

Langzeitverhalten von mit Bindemittel behandelten Böden und Baustoffen hinsichtlich des Auslaugverhaltens von Schadstoffen

FA 5.157

Forschungsstelle: RWTH Aachen, Institut für Bauforschung (ibac) (Prof. Dr.-Ing. W. Brameshuber)

Bearbeiter: Lin, X./Vollpracht, A./Nebel, H.

Auftraggeber: Bundesministerium für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung, Bonn

Abschluss: Dezember 2011

1 Einleitung

Schadstoffbelastete Böden und Baustoffe können nach TL Gestein-StB und TL BuB E-StB im Erd- und Straßenbau eingesetzt werden. Abhängig von der Schadstoffbelastung sind zusätzliche technische Sicherungsmaßnahmen, z. B. Behandlung mit Bindemitteln, notwendig. Der Bindemittelgehalt ist von der Schadstoffbelastung und der Bodenart abhängig. Generell soll er zur Reduzierung der Eluierbarkeit umweltrelevanter Inhaltsstoffe 3 M.-% bezogen auf die Masse des trockenen Bodens bzw. Baustoffs nicht unterschreiten [1] [3]. Ziel der Behandlung mit Bindemitteln ist es, die jeweils vorgegebene Eluatkonzentration, z. B. RC-2 bzw. RC-1, gemäß den TL Gestein-StB einzuhalten bzw. die Mobilität und somit die Auslaugbarkeit umweltrelevanter Inhaltsstoffe zu reduzieren. Dabei ist nachzuweisen, dass die erzielte Fixierung der Schadstoffe dauerhaft ist. Zielsetzung dieses Forschungsvorhabens war es daher, die in der internationalen Literatur beschriebenen Erkenntnisse zur Einbindung von Schadstoffen durch die Bindemittel Zement und Kalk im Hinblick auf das Langzeitverhalten zusammenzustellen und auszuwerten. Dieses Projekt befasst sich im Wesentlichen mit anorganischen Schadstoffen. Betrachtet wurden alle anorganischen umweltrelevanten Parameter, Antimon, Arsen, Barium, Blei, Bor, Cadmium, Chrom, Kobalt, Kupfer, Molybdän, Nickel, Quecksilber, Selen, Thallium, Vanadium, Zink, Chlorid, Cyanid, Fluorid und Sulfat, für welche von der Länderarbeitsgemeinschaft Wasser eine Geringfügigkeitsschwelle benannt wurde (s. [2]).

2 Auslaugverhalten umweltrelevanter Parameter

Die wichtigsten Mechanismen der Freisetzung umweltrelevanter Parameter sind Wash-off-effect, Auflösung und Diffusion. Bei monolithischen Baustoffen spielt die Diffusion der Schadstoffe im Porensystem eine wesentliche Rolle, während bei körnigen Materialien ein wesentlich größerer Prozentsatz der Schadstoffe an der Oberfläche der Körner vorliegt. Der Einfluss der Diffusion auf die zeitliche Entwicklung der Freisetzung ist daher geringer. Zudem können die Milieubedingungen erheblich von denen der Porenlösung abweichen.

Die mit Bindemittel behandelten Böden und Baustoffe sind poröser als Beton. Daher können die Erfahrungen von Beton oder verfestigtem Abfall mit dichtem Gefüge nur teilweise auf mit Bindemittel behandelte Böden und Baustoffe übertragen werden. Die chemischen Mechanismen der Einbindung sind jedoch identisch. Das Auslaugverhalten von zementgebundenen Baustoffen und die Löslichkeit der umweltrelevanten Stoffe in Abhängigkeit vom pH-Wert können Hinweise auf diese Einbindung geben. Daher werden in der Literatur zahlreiche sog. pH_{stat} -Versuche an gebrochenen Materialien in einem pH-Bereich von pH 2 bis pH 14 beschrieben. Diese Versuche liefern auch Anhaltspunkte für die Löslichkeit bei pH-Wert-Änderungen.

