nr. 3, S. 234-241.
- /32/ Sloot van der, H.A.; Groot de, G.J.; Wijkstra, J.; Wegen van de, G.: Karakterisering van het uitlooggedrag van anorganische Componenten uit Bouwmaterialen waarin primaire en secundaire Grondstoffen zijn verwerkt. Bilthoven: Workshopverlslag, 1989. - In: Beoordeling van Bouwstoffen in het Licht van het Bouwstoffenbesluit - WBB, 1989, S. 12-27
- /33/ Sloot van der, H.A.; Groot de, G.J.; Wijkstra, J.; ECN: Leaching characteristics of construction materials and stabilization products containing waste materials. Petten: Netherlands energy research foundation (ECN), 1987. - restricted distribution ECN-87-093.
- /34/ Smolczyk, H.-G., und H. Romberg: Der Einfluß der Nachbehandlung und der Lagerung auf die Nacherhärtung und Porenverteilung von Beton. In: Tonindustrie-Zeitung 100 (1976) Heft 10, S. 349-357, Heft 11, S. 381-390.
- /35/ Smolczyk, H.-G.: Flüssigkeit in den Poren des Betons - Zusammensetzung und Transportvorgänge in der flüssigen Phase des Zementsteins. In: Beton-Information 24 (1984) Heft 1, S. 3-10
- /36/ Sprung, S.: Umweltentlastung durch Verwertung von Sekundärrohstoffen. In: Zement-Kalk-Gips 45 (1992), Nr. 5, S. 213-221
- /37/ Sprung, S.; Rechenberg, W.: Einbindung von Schwermetallen in Sekundärstoffen durch Verfestigen mit Zement. - In: Beton 38 (1988), Nr.5, S. 193-198
- /38/ Sprung, S.; Rechenberg, W.: Bindung umweltrelevanter Sekundärstoffe durch Verfestigen mit Zement. - In: Zement und Beton 34 (1989), Nr. 2, S. 54-61
- /39/ Sprung, S.; Rechenberg, W.; Bachmann, G.: Environmental compatibility of cement and concrete. Amsterdam: Elsevier, 1984. - In: Environmental aspects of construction with waste materials. Proceedings, Maastricht, Netherlands, 1-3 June 1994, (Goumans, J.J.J.M. ; et al (Ed.)), S. 369-386
- /40/ Sprung, S.; Rechenberg, W.: Schwermetallgehalte im Klinker und im Zement. - In: Zement-Kalk-Gips 47 (1994), Nr. 5, S. 258-263
- /41/ Toxicity Characteristic Leaching Procedure (TCLP). Federal Register Vol 261, 03.1990

- /42/ Uchikawa, H ; Tsukiyama, K. ; Mihara, Y.: Über die Bindung schädlicher Elemente durch einen hochwertigen Spezialzement. In: Zement-Kalk-Gips 31 (1978), Nr. 4, S. 195-203
- /43/ Verein Deutscher Zementwerke; Forschungsinstitut der Zementindustrie: Tätigkeitsbericht 1981-84. Düsseldorf: Verein Deutscher Zementwerke e. V.
- /44/ Verein Deutscher Zementwerke; Forschungsinstitut der Zementindustrie: Tätigkeitsbericht 1987-90. Düsseldorf: Verein Deutscher Zementwerke e. V.
- /45/ Verein Deutscher Zementwerke; Forschungsinstitut der Zementindustrie: Tätigkeitsbericht 1990-93. Düsseldorf: Verein Deutscher Zementwerke e. V.
- /46/ Verordnung über Trinkwasser und über Brauchwasser für Lebensmittelbetriebe, Fassung BGBl., Teil 1, Nr. 22 (1986) 760, geändert BGBl., Teil 1, Nr. 66, Bonn, 1990
- /47/ Wesche, K.: Baustoffe für tragende Bauteile. Bd. 2: Beton, Mauerwerk. 3. Aufl. Wiesbaden: Bauverlag, 1993
- /48/ Wruss, W.; Rechenberg, W.; Spanka, G.; Hohberg, I.: Verfahren zur Prüfung des Auslaugverhaltens zementverfestigter Stoffe: Auslaugverhalten und Bewertung der Prüfergebnisse. Wien: Bundesministerium für Umwelt, Jugend und Familie, 1992. - In: Rilem - Workshop: Auslaugverhalten von Beton und zementgebundenem Material, Wien, Juni 1992, S. 21-37

Tabelle A1: Spannweiten von Schwermetallgehalten in Portlandzementen nach DIN 1164 und Steinkohlenflugaschen

Bestandteil		Steinkohlenflug- aschen <sup>1)</sup>	Zemente
		(n = 12)	(n = 8)
		mg/kg	
1		2	3
Arsen,	As	15 - 321	4 - 23
Thallium,	Tl	0,7 - 3	n. b.
Chrom,	Cr	107 - 360	68 - 97
Zink,	Zn	149 - 1483	284 - 455
Antimon,	Sb	2 - 37	2 - 18
Blei,	Pb	41 - 817	11 - 55
Kobalt,	Co	36 - 101	6 - 21
Cadmium,	Cd	1 - 7	< 2 - 6
Quecksilber,	Hg	< 0,5	n. b.
Nickel,	Ni	75 - 301	36 - 65
Barium,	Ba	612 - 2249	185 - 390
Kupfer,	Cu	64 - 613	55 - 98
Wismuth,	Bi	1 - 4	1 - 5
Gallium,	Ga	2 - 84	5 - 9

1) Untersuchungen an SFA mit Zulassung des DIBt

Tabelle A2: Spurenelementgehalte in natürlichen Böden /28, 27, 20/1)

Element		Böden		
		Deutschland	weltweit	Kulturböden
		mg/kg		
1		2	3	4
Arsen,	As	2 - 20	5	-
Chrom,	Cr	5 - 100	200	5 - 3000
Zink,	Zn	10 - 80	50	-
Blei,	Pb	2 - 60	10	20 - 80
Kobalt,	Co	-	-	2 - 80
Cadmium,	Cd	< 0,5	0,5	-
Nickel,	Ni	-	40	10 - 800
Barium,	Ba	-	-	400 - 3000
Kupfer,	Cu	2 - 40	-	-
Vanadium,	V	-	100	20 - 250
Selen,	Se	0,01 - 1,0	-	-

Tabelle A3: Spurenelementgehalte von Kalkstein, Ton sowie von Kies und Sand /41, 46/1)

Element		Kies/Sand	Ton	Kalkstein
		mg/kg		
1		2	3	4
Arsen,	As	-	3 - 25	0,1 - 2,8
Thallium	Tl	-	-	-
Chrom,	Cr	1 - 70	33 - 1500	1,2 - 16
Zink,	Zn	10 - 50	2 - 1300	< 0,1 - 1900
Blei,	Pb	1-20	1 - 219	0,4 - 17
Kobalt,	Co	-	-	-
Cadmium,	Cd	0,01 - 1	< 0,02 - 500	~ 0,04
Nickel,	Ni	1 - 10	-	-
Kupfer,	Cu	-	-	-
Vanadium,	V	-	30 - 3600	-

1) Die angegebenen Spannweiten sind Minimal- und Maximalwerte vorliegender Untersuchungen. Mittelwerte, charakteristische oder repräsentative Quantilwerte sind hieraus nicht ableitbar

Tabelle A4: Charakterisierung der in dem Versuchsprogramm eingesetzten Zemente und Steinkohlenflugaschen sowie der Metallhüttenschlacke, Schwermetallgehalte und unter extremen Bedingungen eluierbare Mengen

Bestandteil		CEM I 32,5 R (PZ 35 F)			CEM III A 32,5 (HOZ 35 L)			SFA1			SFA2			MHS		
		Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>
mg/kg																
1		2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
Arsen,	As	7	0,2	< 0,1	2	< 0,1	< 0,1	247	52	0,4	321	155	3	< 2	0,5	0,02
Thallium,	Tl	0,2	< 0,1	< 0,1	0,5	0,2	< 0,1	2	1,0	0,04	3	1,4	0,02	0,1	< 0,1	< 0,01
Chrom,	Cr	68	34	0,8	46	4	< 0,1	248	45	1	250	15	5	367	0,7	0,03
Zink,	Zn	309	44	0,07	245	55	0,05	1177	22	0,21	560	9	0,03	3067	61	6
Antimon,	Sb	2	n. b.	n. b.	5	n. b.	n. b.	19	n. b.	n. b.	37	n. b.	0,43	4	n. b.	n. b.
Blei,	Pb	21	0,8	0,2	14	0,1	< 0,1	817	1	< 0,1	482	0,7	< 0,1	178	13	0,2
Kobalt,	Co	6	1	< 0,1	4	2	< 0,1	65	2	< 0,1	74	7	0,1	78	38	0,07
Cadmium,	Cd	< 0,5	0,1	< 0,1	< 0,5	< 0,1	< 0,1	7	0,7	0,01	7	0,1	< 0,1	< 0,5	< 0,05	< 0,01
Quecksilber,	Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,01	< 0,1	< 0,1	< 0,01	< 0,1	< 0,1	< 0,01
Nickel,	Ni	36	6	< 0,1	23	5	< 0,1	158	5	< 0,1	181	3	0,08	57	10	< 0,1
Barium,	Ba	280	135	1,7	420	111	0,3	1316	30	2	787	20	3	2170	36	n. b.
Kupfer,	Cu	96	1	0,03	18	1	< 0,01	189	11	0,03	307	28	< 0,01	1768	113	3

1) Eluierbares unter extremen Bedingungen, pH (konstant)= 4, Korngröße < 125 µm, Elutionszeit 1 h

2) Eluierbares nach dem DEV-S4-Verfahren

Tabelle A5: Schwermetallgehalte der hergestellten Zementsteine, Mörtel und Betone<sup>1)</sup>

	Z0	Z1	Z2	M0.1	M0	M0.2	M1.1	M1.	M1.2	M2	M3	M4	M5	B0	B1	B2	B3	B4
Bindemittel	CEM I 32,5 R										CEM III/A 32,5			CEM I 32,5				CEM III/A 32,5
Zusatzstoff	-	SFA1	SFA2	-			SFA1			SFA2	-	SFA1	SFA2	-	SFA1	SFA2	MHS <sup>1)</sup>	-
w/(z+0,5f)	0,50			0,40	0,50	0,60	0,40	0,50	0,60	0,50	0,50							
Bestandteil	mg/kg																	
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
Arsen, As	11	62	13	10	9	5	31	21	37	18	6	29	6	4	12	12	2	3
Thallium, Tl	< 0,1	0,8	0,4	0,2	< 0,1	0,2	0,8	0,3	0,9	0,3	0,1	0,6	0,4	0,5	0,1	0,1	< 0,1	< 0,1
Chrom, Cr	126	151	141	29	42	27	53	53	52	27	127	19	35	21	26	25	180	15
Zink, Zn	248	535	300	127	79	133	276	185	290	86	106	206	135	17	129	84	1314	61
Antimon, Sb	< 1	8	9	1	1	< 2	2	1	< 2	n. b.	7	4	5	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.
Blei, Pb	21	214	61	16	11	15	112	69	115	29	13	87	37	25	108	27	97	10
Kobalt, Co	8	18	21	26	30	23	31	35	21	51	34	49	54	2	40	41	78	39
Cadmium, Cd	1,6	4,0	2,4	< 0,5	< 0,5	0,5	2	1	3	1	< 0,5	1	< 1	< 0,5	< 0,5	< 0,5	< 0,5	< 0,5
Quecksilber, Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Nickel, Ni	30	55	78	15	10	13	29	18	28	15	10	21	27	11	13	17	31	5
Barium, Ba	313	541	504	212	194	220	324	259	339	212	226	310	368	72	196	180	1169	180
Kupfer, Cu	21	67	66	< 2	5	< 2	21	17	24	16	4	22	20	5	22	24	829	4
Wismuth, Bi	3	< 1	1	2	1	< 1	< 2	2	< 2	< 2	2	< 2	3	n. b.				
Gallium, Ga	6	13	15	3	4	2	8	5	8	3	3	7	7	n. b.				

