

## Analyse des gefügeabhängigen Löslichkeitsverhalten potenziell AKR-empfindlicher Gesteinskörnung

FA 6.108

Forschungsstelle: Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), Berlin

Bearbeiter: Weise, F. / Kositz, M. / Wilsch, G. / Hüniger, K.-J. / Sigmund, S.

Auftraggeber: Bundesministerium für Verkehr und digitale Infrastruktur, Bonn

Abschluss: Oktober 2019

### 1 Aufgabenstellung

Zur Verifizierung des Einflusses des von außen zugänglichen Korngefüges auf die Löslichkeit von  $\text{SiO}_2$  und des interagierenden  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in einer alkalischen Lösung ohne und mit definierter NaCl-Zugabe erfolgten exemplarisch an vier Gesteinskörnungen mit unterschiedlicher Alkaliempfindlichkeit (je ein Kies und ein gebrochenes Festgestein der Alkaliempfindlichkeitsklasse EIII-S und EI-S) grundlegende Untersuchungen. Diese umfassten die Charakterisierung des Mineralbestands und des Porengefüges aller Gesteinskörnungen, Löseversuche an Korngemengen und Einzelkörnern sowie alle Betonversuche nach dem ARS 04/2013 [1] und der Alkalirichtlinie des DAfStb [2]. Aufbauende Untersuchungen mit Mikroskopie und LIBS dienten der Bewertung der Ausprägung der AKR- und SEB-Merkmale sowie des Eintrags beziehungsweise der Auslaugung von Alkalien bei den verschiedenartigen AKR-provozierenden Lagerungen. Zusätzlich erfolgten zur Verifizierung der Leistungsfähigkeit der Löseversuche für die Bewertung der Alkaliempfindlichkeit der Gesteinskörnungen vergleichende korrelative Betrachtungen zwischen den Ergebnissen der Löseversuche an Korngemengen und denen der Betonversuche.

Bei der Gesteinskörnung GK1 (EIII-S) handelt es sich um einen quarzreichen Kies mit geringen Anteilen von Mikroklin, Plagiogläse/Albite und Muskovite. Als Gesteinskörnung GK2 (EIII-S) gelangte eine Grauwacke mit hohem Gehalten an Quarz und albitreichen Plagioglas als gebrochenes Festgestein zum Einsatz. Die Gesteinskörnung GK3 (EI-S) ist ein Rhyolith als gebrochenes Festgestein, dessen Mineralbestand auf einen Quarz-Feldspat-Porphyr schließen lässt. Die Gesteinskörnung GK4 (EI-S) ist ein sandsteinreicher Kies (Quarz-Feldspat-Kies).

Die vielfältigen an den Gesteinskörnungen ermittelten Porenstrukturkennwerte sind unterschiedlich im Kontext der Löseversuche zu bewerten. So führt der bisher im BTU-SP-Test verwendete Bezug des  $\text{SiO}_2$ -Überschusses auf die offene Porosität nicht zwangsläufig zum gleichen Trend wie beim adäquaten Bezug auf die spezifische Oberfläche. So wurde beispielsweise für die Kornfraktion 8/16 der GK4 eine mittlere offene Porosität von 3,53 Vol.-% und eine mittlere spezifische Oberfläche von 0,89  $\text{m}^2/\text{g}$  bestimmt. Bei der gleichen Kornfraktion von GK1 wird trotz signifikant geringerer mittlerer offener Porosität von 0,88 Vol.-% eine deutlich höhere mittlere spezifische Oberfläche von 1,94  $\text{m}^2/\text{g}$  mit BET ermittelt. Aus diesem Grund erfährt der  $\text{SiO}_2$ -Überschuss im Eluat beim Bezug auf die unterschiedlichen Porenstrukturparameter eine gegenläufige Bewertung.

Bei der zusätzlich durchgeführten Visualisierung und Quantifizierung der von außen zugänglichen Oberfläche an ausgewählten Einzelkörnern mit der Röntgen 3-D-CT zeigte sich, dass basierend auf der limitierenden minimalen Ortsauflösung von ca. 11 bis 16,5  $\mu\text{m}$  die untersuchten Einzelkörner der Grauwacke und des Rhyoliths aus dem Kies einen signifikant größeren von außen zugänglichen Oberflächenanteil als die aus dem gebrochenen Festgestein besitzen. Bemerkenswert ist aber auch, dass die tomografisch ermittelten von außen zugänglichen Oberflächenanteile bei den Einzelkörnern der einzelnen Gesteinsarten sehr stark schwanken. Dies gilt im besonderen Maße für alle bei den Kiesen GK1 und GK4 vorkommenden Gesteinsarten. Die BET-Analyse der tomografierten Einzelkörner ergab erwartungsgemäß, dass sich die so ermittelte spezifische Oberfläche aufgrund der höheren Ortsauflösung des Verfahrens ca. um den Faktor 1000 erhöht. Eine Korrelation zwischen den mit 3-D-CT und BET ermittelten spezifischen Oberflächen ist nicht gegeben. Vor diesem Hintergrund stellt sich die Frage, welcher von außen zugängliche Porengrößenbereich für die im Löseversuch stattfindenden Transport- und Löseprozesse relevant ist. Es wird vermutet, dass aufgrund der hohen Temperatur des Eluationsmediums (80 °C) auch kleinere Poren und Risse ( $< 0,1 \mu\text{m}$ ) an diesen Prozessen beteiligt sind. Aus diesem Grund wurde der bei den Löseversuchen ermittelte  $\text{SiO}_2$ - und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Gehalt im Eluat auf die mittlere BET-Oberfläche der jeweiligen Kornfraktion bezogen.