Die in unbehandelten Böden und Baustoffen enthaltenen Spurenelemente weisen sehr häufig ein amphoterer Lösungsverhalten auf, d. h., sie sind im sauren und im stark alkalischen

pH-Bereich verstärkt löslich. Das Minimum liegt in der Regel zwischen pH 8 und pH 10. Unter den Elementen aus [2] sind hier Arsen, Blei, Bor, Cadmium, Chrom, Kobalt, Kupfer, Nickel, Selen, Vanadium und Zink zu nennen. Mörtel und Betone zeigen dieses amphotere Lösungsverhalten nur bei wenigen Elementen, ein Beispiel ist Zink. In verfestigten Abfällen verhält sich ein umweltrelevanter Parameter je nach seinen chemischen Eigenschaften und dem Bindemittelgehalt wie bei unbehandelten Materialien, wie bei Mörtel oder die pH-Wert abhängige Löslichkeit liegt zwischen unbehandeltem Material und Mörtel.

Grundsätzlich ist die Löslichkeit der meisten Parameter aus [2] bei zementgebundenen Baustoffen in alkalischem pH-Bereich erheblich geringer als in unbehandelten Böden und Baustoffen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Parameter an den Hydratationsprodukten sorbiert oder im Austausch für Hauptelemente (Calcium, Silizium, Aluminium, Schwefel u. a.) eingebaut werden. Die wesentlichen einbindenden Phasen sind die CSH-Phasen, Ettringit und ggf. Monosulfat. Bei hohen Schwermetallgehalten können auch Mineralneubildungen auftreten, z. B. Powellit ($CaMoO_4$).

Andere Bindemittel wurden in wesentlich geringerem Umfang untersucht als Zement. Grundsätzlich können in mit Kalk behandelten Böden durch die Reaktion zwischen Kalk und Tonmineralen den CSH-Phasen verwandte Verbindungen auftreten, die Immobilisierung war jedoch in den wenigen vorhandenen Literaturquellen weniger erfolgreich als bei Zement. Bei Mischbindemitteln mit Hüttensand, Flugasche und Mikrosilika wurden bei verschiedenen Schwermetallen unterschiedliche Erfolge erzielt. Bei den Parametern Arsen, Blei und Cadmium ist die Immobilisierungseffektivität von Portlandzement > Hüttensand >> Flugasche. Der Parameter Chrom kann durch Behandlung mit Hüttensand besser immobilisiert werden als mit Zement, was auf das niedrigere Redoxpotenzial bei hüttensandhaltigem Bindemittel zurückzuführen sein kann. Hier besteht noch Forschungsbedarf, sowohl im Hinblick auf das Langzeitverhalten, als auch auf die unmittelbare Wirksamkeit.

Inwieweit die chemischen Mechanismen der Einbindung bei mit Bindemittel behandelten Böden und Baustoffen greifen, hängt von der Bindemittelmenge sowie von der Höhe und der Art der Schadstoffbelastung der Böden ab. Unter Umständen kann es zu Beeinträchtigungen der Einbindung oder in Ausnahmefällen sogar zu Mobilisierungen kommen. Ein Beispiel ist Blei, das bei sehr hohen Gehalten die Hydratation beeinträchtigen kann und gleichzeitig durch den hohen pH-Wert verstärkt gelöst wird. Bei üblichen Bleigehalten ist die Einbindung dagegen sehr effektiv.

Die Wirksamkeit der Verfestigung mit Bindemitteln kann in Kurzzeitversuchen mit vergleichsweise wenig Aufwand überprüft werden. Dabei ist darauf zu achten, dass realistische Prüfbedingungen gewählt werden. In Bezug auf das Langzeitverhalten ist zu sagen, dass in aller Regel die Freisetzung mit der Zeit zurückgeht. Dies konnte sowohl für monolithisches als auch für körniges Material in diversen Forschungsprojekten unter Laborbedingungen demonstriert werden.