1) Zusammensetzung s. Tabelle 3

**Tabelle A6:** Ergebnisse der Untersuchungen von Mörtelproben ( $w/(z+0,5f) = 0,5$ ); Gesamtgehalt, Eluierbares unter extremen Bedingungen, DEV-S4-Verfahren sowie Ergebnisse aus praxisorientierten Untersuchungen (Standtests)

Mörtel	M0				M1				M2			
Bindemittel	CEM I 32,5 R											
Zusatzstoff	-				SFA1				SFA2			
Prüfgröße	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	
	mg/kg											
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	
Arsen, As	9	0,1	< 0,1	< 0,01	21	< 0,1	< 0,1	< 0,01	18	0,1	< 0,01	
Thallium, Tl	< 0,1	< 0,1	< 0,1	n. b.	0,3	0,2	< 0,1	n. b.	0,3	0,2	< 0,04	
Chrom, Cr	42	22	7	0,09	53	13	5	0,15	27	3	0,02	
Zink, Zn	79	44	0,5	0,18	185	28	3	0,09	86	35	0,07	
Blei, Pb	11	1	0,4	0,01	69	3	1	0,03	29	2	< 0,01	
Kobalt, Co	30	29	0,2	n. b.	35	21	0,6	n. b.	51	44	< 0,04	
Cadmium, Cd	0,4	0,1	< 0,1	< 0,01	1,2	0,2	< 0,1	< 0,01	< 0,5	0,1	< 0,01	
Quecksilber, Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1	< 0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1.	< 0,1	n. b.	
Nickel, Ni	10	4	0,2	< 0,04	18	2	0,2	n. b.	15	3	< 0,04	
Barium, Ba	194	39	16	n. b.	259	43	16	n. b.	212	44	n. b.	
Kupfer, Cu	6	3	0,6	< 0,02	17	3	1	< 0,02	16	3	0,02	

1) fein aufgemahlenes Material (< 125 µm), niedriger pH-Wert (pH = 4)

2) Ergebnisse des DEV-S4-Verfahrens

3) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch



**Tabelle A7:** Ergebnisse der Untersuchungen von Mörtelproben ( $w/(z+0,5f) = 0,5$ ); Gesamtgehalt, Eluierbares unter extremen Bedingungen, DEV-S4-Verfahren sowie Ergebnisse aus praxisorientierten Untersuchungen (Standtests)

Mörtel	M3			M4			M5		
Bindemittel	CEM III/A 32,5								
Zusatzstoff	-			SFA1			SFA2		
Prüfgröße	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>2)</sup>
	mg/kg								
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Arsen, As	6	<0,1	<0,02	29	0,3	0,02	6	<0,1	<0,02
Thallium, Tl	<0,1	0,1	n. b.	0,6	0,3	n. b.	0,4	0,2	n. b.
Chrom, Cr	22	1,0	0,08	19	1,0	0,09	35	6	0,10
Zink, Zn	106	32	0,02	206	52	0,02	135	55	0,02
Blei, Pb	13	0,3	0,03	87	1	<0,02	37	1	<0,02
Kobalt, Co	34	30	n. b.	49	41	n. b.	54	45	n. b.
Cadmium, Cd	<0,5	0,1	<0,01	1	0,1	<0,01	<0,5	0,1	<0,01
Quecksilber, Hg	<0,1	<0,1	n. b.	<0,1	<0,1	n. b.	<0,1	<0,1	n. b.
Nickel, Ni	10	3	n. b.	21	4	n. b.	27	6	n. b.
Barium, Ba	226	59	n. b.	310	67	n. b.	368	83	n. b.
Kupfer, Cu	4	0,1	<0,02	22	0,2	<0,02	20	5	<0,02

1) fein aufgemahlene Material (< 125 µm), niedriger pH-Wert (pH = 4)

2) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch

**Tabelle A8 :** Ergebnisse der Untersuchungen von Betonproben ( $w/(z + 0,5f) = 0,5$ ); Gesamtgehalt, Eluierbares unter extremen Bedingungen, DEV-S4-Verfahren sowie Ergebnisse aus praxisorientierten Untersuchungen

Beton	B0				B1			B2			
Bindemittel	CEM I 32,5 R										
Zusatzstoff	-				SFA1			SFA2			
Prüfgröße	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	DEV- S4 <sup>2)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>3)</sup>	
	mg/kg										
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	
Arsen, As	4	0,1	< 0,1	< 0,01	12	0,8	0,02	12	0,7	0,02	
Thallium, Tl	0,5	0,1	< 0,1	n. b.	0,1	0,1	n. b.	0,1	0,1	n. b.	
Chrom, Cr	21	3	0,2	0,02	26	1	0,09	25	0,7	0,04	
Zink, Zn	117	52	0,1	0,13	129	48	0,04	84	102	0,04	
Blei, Pb	25	0,7	< 0,1	< 0,03	108	2	< 0,02	27	4	< 0,02	
Kobalt, Co	2	1	< 0,1	n. b.	40	1	n. b.	41	1,0	n. b.	
Cadmium, Cd	< 0,5	< 0,1	< 0,1	< 0,01	< 0,5	< 0,1	< 0,01	< 0,5	1,1	< 0,01	
Quecksilber, Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1	< 0,1	n. b.	
Nickel, Ni	11	8	0,1	n. b.	13	2	n. b.	17	0,06	n. b.	
Barium, Ba	172	50	13	n. b.	196	38	n. b.	180	44	n. b.	
Kupfer, Cu	6	3	< 0,1	0,02	22	3	0,02	24	39	0,02	

1) fein aufgemahlene Material (< 125 µm), niedriger pH-Wert (pH = 4)

2) Ergebnisse des DEV-S4-Verfahrens

3) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch

Tabelle A9 : Ergebnisse der Untersuchungen von Betonproben (w/(z + 0,5f) = 0,5); Gesamtgehalt, Eluierbares unter extremen Bedingungen, DEV-S4-Verfahren sowie Ergebnisse aus praxisorientierten Untersuchungen

Beton		B3			B4		
Bindemittel		CEM I 32,5 R			CEM III/A 32,5		
Zusatzstoff/Zuschlag		MHS			-		
Prüfgröße		Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>2)</sup>	Gesamt- gehalt	Eluier- bares <sup>1)</sup>	Stand- test <sup>2)</sup>
		mg/kg					
1		2	3	4	5	6	7
Arsen,	As	< 2	0,1	< 0,01	3	0,1	0,03
Thallium,	Tl	0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1	< 0,1	n. b.
Chrom,	Cr	180	0,9	0,39	15	0,7	0,05
Zink,	Zn	1314	64	0,23	61	21	0,04
Blei,	Pb	178	6	< 0,01	10	< 0,01	< 0,02
Kobalt,	Co	78	19	n. b.	39	24	n. b.
Cadmium,	Cd	< 0,5	< 0,1	n. b.	< 0,5	< 0,1	< 0,01
Quecksilber,	Hg	< 0,1	< 0,1	n. b.	< 0,1	< 0,1	n. b.
Nickel,	Ni	31	6	n. b.	5	2	n. b.
Barium,	Ba	1169	38	n. b.	180	31	n. b.
Kupfer,	Cu	829	91	0,03	4	< 0,1	< 0,02

1) fein aufgemahlenes Material (< 125 µm), niedriger pH-Wert (pH = 4)

2) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch

**Tabelle A10:** In Standtests mit Mörtelprismen und Betonwürfeln ermittelte Freisetzungsraten und Emission nach einem Jahr in Abhängigkeit von der Zementart und dem Zusatzstoff/Zuschlag

Probe		Zementart	Zusatzstoff	Natrium		Chrom		Zink		Kupfer		Blei	
				F	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>
				mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Mörtel <sup>1)</sup>	M0	CEM I 32,5 R	-	0,87	4881	4,1	2,3	23	13	6,5	3,6	3,7	2,1
	M1		SFA1	0,55	3094	3,9	2,2	11	6,7	6,4	0,9	1,9	1,1
	M2		SFA2	0,30	1709	2,2	1,3	5,1	2,9	1,9	1,1	1,9	1,0
	M3	CEM III/A 32,5	-	0,44	2485	6,8	5,6	1,7	1,0	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
	M4		SFA1	0,35	1995	4,9	4,4	2,0	1,1	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
	M5		SFA2	0,40	2249	3,2	5,2	< 1,8	< 1	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
Beton <sup>1)</sup>	B0	CEM I 32,5 R	-	0,52	2912	3,9 <sup>1)</sup>	2,2 <sup>1)</sup>	47	11	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
	B1		SFA1	0,23	1272	19	11	< 1,8	k. D	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
	B2		SFA2	0,50	2826	10	6	8,3	4,7	4,7	2,2	< 1,8	< 1
	B3		MHS	0,48	2669	29	16	12	6,9	6,9	3,6	< 1,8	< 1
	B4	CEM III/A 32,5	-	0,38	2114	5,9	3,3	7,3	4,1	2,2	1,2	< 1,8	< 1

F: Freisetzung nach Gl. (10)

E<sub>1a</sub>: Nach einem Jahr durch Diffusion freigesetzte Menge (berechnet n. Gl. 9)

1) nicht eindeutig Diffusion

**Tabelle A11:** In Standtests mit Mörtelprismen ermittelte Freisetzungsraten und Emission nach einem Jahr in Abhängigkeit vom Wasser-Zementwert ( $w/(z + 0,5f)$ )-Wert

Probe	Zementart	Zusatzstoff	$w/(z+0,5f)$	Alter d	Natrium		Chrom		Zink		Kupfer		Blei	
					F	$E_{1a}$	$F \cdot 10^4$	$E_{1a}$	$F \cdot 10^4$	$E_{1a}$	$F \cdot 10^4$	$E_{1a}$	$F \cdot 10^4$	$E_{1a}$
					$\text{mg/m}^2 \cdot \sqrt{s}$	$\text{mg/m}^2 \cdot a$	$\text{mg/m}^2 \cdot \sqrt{s}$	$\text{mg/m}^2 \cdot a$	$\text{mg/m}^2 \cdot \sqrt{s}$	$\text{mg/m}^2 \cdot a$	$\text{mg/m}^2 \cdot \sqrt{s}$	$\text{mg/m}^2 \cdot a$	$\text{mg/m}^2 \cdot \sqrt{s}$	$\text{mg/m}^2 \cdot a$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
M1.1	CEM I 32,5 R	-	0,40	28	0,73	4127	3,7	2,1	18	10	4,2	2,4	2,5	1,4
M1.2			0,50		0,87	4881	4,1	2,3	23	13	6,5	3,6	3,7	2,1
M1.3			0,60		1,1	6054	5,3	3,0	4,4 <sup>1)</sup>	3 <sup>1)</sup>	6,3	3,5	3,7	2,1
M2.1	SFA 1		0,40		0,47	2612	3,6	2,0	12	6,6	1,6	0,9	1,5	< 1
M2.2			0,50		0,55	3094	3,9	2,2	11	6,7	1,6	0,9	1,9	1,1
M2.3			0,60		0,73	4117	4,6	2,6	15	8,4	1,6	0,9	1,5	< 1

F: Freisetzung nach Gl. (10)

$E_{1a}$ : Nach einem Jahr durch Diffusion freigesetzte Menge (berechnet n. Gl. 9)

1) nicht eindeutig Diffusion

Tabelle A12: In Standtests mit Mörtelprismen ausgelaugte Schwermetallmengen in Abhängigkeit vom Hydratationsalter<sup>1)</sup>

Probe	Zementart	Zusatzstoff	w/(z+0,5f)	Alter d	ausgelaugte Menge			
					Chrom	Zink	Kupfer	Blei
					mg/kg			
1	2	3	4	5	7	8	9	10
M1.2.1	CEM I 32,5 R	-	0,50	28	0,03	0,23	0,04	0,04
M1.2.2				90	0,03	0,19	0,03	0,03
M1.2.3				360	< 0,01	0,04	< 0,01	< 0,02
M2.2.1	SFA 1	-	0,50	28	0,07	0,24	0,06	0,03
M2.2.1				90	0,02	0,12	0,03	0,03
M2.2.3				360	< 0,01	0,02	< 0,01	< 0,02

1) ausgelaugte Mengen nach 56 d und 8maligem Eluentenaustausch

Tabelle A13: In Standtests mit Mörtelprismen ermittelte Freisetzungsraten und Emission nach einem Jahr in Abhängigkeit vom Alter der Proben

Probe	Zementart	Zusatzstoff	w/(z+0,5f)	Alter d	Natrium		Chrom		Zink		Kupfer		Blei	
					F	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>
					mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	6	7	8	9
M1.2.1	CEM I 32,5 R	-	0,5	28	0,87	4881	4,1	2,3	23	13	6,5	3,6	3,7	2,1
M1.2.2				90	0,53	3000	1,6	0,9	4,9	2,8	2,5	1,4	< 1,8	< 1
M1.2.3				360	0,17	950	< 1,6	< 0,9	2,5 <sup>1)</sup>	1,4 <sup>1)</sup>	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
M2.2.1	SFA 1		0,5	28	0,55	3094	3,9	2,2	11	6,7	6,4	0,9	1,9	1,1
M2.2.2				90	0,17	938	2,0	1,1	5,8	3,3	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1
M2.2.3				360	0,09	546	< 1,6	< 0,9	2,5	1,4	< 1,6	< 0,9	< 1,8	< 1

F: Freisetzung nach Gl. (10)

E<sub>1a</sub>: Nach einem Jahr durch Diffusion freigesetzte Menge (berechnet n. Gl. 9)

1) nicht eindeutig Diffusion



Tabelle A14: In Standtests mit Mörtelprismen ermittelte Freisetzungsraten und Emission nach einem Jahr; karbonatisierte Probekörper im Vergleich zu nicht karbonatisierten Probekörpern

Probe	w/(z+0,5f)	Zementart	Zusatzstoff	Probenalter	Karbonatisierungstiefe mm	Natrium		Chrom		Zink		Kupfer		Blei	
						F	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>	F·10 <sup>4</sup>	E <sub>1a</sub>
						mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a	mg/m <sup>2</sup> ·√s	mg/m <sup>2</sup> ·a
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
M0	0,50	CEM I	-	28 d	0	0,87	4879	4,3	2,4	23	12,8	6,9	3,9	2,8	1,6
M0				4 a	32	0,18	987	3,2	1,8	4,8	2,7	3,2	1,8	< 1,8	< 1
M2	0,50	32,5 R	SFA2	28 d	0	0,69	3894	10	5,7	1,2	7,0	1,7	1,0	< 1,8	< 1
M2				4 a	26	0,16	910	8,0	4,5	n. b.	-	8,5	4,8	1,8	1,0

F: Freisetzung nach Gl. (10)

E<sub>1a</sub>: Nach einem Jahr durch Diffusion freigesetzte Menge (berechnet n. Gl. 9)

n. b. : nicht bestimmt, da keine Diffusion

Tabelle A15: Aus karbonatisierten Mörteln unter extremen Bedingungen eluierte Mengen an Schwermetallen

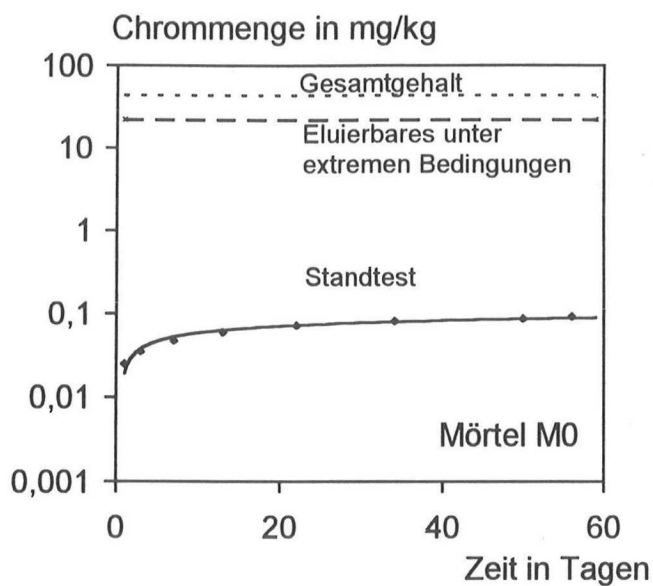
Prüfgröße		Eluierte Menge			
		Mörtel M0	Mörtel M1	Mörtel M0	Mörtel M1
		nicht karbonatisiertes Material		karbonatisiertes Material	
		mg/kg			
1	2	3	4	5	
Arsen, As	0,1	< 0,1	< 0,1	0,1	
Thallium, Tl	< 0,1	0,2	< 0,1	< 0,1	
Chrom, Cr	22	13	12	19	
Zink, Zn	44	28	17	47	
Blei, Pb	1	3	1	2	
Kobalt, Co	29	21	13	36	
Cadmium, Cd	0,1	0,2	0,1	0,3	
Quecksilber, Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	
Nickel, Ni	4	2	3	8	
Barium, Ba	39	43	23	51	
Kupfer, Cu	3	3	1	3	

**Tabelle A16:** Aus den Untersuchungsergebnissen von Standtests mit Mörtelprüfkörpern bzw. Betonwürfeln ermittelte Tortuosität<sup>1)</sup>

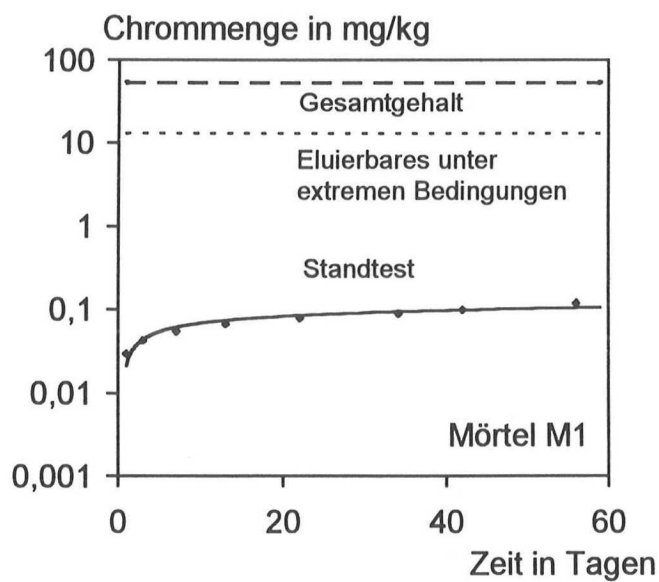
Probe	Zementart	Zusatzstoff	w/(z+0,5f)	Alter d	D <sub>e</sub> (Na) <sup>2)</sup> m <sup>2</sup> /s	Tortuosität <sup>1)</sup>		
1	2	3	4	5	6	7		
M0.1	CEM I 32,5 R	-	0,40	28	5,27·10 <sup>-12</sup>	250		
M0			-	0,50	28	6,16·10 <sup>-12</sup>	210	
					90	1,93·10 <sup>-12</sup>	685	
					360	3,44·10 <sup>-13</sup>	3825	
M0.2			-	0,60	28	1,00·10 <sup>-11</sup>	131	
M1.1		SFA 1			0,40	28	9,51·10 <sup>-13</sup>	1386
M1			SFA 1	0,50		28	1,47·10 <sup>-12</sup>	855
						90	3,49·10 <sup>-13</sup>	3774
						360	2,20·10 <sup>-13</sup>	5976
M1.2			-	0,60		28	2,22·10 <sup>-12</sup>	594
M2	SFA 2	0,50			28	3,98·10 <sup>-12</sup>	331	
M3	CEM III/A 32,5	-	0,50	28	1,92·10 <sup>-12</sup>	688		
M4		SFA 1			7,42·10 <sup>-13</sup>	1776		
M5		SFA 2			1,29·10 <sup>-12</sup>	1022		
B0	CEM I 32,5 R	-	0,50	28	1,58·10 <sup>-11</sup>	83		
B1		SFA 1			4,75·10 <sup>-13</sup>	2774		
B2		SFA 2			2,00·10 <sup>-12</sup>	661		
B3		MHS			5,01·10 <sup>-12</sup>	261		
B4	CEM III/A 32,5	-	0,50		1,72·10 <sup>-12</sup>	764		