3 Einflussfaktoren auf die Freisetzung umweltrelevanter Parameter

Die Freisetzung eines umweltrelevanten Parameters ist neben dem pH-Wert auch von den chemischen bzw. physikalischen Eigenschaften des verfestigten Bodens und äußeren Randbedingungen abhängig. Vor allem ist in mit Bindemittel behandelten Materialien ein dichtes Gefüge für Reduktion der Freisetzung umweltrelevanter Parameter von Bedeutung.

Ein umweltrelevanter Parameter kann in unterschiedlicher Form bzw. Spezies auftreten. Das Auslaugverhalten der verschiedenen Spezies eines Parameters kann sehr unterschiedlich sein. Ein Beispiel ist Chrom, das bei oxidierenden Bedingungen als Cr (VI) und bei reduzierenden Bedingungen als Cr (III) auftritt. Cr (III) kann Aluminium in den Hydratationsprodukten vom Zement ersetzen und dadurch immobilisiert werden. Cr (VI) bzw. CrO_4^{2-} ist leichter löslich und wird im Austausch für Sulfat eingebunden.

Die Konzentrationen umweltrelevanter Parameter werden wesentlich von der Menge und der Zusammensetzung des Eluenten (in der Praxis z. B. Regenwasser oder Grundwasser und im Labor deionisiertes Wasser oder Reinstwasser) beeinflusst. Weiterhin können sich die umweltrelevanten Inhaltsstoffe durch Feucht-Trocken-Zyklen an der Oberfläche anreichern, was zu einer verstärkten Auslaugung führen kann. Außerdem sind jahreszeitliche Temperatur- und Niederschlagsschwankungen zu beachten. Die Temperatur des Grundwassers liegt in Deutschland im Bereich von 9 bis 12 °C. Im Sommer treten häufig hohe Temperaturen und Starkniederschlagsereignisse (lange Wasserbeaufschlagung) auf. Dadurch erhöhen sich die Konzentrationen umweltrelevanter Parameter im Sickerwasser. Hohe Temperaturen führen zu einer verstärkten Diffusion und verringerten Sorption. Kleine Eluentmengen und lange Wasserbeaufschlagung führen zu einer höheren Konzentration.

Im Verlauf der Hydratation wird das Gefüge durch Kristallwachstum dichter. Daher wird die Freisetzung umweltrelevanter Parameter verringert. Allerdings kann eine Verwitterung der Bindemittelmatrix problematisch sein. Wird das Bindemittel z. T. zersetzt und ausgewaschen, so nimmt die Permeabilität zu und der pH-Wert ab. Die umweltrelevanten Parameter, die vorher durch Adsorption oder Einbindung in fester Phase immobilisiert waren, könnten dadurch teilweise mobilisiert werden. Wesentliche Faktoren für die Dauerhaftigkeit sind die Karbonatisierung und ggf. der Zutritt von aggressiven Wässern, die z. B. zu einer pH-Wert-Absenkung führen. Auch eine Schädigung durch gelöste Sulfate ist denkbar (sekundäre Ettringitbildung oder Thaumassitbildung).

Bei der Karbonatisierung wird zunächst Portlandit zu Calciumcarbonat umgewandelt. Nach dem Verbrauch des Portlandits sinkt der pH-Wert und es werden auch die CSH-Phasen angegriffen und zu Calcit umgewandelt. Diese Prozesse können bei Beton sehr langsam ablaufen, in porösen Systemen wie einem verfestigten Boden kann die Karbonatisierung jedoch schneller voranschreiten. Problematisch ist, dass die einbindenden Phasen zersetzt werden. Dies bedeutet jedoch nicht automatisch, dass eine Freisetzung auftritt, da die meisten Schwermetallcarbonate sehr schwer löslich sind. Arsenit kann dagegen als Arsenit mobilisiert werden. Quantitative Prognosen zur Freisetzung können anhand von thermodynamischen Modellrechnungen gemacht werden, Voraussetzung ist jedoch, dass die entscheidenden Reaktionen und chemischen Verbindungen im Modell implementiert sind.