1) vgl. Abschnitt 2.2.2, Gleichung 8

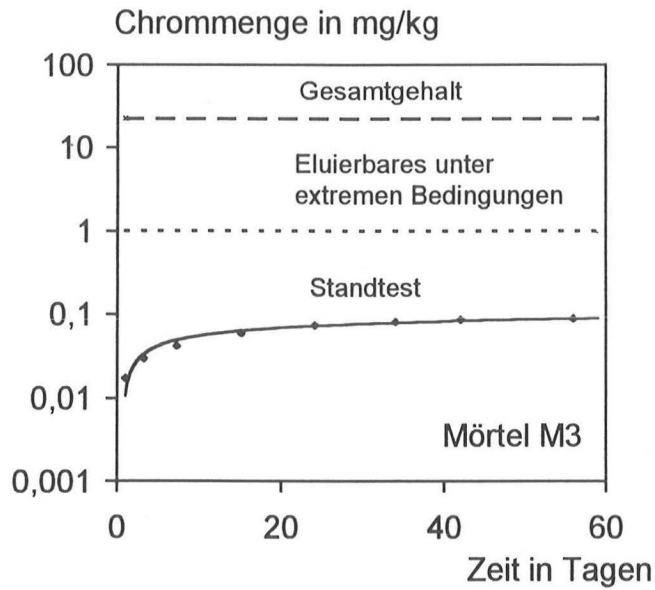
 2) D<sub>e</sub>: effektiver Diffusionskoeffizient



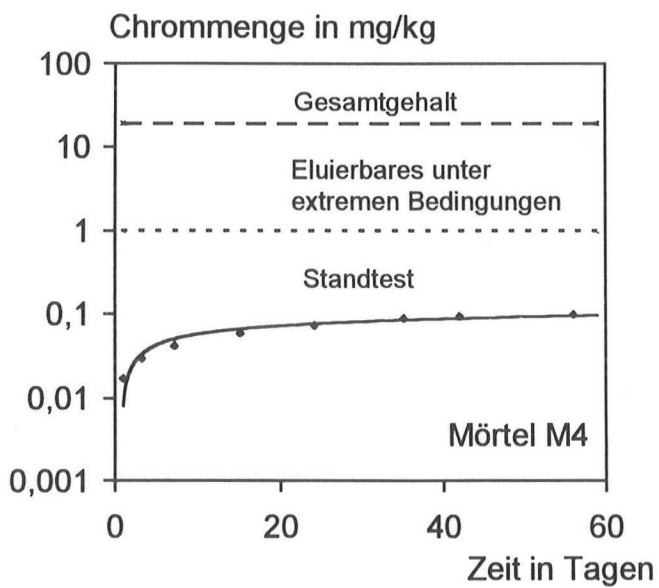
**Bild B1:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; M0



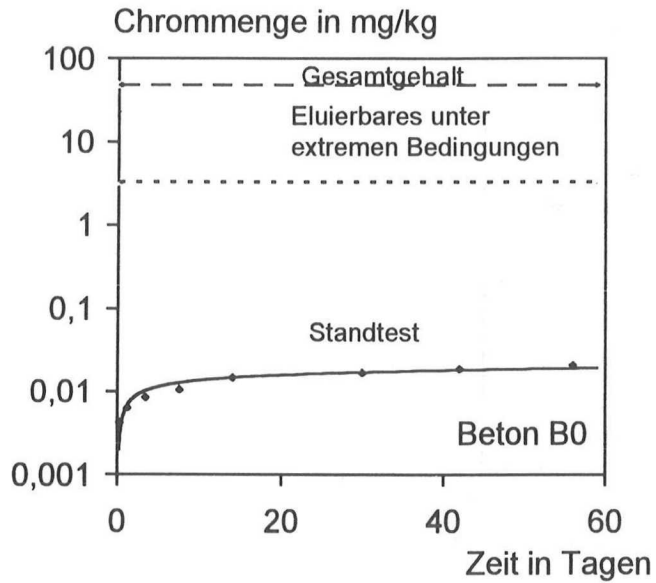
**Bild B2:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; M1



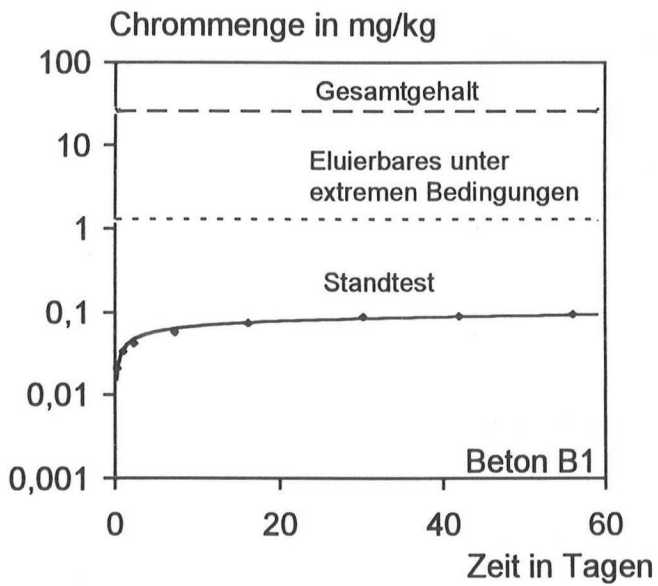
**Bild B3:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; M3



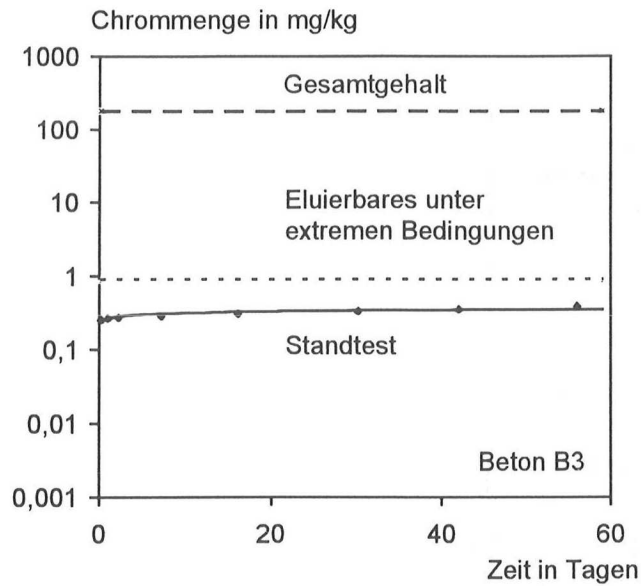
**Bild B4:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; M4



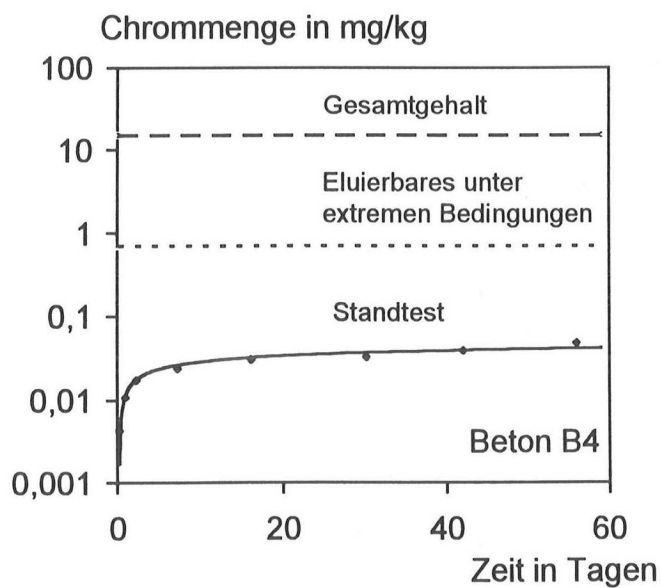
**Bild B5:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; B0