Lösende Angriffe durch saure Wässer sind grundsätzlich problematisch. Einige Metalle lösen sich bereits bei pH-Werten unter 10 verstärkt, andere erst im neutralen Bereich. Eine Beständigkeit bei pH-Werten unter 6 ist jedoch generell nicht gegeben. In Gebieten, wo mit sauren Wässern zu rechnen ist (z. B. Moore), sollten daher keine verfestigten Böden oder Abfälle eingesetzt werden.

4 Prüfverfahren

Die häufigsten angewendeten Laborversuche sind Schütteltests, Trogverfahren, Säulenversuche, Standtests und pH_{stat} -Verfahren. Für die Auswahl eines Prüfverfahrens gilt: Je besser das Prüfverfahren den Randbedingungen des Einsatzgebiets des zu untersuchenden Stoffs angenähert wird, desto eher wird eine zutreffende Aussage über das Gefährdungspotenzial möglich sein. Um eine gute Reproduzierbarkeit zu gewährleisten, stellt ein niedrigeres Wasser-Feststoff-Verhältnis Vorteile dar. Die Gefüge der mit Bindemittel behandelten Böden oder Baustoffe sind meistens durchsickerbar und das Auslaugverhalten ist vorwiegend mit Durchsickerung verbunden. Daher ist der Säulenversuch für diesen Zweck besser geeignet als andere gängige Verfahren. Verfestigte Materialien mit geringer Durchlässigkeit und Materialien mit noch nicht ausgehärtetem Bindemittel sind für den Säulenversuch nicht geeignet. In diesen Fällen können die Materialien alternativ mit Standtests geprüft werden. Umfangreiche Auslaugversuche mit dem Säulenverfahren wurden an bindemittelgebundenen Böden oder Baustoffen noch nicht durchgeführt. Hier besteht noch Forschungsbedarf.

5 Zusammensetzung und Ausblick

In dieser Literaturstudie wurden das Auslaugverhalten und die Einflussfaktoren umweltrelevanter anorganischer Parameter betrachtet, wobei das Auslaugverhalten von Quecksilber, Thallium, Cyanid und Fluorid wegen ihrer niedrigen bzw. nicht quantifizierbaren Eluatkonzentrationen und/oder ihrer kleinen Datenbasis nicht bekannt ist. Weiterhin wurden die Auswahlkriterien für ein passendes Prüfverfahren dargestellt.

Für eine abschließende Bewertung des Langzeitverhaltens von mit Bindemittel behandelten Böden und Baustoffen hinsichtlich des Auslaugverhaltens sind allerdings noch Forschungsarbeiten erforderlich. Hier sind zwei wesentliche Bereiche zu unterscheiden:

1. Ermittlung der realen Randbedingungen im Feldversuch,
2. Laboruntersuchungen mit angepassten Randbedingungen.

Außerdem bestehen erhebliche Wissenslücken bei den organischen Parametern, sowohl im Hinblick auf das Auslaug- und Abbauverhalten als auch im Hinblick auf die Wechselwirkungen mit anorganischen Stoffen.

6 Literaturverzeichnis

- [1] Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen (FGSV) (2009): Merkblatt über die Behandlung von Böden und Baustoffen mit Bindemitteln zur Reduzierung der Eluierbarkeit umweltrelevanter Inhaltsstoffe, Köln
- [2] Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA) (2004): Ableitung von Geringfügigkeitsschwellen für das Grundwasser
- [3] Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen (FGSV) (2009): Zusätzliche Technische Vertragsbedingungen und Richtlinien für Erdarbeiten im Straßenbau (ZTV E-StB 09), Köln