**Bild B6:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; B1

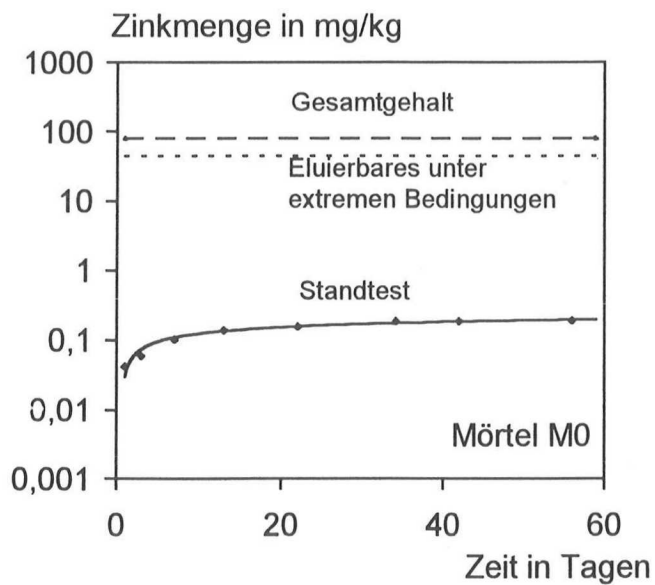


**Bild B7:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; B3

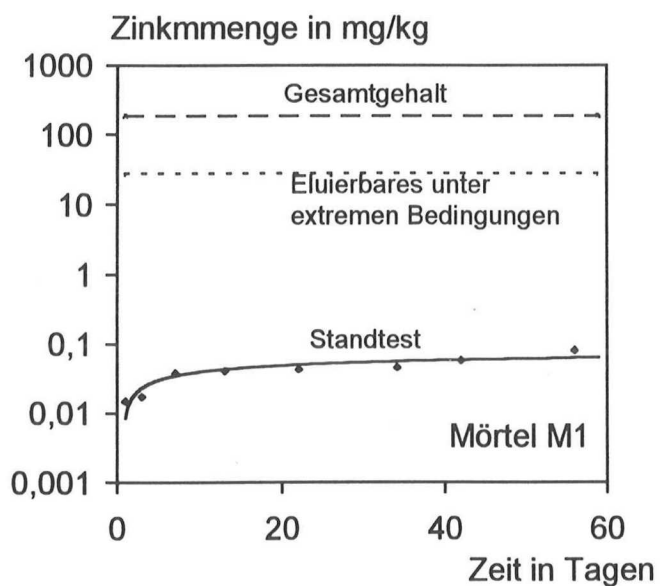


**Bild B8:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Chrommengen; B4

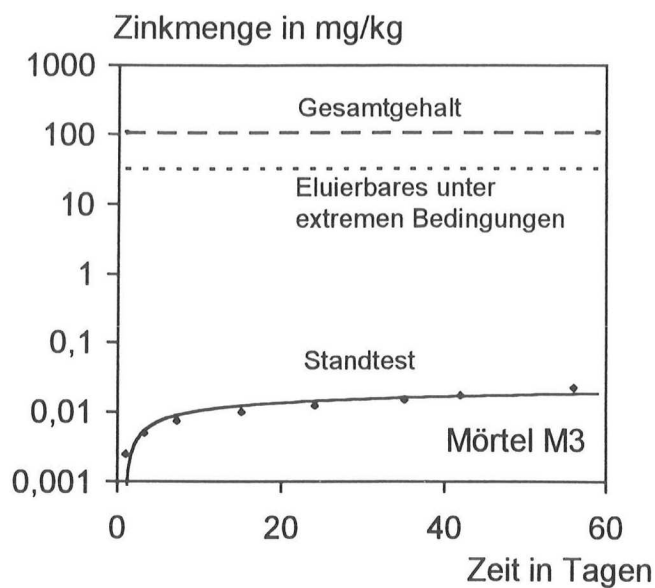




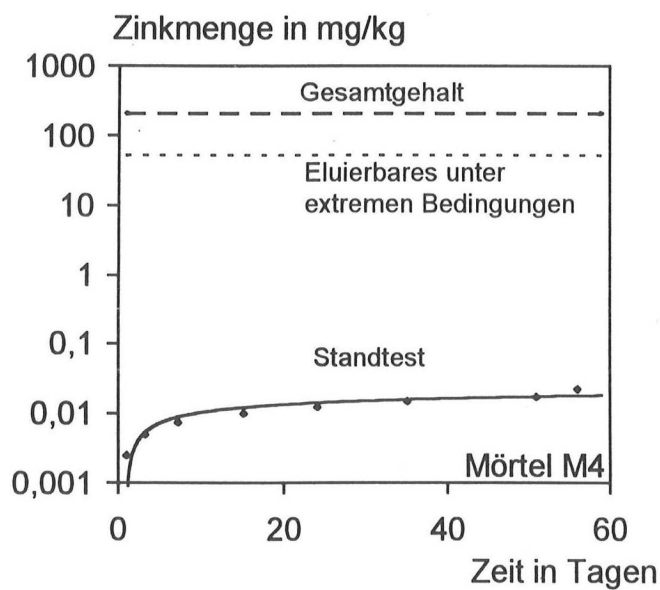
**Bild B9:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; M0



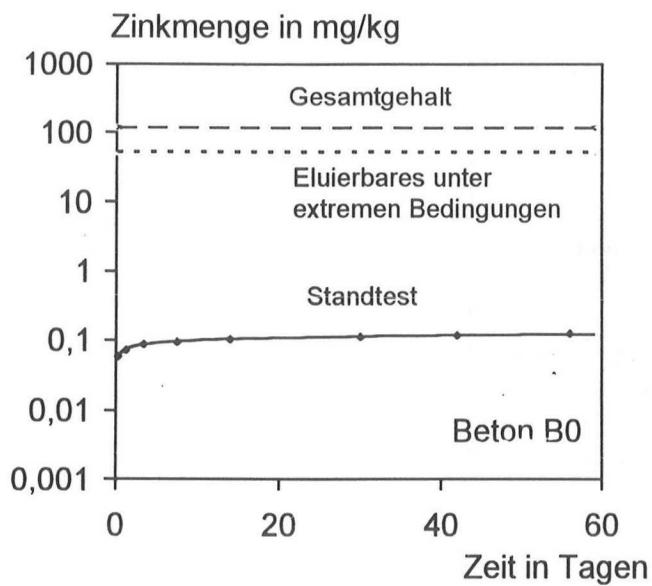
**Bild B10:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; M1



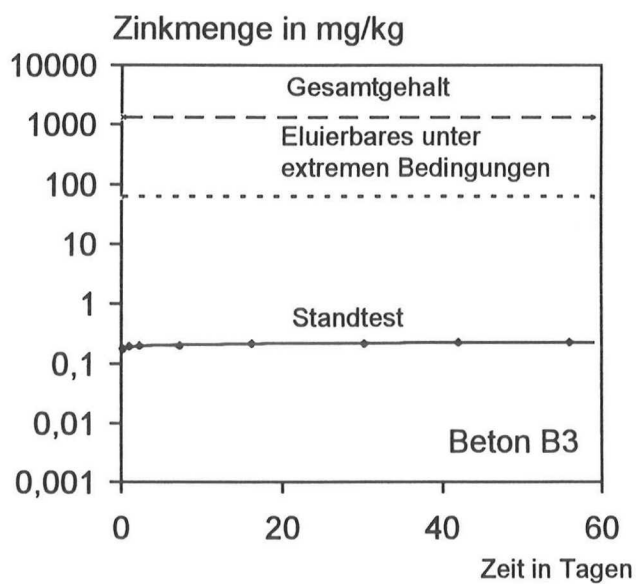
**Bild B11:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; M3



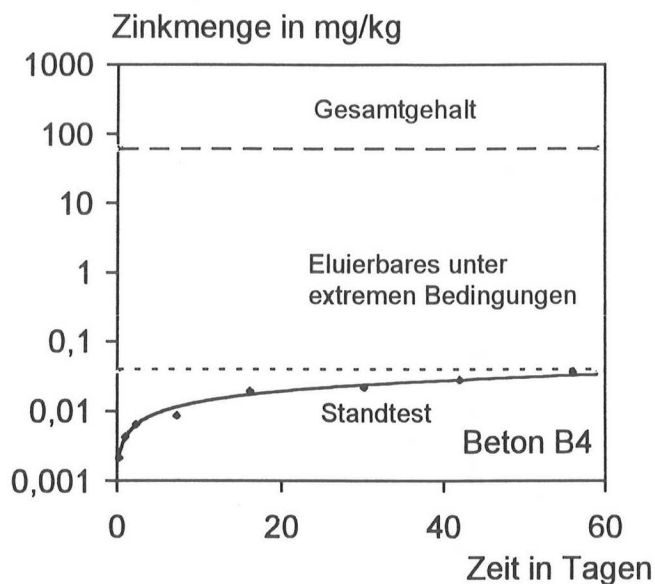
**Bild B12:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; M4



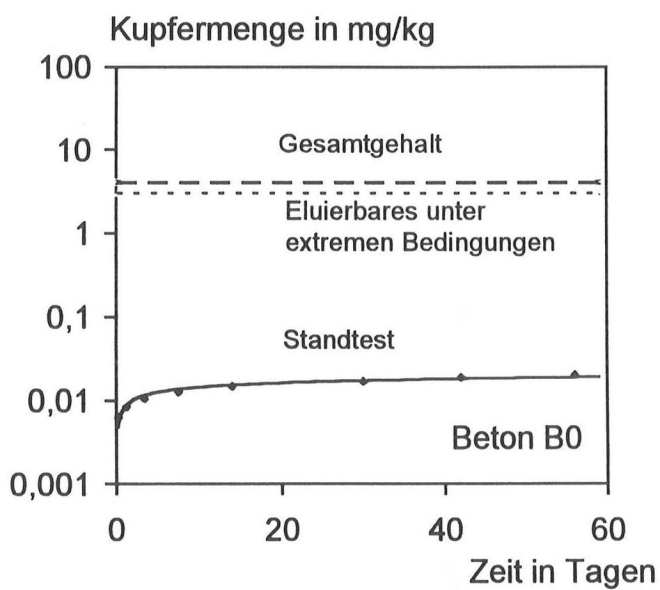
**Bild B13:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; B0



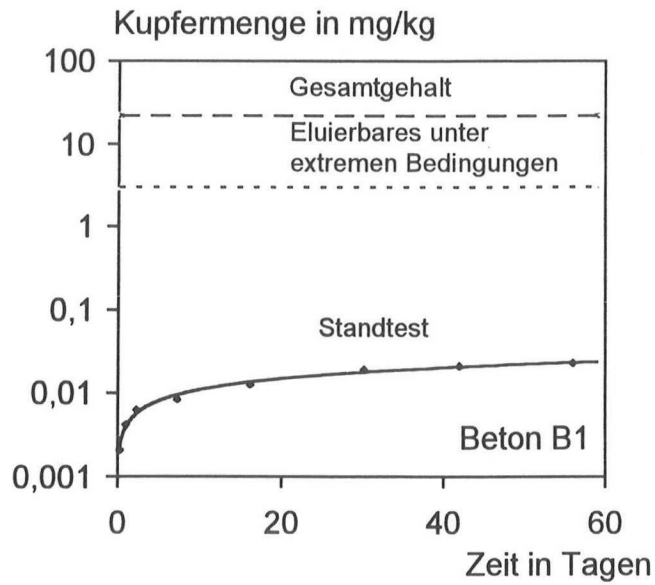
**Bild B14:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; B3



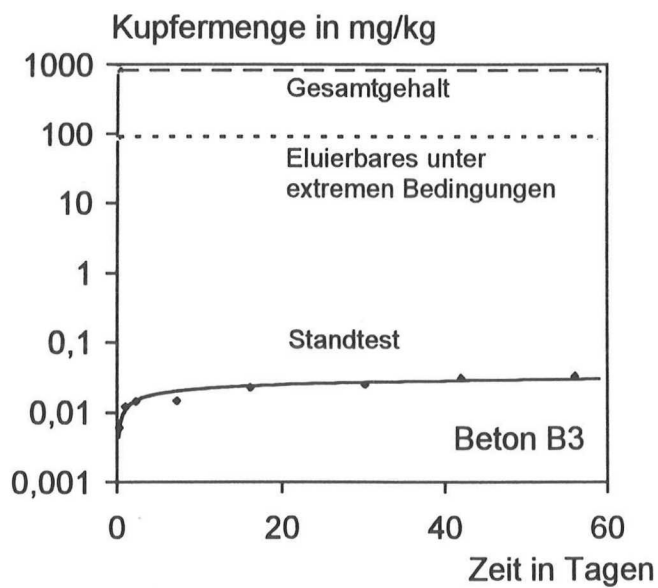
**Bild B15:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Zinkmengen; B4



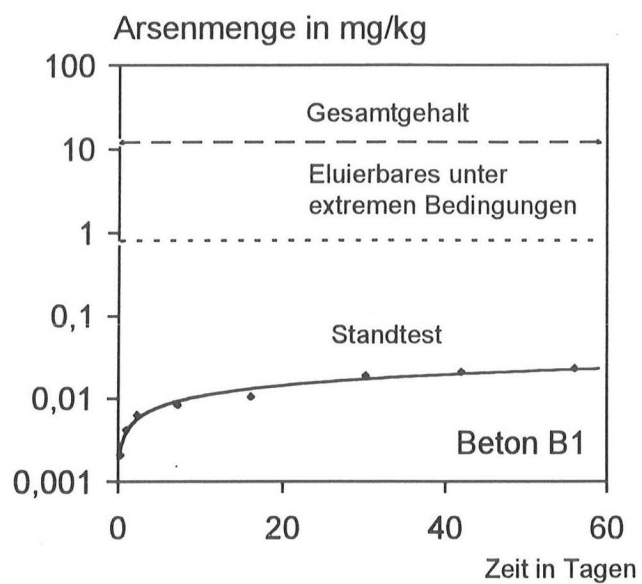
**Bild B16:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Kupfermengen; B0



**Bild B17:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Kupfermengen; B1



**Bild B18:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Kupfermengen; B3



**Bild B19:** Untersuchungsergebnisse aus dem Standtest; ausgelaugte Arsenmengen; B1

## **ANHANG C: PARAMETERSTUDIE**

### **C1 EINLEITUNG**

Im Rahmen dieser Parameterstudie sollten die optimalen Prüfbedingungen für die Auslaugung unter extremen Bedingungen ermittelt werden. Mit Hilfe dieses Verfahrens sollen im Rahmen dieses Projektes verwendeten Materialien charakterisiert werden. Dazu sollte der Einfluß der Auslaugdauer, des pH-Wertes und der Korngröße des zu eluierenden Materials auf die Auslaugraten unter extremen Bedingungen untersucht werden.

Die Auslaugraten wurden nach einem Laborverfahren in Anlehnung an die niederländische Norm NEN 7341 /C2/ bestimmt. Danach wurde das zu untersuchende Material auf eine bestimmte Korngröße aufgemahlen und in einem Verhältnis von Eluent zu Feststoff L/S = 100 mit deionisiertem Wasser versetzt. Der pH-Wert des Auslaugmediums (Eluenten) wurde über die gesamte Auslaugdauer durch Zugabe von Säure (HNO<sub>3</sub>) bzw. Lauge (NaOH) konstant gehalten. In den gewonnenen Eluaten wurden die Gehalte an Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, Hg, As und Tl analysiert.

### **C2 UNTERSUCHUNGEN**

#### **C2.1 Einfluß der Auslaugdauer**

Der Einfluß der Auslaugdauer auf die Auslaugmengen wurde am Beispiel der Flugasche mit höherem Spurenelementgehalt (SFA1) untersucht. Das Material wurde auf eine Korngröße < 125 µ aufgemahlen. Es wurden folgende Auslaugzeiten gewählt:

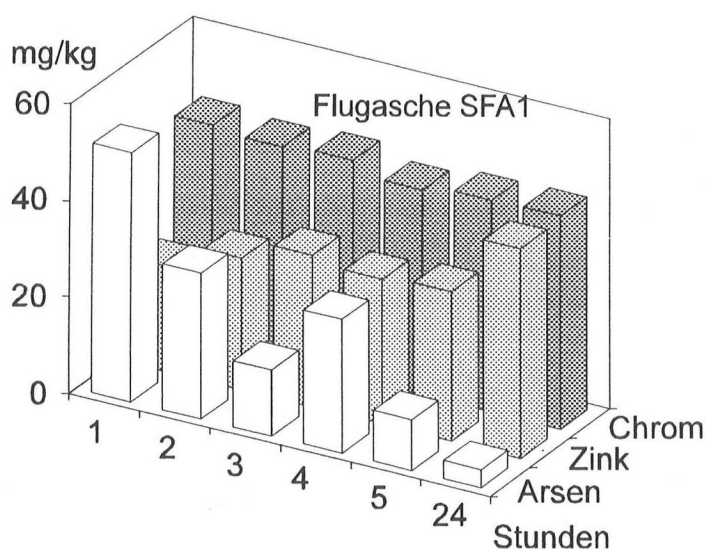
1 h, 2 h, 3 h, 4 h, 5 h und 24 h.

Der pH-Wert wurde über die gesamte Auslaugdauer konstant auf pH = 4 eingestellt. Bild C1 zeigt die Versuchsergebnisse am Beispiel des Arsens, Zinks und Chroms. In Tabelle C1 sind die Untersuchungsergebnisse zusammengestellt.



**Tabelle C1:** Zeitliche Abhängigkeit der eluierbaren Mengen; SFA1 (pH = 4; <math>< 125 \mu</math>)

Prüfgröße		ausgelaugte Mengen nach					
		1 h	2 h	3 h	4 h	5 h	24 h
		mg/kg					
1		2	3	4	5	6	7
Arsen,	As	52	30	14	28	10	3,7
Thallium,	Tl	-	-	-	-	-	-
Chrom,	Cr	45	44	45	43	44	35
Zink,	Zn	22	27	31	25	31	40
Blei,	Pb	0,9	1,1	1,0	0,7	0,6	0,8
Cadmium,	Cd	0,7	0,6	0,7	0,6	0,6	0,5
Quecksilber,	Hg	-	-	-	-	-	-
Nickel,	Ni	4,9	6,1	7,2	6,1	7,5	7,6
Barium,	Ba	30	36	43	30	38	35
Kupfer,	Cu	11	13	14	11	13	11



**Bild C1:** Abhängigkeit der Auslaugmengen von der Dauer der Auslaugung am Beispiel der Flugasche SFA1

In der Regel wurden die höchsten Auslaugmengen schon nach kurzer Zeit (bereits nach einer Stunde oder spätestens nach 4 Stunden) erreicht. Beim Arsen nahmen die Auslaugmengen mit zunehmender Auslaugdauer im Gegensatz zu den anderen Spurenelementen

stark ab. Anscheinend bildet Arsen mit anderen ausgelaugten Stoffen im Eluat unlösliche Verbindungen. Aufgrund der Ergebnisse wurde bei den folgenden Versuchen die Auslaugdauer auf eine Stunde begrenzt.

## C2.2 Einfluß des pH-Wertes auf die Auslaugmengen

Zur Überprüfung des Einflusses des pH-Wertes auf die Auslaugmengen wurde das Material jeweils auf eine Korngröße  $< 125 \mu$  gemahlen und das Auslaugverfahren bei folgenden vier pH-Werten durchgeführt:

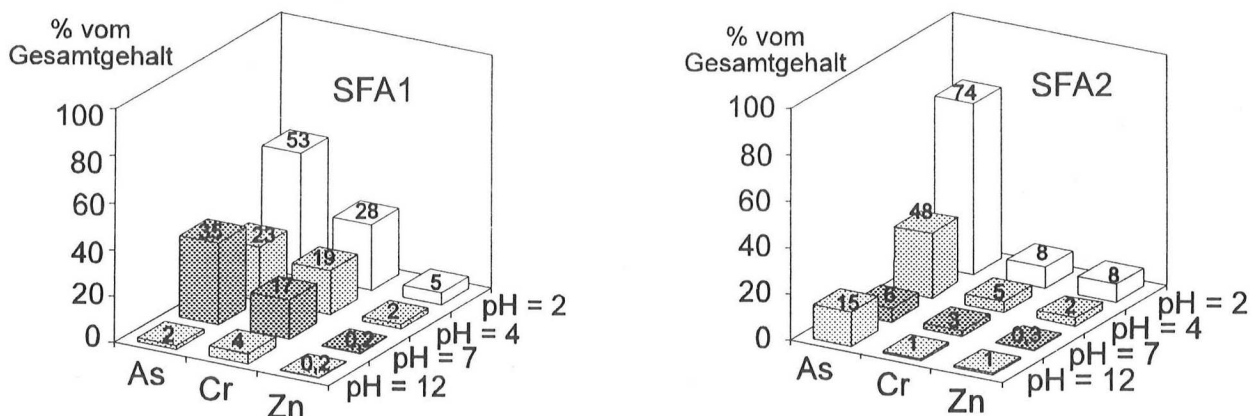
pH = 2,  
 pH = 4,  
 pH = 7,  
 pH = 12.

**Tabelle C2:** Eluierbare Schwermetallmengen in Abhängigkeit vom pH-Wert; (Korngröße  $< 125 \mu$ , Auslaugdauer 1 h)

Prüfgröße	SFA1				SFA2				CEM I 32,5 R			
	ausgelaugte Mengen bei pH											
	2	4	7	12	2	4	7	12	2	4	7	12
	mg/kg											
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Arsen, As	117	52	79	3,9	237	155	4,2	10	1,4	0,2	0,6	0,0
Thallium, Tl	1,8	-	0,6	0,4	0,6	1,4	0,4	0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Chrom, Cr	67	45	40	10	20	15	7,2	2,5	43	34	32	7,8
Zink, Zn	55	22	2,5	1,6	45	9	1,5	4,5	250	44	0,7	0,7
Blei, Pb	13	0,9	2,5	1,6	15	0,7	1,0	6,1	7,9	0,8	2,3	1,9
Kobalt, Co	2,3	2,1	0,3	< 0,1	8,1	7,2	1,0	0,2	4,1	1,1	0,1	< 0,1
Cadmium, Cd	0,6	0,7	0,1	0,1	0,6	0,1	0,1	0,0	0,5	0,1	0,0	0,1
Quecksilber, Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Nickel, Ni	7,7	4,9	0,4	< 0,1	14	3,3	1,0	< 0,1	14	6,3	3,5	0,0
Barium, Ba	78	30	7,8	18	57	20	18	17	149	135	114	18
Kupfer, Cu	19	11	0,5	0,3	79	28	0,6	0,7	60	1,1	0,1	0,3

Es wurden zunächst der Portlandzement und die beiden Flugaschen SFA1 und SFA2 untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Tabelle C2 zusammengestellt.

In Bild C2 sind die Ergebnisse für die beiden Flugaschen dargestellt. Dabei wurde jeweils der prozentuale Anteil der ausgelaugten Mengen vom Gesamtgehalt aufgetragen. Die höchsten Auslaugmengen wurden erwartungsgemäß bei  $\text{pH} = 2$  festgestellt. Mit steigendem  $\text{pH}$ -Wert nehmen die Auslaugmengen ab und bei  $\text{pH} = 12$  wurden für die einzelnen Elemente jeweils nur sehr geringe Anteile der Gesamtmenge ausgelaugt. Allerdings sind beim Arsen und beim Zink bei  $\text{pH} = 12$  noch merkliche Mengen nachweisbar, was auf die relativ gute Löslichkeit dieser Elemente bei hohen  $\text{pH}$ -Werten zurückzuführen ist (amphoterer Verhalten).



**Bild C2:** Abhängigkeit der Auslaugmengen vom  $\text{pH}$ -Wert (Auslaugdauer 1 h)

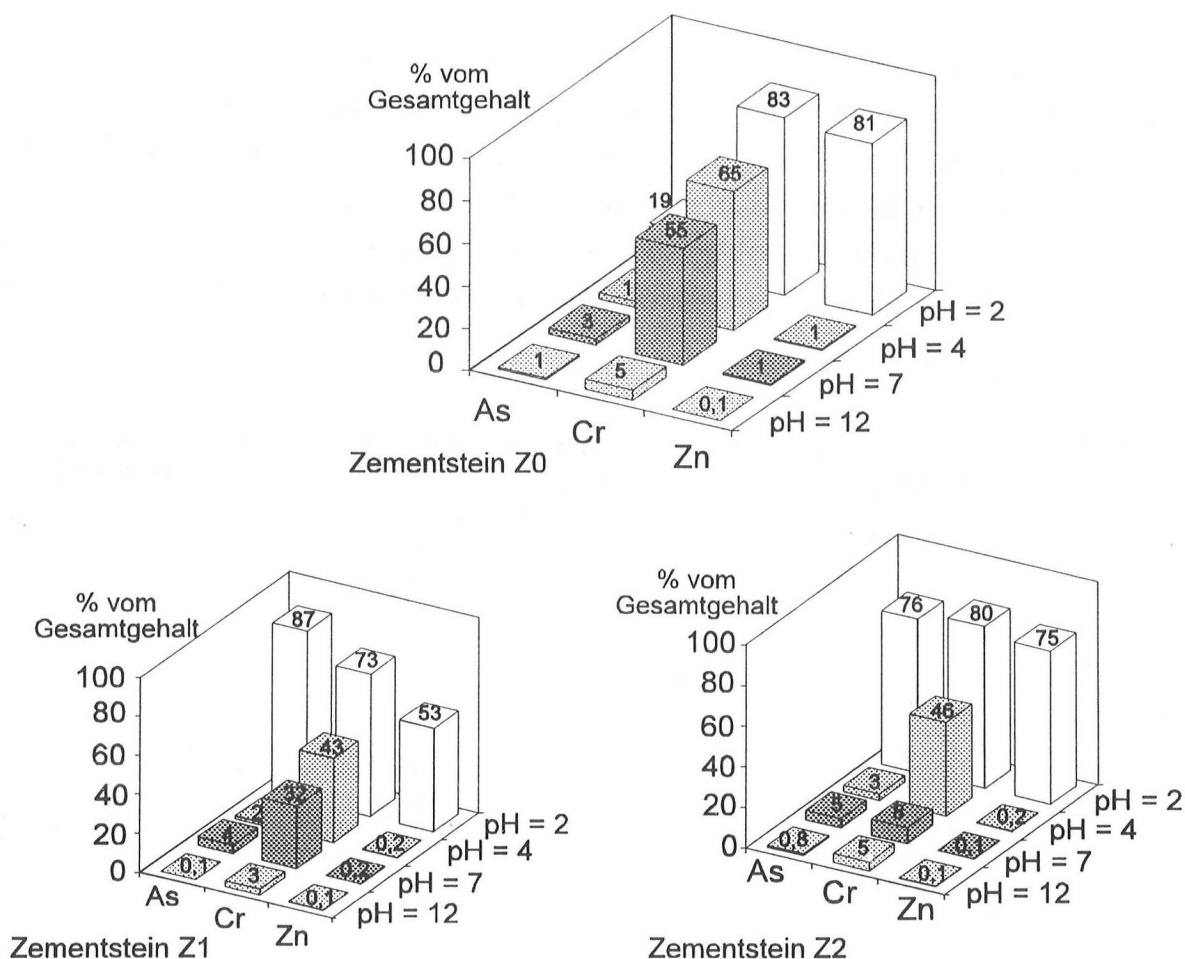
Auch die Zementsteine Z0, Z1 und Z2 wurden hinsichtlich der  $\text{pH}$ -Wert-Abhängigkeit der Auslaugung untersucht. Die Untersuchungsergebnisse sind der Tabelle C3 zu entnehmen. Die Ergebnisse sind für das Arsen, Chrom und Zink in Bild C3 dargestellt. Wieder wurde der prozentuale Anteil der ausgelaugten Mengen vom Gesamtgehalt aufgetragen.

Generell wurden für die Elemente Arsen, Chrom und Zink bei einem  $\text{pH}$ -Wert von  $\text{pH} = 2$  relativ hohe Mengen ausgelaugt. Speziell für Chrom und Zink sind die ausgelaugten Anteile sehr viel höher als bei den Flugaschen. Dies deutet darauf hin, daß die Hauptmenge an Chrom und Zink aus dem Zement kommt. Für Arsen ist der ist der ausgelaugte Anteil aus dem Zementstein Z1 und Z2 größer als aufgrund der Werte für die Flugaschen und für Z0 erwartet. Vermutlich hat eine chemisch Reaktion im Zementstein stattgefunden, die das Arsen in eine lösliche Form umwandelt. Mit steigendem  $\text{pH}$ -Wert nehmen die auslaugbaren Anteile vom Gesamtgehalt stark ab, was auf die gute Einbindung der Spurenelemente in eine

Zementmatrix (chemische und physikalische Fixierung) hindeutet /C1, C3, C4/. Dies gilt nicht für das Chrom, das auch bei einem pH-Wert von  $\text{pH} = 7$  noch in großen Mengen ausgelaugt wird. Dabei kommt die Hauptmenge aus dem Zement. Durch den Zusatz von Flugasche werden die Anteile an eluierbaren Chrom verringert. Die Ergebnisse zeigen, daß durch den Vergleich der ausgelaugten Mengen aus einer Zementsteinmatrix und aus dem nicht gebundenen Zustand eine Bewertung der Fixierung durch den Hydratationsprozeß vorgenommen werden kann.

**Tabelle C3:** Aus Zementsteinen mit und ohne Flugaschezusatz eluierbare Schwermetallmengen in Abhängigkeit vom pH-Wert ( $<125 \mu$ , Auslaugdauer 1 h)

		Z0				Z1				Z2			
Bindemittel		CEM I 32,5 R											
Zusatzstoff		-				SFA1				SFA2			
w/(z+0,5f)		0,5											
pH-Wert		2	4	7	12	2	4	7	12	2	4	7	12
Bestandteil		mg/kg											
1		2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Arsen, As		2,1	0,1	0,3	0,1	54	0,9	2,6	<0,1	9,8	0,4	0,6	0,1
Thallium, Tl		<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	0,7	0,2	0,2	0,2	0,6	0,1	0,1	<0,1
Chrom, Cr		105	82	69	6,1	111	65	49	5,2	112	65	11	6,4
Zink, Zn		199	1,3	1,7	0,1	283	0,9	1,0	0,3	223	0,7	<0,5	<0,5
Blei, Pb		12	<0,1	<0,1	<0,1	74	<0,1	<0,1	<0,1	29	<0,1	0,4	<0,1
Kobalt, Co		4,3	0,5	0,3	0,4	7,3	0,6	0,4	0,3	8,5	0,5	0,4	0,2
Cadmium, Cd		0,3	<0,1	<0,1	<0,1	3,4	<0,1	<0,1	<0,1	0,6	<0,1	<0,1	<0,1
Quecksilber, Hg		<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1
Nickel, Ni		15	2,3	0,5	0,3	21	3,3	0,5	0,4	22	1,8	0,2	0,4
Barium, Ba		139	104	82	56	145	116	66	77	135	93	114	75
Kupfer, Cu		15	0,3	1,3	0,1	31	0,2	0,3	0,4	34	0,6	0,5	0,5



**Bild C3:** Abhängigkeit der Auslaugmengen vom pH-Wert (Auslaugdauer 1 h)

### C2.3 Einfluß der Korngröße

Um den Einfluß der Korngröße auf die Auslaugmengen zu bestimmen, wurden die Untersuchungen bei einem konstanten pH-Wert von pH = 4 und mit einer Auslaugdauer von einer Stunde durchgeführt. Es wurden die Zementsteine Z 1 (Zementstein mit Flugasche SFA 1)

und Z 2 (Zementstein mit Flugasche SFA2) untersucht. Der w/z-Wert bzw. w/(z + 0,5 f) betrug 0,5. Die Zementsteine wurden im Alter von 28 d gemahlen und auf folgende Korngrößen fraktioniert:

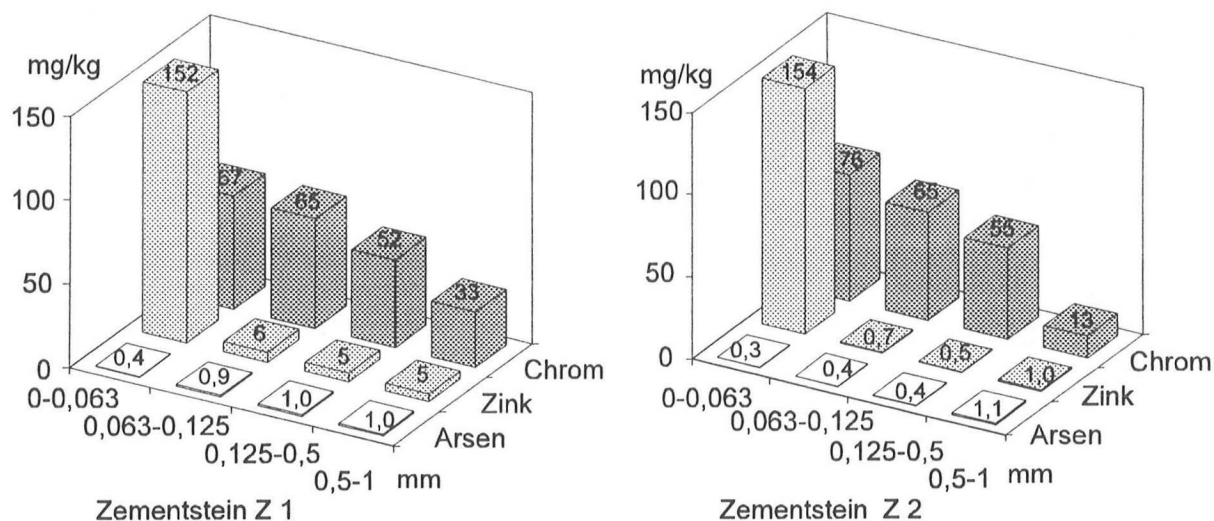
0,500 - 1,000 mm,  
 0,125 - 0,500 mm,  
 0,063 - 0,125 mm,  
 0,000 - 0,063 mm.

In Tabelle C4 sind die Ergebnisse der Untersuchungen zusammengefaßt. Bild C4 zeigt die Ergebnisse der Untersuchungen für die Elemente Arsen, Zink und Chrom.

**Tabelle C4:** Aus Zementsteinen eluierbare Schwermetallmengen in Abhängigkeit von der Korngröße

		Z0				Z1				Z2			
Bindemittel		CEM I 32,5 R											
Zusatzstoff		-				SFA1				SFA2			
w/(z+0,5f)		0,5											
Korngröße		0 - 0,063	0,063 - 0,125	0,125 - 0,5	0,5 - 1,0	0- 0,063	0,063 -0,125	0,125 - 0,5	0,5 - 1,0	0- 0,063	0,063 -0,125	0,125 - 0,5	0,5 - 1,0
Bestandteile		mg/kg											
1		2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Arsen,	As	< 0,1	0,1	< 0,1	0,9	0,4	0,9	1,0	1,0	0,3	0,4	0,4	1,1
Thallium,	Tl	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,7	0,2	0,2	0,2	0,3	0,1	0,1	0,1
Chrom,	Cr	83	82	78	14	67	65	52	33	76	65	55	13
Zink,	Zn	113	1,3	19	4,3	152	0,9	5,2	4,7	154	0,7	0,5	1,0
Blei,	Pb	< 0,1	< 0,1	0,2	0,2	4,3	< 0,1	0,1	0,2	6,3	< 0,1	< 0,1	0,2
Kobalt,	Co	2,3	0,5	0,6	0,4	3,8	0,6	0,5	0,4	5,8	0,5	0,2	0,40
Cadmium,	Cd	0,2	< 0,1	< 0,1	< 0,1	2,9	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,4	0,1	0,1	0,10
Quecksilber,	Hg	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Nickel,	Ni	11	2,3	3,7	0,5	14	3,3	1,9	1,7	18	1,8	0,8	0,6
Barium,	Ba	118	105	120	76	79	116	99	82	80	93	88	68
Kupfer,	Cu	2,6	0,3	0,7	0,5	8,5	0,2	0,5	0,6	21	0,6	0,3	0,5





**Bild C4:** Abhängigkeit der Auslaugmengen von der Korngröße (Auslaugdauer 1 h)

Erwartungsgemäß nehmen die Auslaugmengen mit abnehmender Korngröße zu. Lediglich beim Arsen wurden mit abnehmender Korngröße abnehmende Auslaugmengen festgestellt. Dies korreliert mit den Ergebnissen der Versuche zur zeitlichen Abhängigkeit der Auslaugung. Arsen bildet im Laufe der Auslaugzeit anscheinend unlösliche Verbindungen, so daß die Auslaugmenge mit zunehmender Auslaugdauer abnimmt. Anscheinend werden eben diese Verbindungen bei den kleineren Korngrößen schneller gebildet, so daß dies das Verhalten des Arsens erklärt.

## C2.4 Zusammenfassung

Die vorgestellten Versuche haben den großen Einfluß der Versuchsparameter (Auslaugdauer, pH-Wert des Eluenten, Korngröße des Materials) auf die ausgelaugten Mengen bestätigt. Die Ergebnisse sind auch auf andere Auslaugtests übertragbar. Diese Versuchsparameter müssen also in einem standardisierten, allgemein anwendbaren Verfahren genau festgeschrieben werden.

Die höchsten ausgelaugten Menge ergeben sich bei einem pH-Wert von  $\text{pH} = 2$  und einer Korngröße  $< 0,125$ . Dies gilt nicht für Arsen, wo die größten Mengen bei einer Korngröße von  $0,5-1$  mm ausgelaugt wurden. Als Auslaugdauer ist eine ist eine Zeit von einer Stunde ausreichend, da nach dieser Zeit die sich Ergebnisse mit zunehmender Auslaugdauer kaum verändern (die Schwankungen liegen im Rahmen der Analysengenauigkeit). Für Arsen wurden die größten Mengen nach einer Stunde ausgelaugt.



Als Versuchsbedingungen zur Charakterisierung von Baumaterialien wurden aufgrund der Untersuchungsergebnisse eine Auslaugdauer von einer Stunde, eine Korngröße der Materialien von  $< 0,125$  mm gewählt. Als pH-Wert wurde für die Versuche nicht  $\text{pH} = 2$  sondern  $\text{pH} = 4$  gewählt, weil ein pH-Wert von 2 in natürlichen Wasser nicht vorkommt, während ein pH-Wert von 4 durchaus angetroffen wird.

### C3 LITERATUR

- /C1/ Bishop, P. L. ; Gress, D. L. ; Olofsson, J. A.: Cement Stabilization of Heavy Metals: Leaching Rate Assessment. Michigan/USA : Annual Arbor Science Publication, 1982. - In: Proceedings of Mid-atlantic Industrial Waste Conference 14th, S. 459-467
- /C2/ NEN 7341 (Draft) 10.92: Leaching characteristics of building and solid waste materials - Leaching tests : Determination of the leaching availability of inorganic compounds
- /C3/ Sprung, S.; Rechenberg, W.: Einbindung von Schwermetallen in Sekundärstoffen durch Verfestigen mit Zement. - In: Beton 38 (1988), Nr.5, S. 193-198
- /C4/ Uchikawa, H ; Tsukiyama, K. ; Mihara, Y.: Über die Bindung schädlicher Elemente durch einen hochwertigen Spezialzement. In: Zement-Kalk-Gips 31 (1978), Nr. 4, S. 195-203

Telefon:

Vermittlung (02 41) 80-51 00

Durchwahl (02 41) 80-51 06

Datum 22.11.1995  
Hb/EE-F 414  
(f-414ke.doc)

**Summary of the research report**

**„Environmental compatibility of  
cement based materials“**

A possible loading of the environment, for cement-based building materials with or without the use of industrial by-products and/or recycling materials, occurs mainly because heavy metals and/or deleterious salts are leached. The knowledge of the time-dependent leaching behaviour on a building or building part, under given and/or expected conditions, is necessary in order to be able to assess the probable effect on the environment. This information can be obtained in the laboratory from so-called leaching tests.

The results of the examinations of this research project assert that the leaching of environment-relevant components (in this case heavy metals) is to a large extent independent of the total amount of these components in the building material. The mobility (solubility) of the substances considered and the matrix's resistance to diffusion are decisive in the leaching process. The combination of these influence the size of the effective coefficient of diffusion in the cement matrix, which can be determined in practice-oriented leaching tests.

A combination of various leaching tests is necessary in order to obtain enough information on the leaching behaviour of a material. A uniform test method for basic tests should consist of a system of the following tests:

- determination of the total content of the test-relevant substances,
- determination of the availability (mobility),
- practice-oriented leaching tests (leaching rates under real conditions).

Practice-oriented leaching tests are understood as „stand tests“. Conclusions on the long-term leaching behaviour of building materials can be drawn from the combination of the results of these tests. The DEV-S4 method neither supplies information on the time-dependent release rate, nor can it fulfill the requirements of an availability test. The available fraction of the total concentration is nevertheless required in order to be able to calculate the effective coefficients of diffusion from the results of a stand test, since the environment-relevant substances considered are, as a rule, not totally soluble in the leachant. The development of an availability test that is relevant to cement-based building materials is therefore necessary.

The influence of test parameters, as well as that of mortar/concrete technical parameters on the leaching rate, is examined in this research project. It can be shown that the leaching behaviour of cement-based building materials is described well by practice-oriented leaching tests (stand tests). The determination of time-dependent leaching enables the calculation of the rates of emission which represent a sensible known value that can be used to judge the leaching behaviour of cement-based building materials.

The examination results in question show that cement-based building materials that are produced using standardized substances, or substances that are permitted by building authorities, do not represent a danger to soil or to groundwater.

It should be the aim of future activities to standardize a leaching test (compliance test), with which the dominating leaching mechanism (diffusion) can be comprehended, on the basis of the results at hand. The cement-based building materials can then be evaluated objectively with the help of the results of these leaching tests.

Telefon:

Vermittlung (02 41) 80-51 00

Durchwahl (02 41) 80-51 06

Datum 22.11.1995

Hb/EE-F 414

(f-414ke.doc)

### Résumé du rapport

#### „Compatibilité à l'environnement des matières de construction à base de ciment“

Les matériaux de construction à base de ciment, avec et sans utilisation de sous-produits industriels et/ou de matériaux de recyclage, présentent un risque potentiel envers l'environnement, notamment par lessivage de métaux lourds et/ou de sels nocifs. La connaissance du comportement du lessivage dans les conditions en présence ou bien encore dans les conditions escomptées sur l'ouvrage ou parties de l'ouvrage est une condition préalable pour estimer les effets éventuels sur l'environnement. Ces informations peuvent être obtenue en laboratoire par des essais de lessivage.

Les résultats de cette recherche montrent que le lessivage des composants des matériaux à base de ciment jouant un rôle au niveau de l'environnement est largement indépendant de la quantité de ces composants dans le matériau. Le lessivage est dû avant tout à la mobilisation (solubilité) de la substance considérée et de la résistance à la diffusion de la matrice ciment. C'est l'effet combiné de ces facteurs qui détermine en dernier ressort la valeur du coefficient de diffusion effectif dans la matrice, qui peut être établie à l'aide d'essais de lessivages effectués dans des conditions proches de la réalité.

En Allemagne, il n'existe actuellement aucune procédure normalisée ou prescrite de contrôle du comportement au lessivage des matériaux à base de ciment. En règle générale, les essais sont effectués conformément à la DIN 38 414 S-4, en abrégé DEV-S4. Cette procédure initialement prévue pour l'analyse de boues etc. se prête mal à l'étude de matériaux denses.

Pour obtenir des informations suffisantes sur le comportement au le lessivage d'une substance, il faut mettre en oeuvre une combinaison de plusieurs tests de lessivage. Une procédure uniforme pour l'acquisition de données fondamentales (basic tests) doit être basée sur un système englobant les essais suivants:

- détermination la teneur totale de la substance objet de l'essai,
- détermination de la disponibilité (mobilisation),
- essais de lessivage dans des conditions proches de la réalité (taux de dégagement dans des conditions réelles).

Par essais proches de la réalité, on entend des essais de stabilité. La combinaison des résultats fournis par ces essais permet de tirer des conclusions sur le comportement au lessivage à long terme des matériaux. La procédure DEV-S4 ne fournit aucune information sur le taux de dégagement en fonction du temps et ne remplit pas les conditions attendues d'un test de disponibilité. La partie disponible de la concentration globale est cependant nécessaire pour pouvoir calculer un coefficient de diffusion effectif depuis les résultats fournis par un test de stabilité, parce qu'en règle générale, les substances importantes au niveau de l'environnement ne sont pas entièrement solubles dans l'éluant. Il faut donc mettre au point un essai de disponibilité acceptable pour les matériaux à base de ciment.

Dans la présente recherche, l'influence des paramètres analysés ainsi que les paramètres techniques mortier/béton sur les taux de lessivage a été étudiée. On a pu montrer que le comportement au lessivage dans le temps des matériaux à base de ciment se laisse bien décrire par des tests de lessivage (essais de stabilité) proches de la réalité. L'établissement du lessivage en fonction du temps permet de calculer les coefficients effectifs de diffusion, qui sont un bon critère d'essai permettant d'évaluer le comportement au lessivage des matériaux à base de ciment.

Les résultats des essais présentés montrent que les matériaux à base de, dont les composants sont normalisés et/ou homologués par les autorités compétentes, ne sont la source d'aucun danger pour le sol et pour les eaux souterraines.

Un objectif futur recommandé consisterait à normaliser un essai de lessivage (compliance test) des matériaux à base de ciment sur la base des résultats de la présente recherche et permettant de déterminer le mécanisme dominant du lessivage (diffusion). La mise en oeuvre de ces essais de lessivage permettrait d'effectuer une analyse objective des matériaux à base de ciment.