Bei den Löseversuchen an den fraktionspezifischen Korngemengen in 1 M KOH-Lösung der Gesteinskörnungen zeigte sich, dass sich mit zunehmender NaCl-Zugabe zum Eluationsmedium (0,5, 1,0, 2,0, 3,0 und 10,0 M.-%) die Auslaugung von  $\text{SiO}_2$  erhöht und von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  vermindert. Auffallend ist allerdings, dass die Löslichkeit von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bei GK4 und hier im besonderen Maße in der Kornfraktion 2/8 ohne und bei geringer NaCl-Zugabe wesentlich stärker als bei den anderen Gesteinskörnungen ausgeprägt ist. Dies ist deshalb so erwähnenswert, weil dadurch mehr  $\text{SiO}_2$  alumosilikatisch gebunden wird und so die schädigende AKR eine Verminderung erfährt.

Bei den zusätzlich durchgeführten Löseversuchen an den tomografierten Einzelkörnern in 1 M KOH-Lösung mit Zugabe von 1 M.-% NaCl zeigte sich, dass nur vereinzelt bei den untersuchten Gesteinsarten eine Korrelation zwischen dem  $\text{SiO}_2$ - beziehungsweise  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Gehalt im Eluat und der absoluten BET-Oberfläche nachweisbar ist. Ursächlich hierfür ist neben dem Erfordernis der Durchführung weiterer Löseversuche zur statistischen Absicherung der Ergebnisse vermutlich der Umstand, dass neben der Oberfläche noch weitere Parameter, wie beispielsweise die mineralogische Zusammensetzung des Einzelkorns, maßgebend das Löseverhalten des Korns beeinflussen.

Bei den parallel zu den Löseversuchen durchgeführten Betonversuchen nach dem ARS 04/2013 [1] zeigte sich, dass unabhängig von der Betonart (Oberbeton 0/8 beziehungsweise der Oberbeton ( $D>8$ )/Unterbeton) die Ergebnisse des 60 °C-Betonversuchs mit Alkalizufuhr und der Klimawechsellagerung zu einer unterschiedlichen Einstufung der Alkaliempfindlichkeit der Gesteinskörnung GK4 führt. So ist die Gesteinskörnung

GK4 nur bei der KWL als alkaliempfindlich einzustufen. Bei der aufbauend nach der KWL durchgeführten Dünnschliffmikroskopie wies jedoch die Gesteinskörnung GK4 in den Fraktionen 8/16 und 16/22 keinerlei AKR-Schädigungen auf. Vielmehr gehen die hier vorgefundenen AKR-Merkmale ausschließlich von der Sandfraktion aus. Überlagert wird die schädigende AKR von einer stark ausgeprägten SEB. Dies stellt ein Stück weit die Einstufung der GK4 als alkaliempfindlich in Frage.

Ein adäquates Fazit muss aus den Ergebnissen der Betonversuche nach der Alkali-Richtlinie des DAfStb [2] gezogen werden. So wird hier die Gesteinskörnung GK2 nur im 40 °C-Betonversuch und nicht im 60°C-Betonversuch als alkaliempfindlich eingestuft.

Aufschlussreich sind auch die Ergebnisse der vor und nach allen Betonversuchen durchgeführten LIBS-Analysen an den Vertikalschnitten der Betonprüfkörper. Dabei wurden folgende Erkenntnisse gewonnen:

- Nach 10 Zyklen des 60 °C-Betonversuchs mit Alkalizufuhr stellt sich im Kernbereich der Betonprüfkörper mit den pessimalen Betonrezepturen nach dem ARS 04/2013 [1] eine gleichmäßige Natrium- und Chloridverteilung ein. Erwartungsgemäß erhöht sich dort mit zunehmender NaCl-Konzentration der Tausalzlösung der mittlere Na- und Cl-Gehalt. Wider Erwarten werden umlaufend in der Betonrandzone eine Abreicherung an Natrium und eine Anreicherung von Chlorid vorgefunden.
- Die zwölf Zyklen der Klimawechsellagerung der Betonprüfkörper mit den pessimalen Rezepturen nach dem ARS 04/2013 führen bei der einseitigen Beaufschlagung mit entmineralisiertem Wasser zu einer Auslaugung von Natrium bis in eine Tiefe von ca. 40 mm. Im Gegensatz dazu hat die einseitige Beaufschlagung der Betonprüfkörper mit 3,6%iger NaCl-Lösung einen hohen Tausalzeintrag zur Folge. Dabei stellen sich im Kernbereich der Prüfkörper in der Regel geringere Na- und Cl- Konzentrationen als nach dem 60°C-Betonversuch mit 10%iger NaCl-Lösung ein. Wider Erwarten ist auch hier in der Betonrandzone der beaufschlagten Prüffläche eine Abreicherung an Natrium und eine Anreicherung an Chlorid erkennbar. In abgeschwächter Form tritt dies auch in der Betonrandzone der anderen Seitenflächen auf.
- Nach dem 40 °C- beziehungsweise 60 °C-Betonversuch wurden in den Prüfkörpern mit der Betonrezeptur nach der Alkali-Richtlinie maximale Na-Auslaugungstiefen von 30 beziehungsweise 20 mm ermittelt. Aufgrund des ungünstigen Oberflächen-/Volumen-Verhältnisses sind die Auslaugungen in den Eckbereichen der Prüfkörper besonders groß.

Bei der Zusammenführung der Ergebnisse des 60°C-Betonversuchs mit 3 beziehungsweise 10%iger NaCl-Lösung mit denen der Löseversuche an den Korngemengen der einzelnen Gesteinskörnungen ist bei ausgewählten NaCl-Zugabemengen zum Eluat eine Korrelation zwischen den Dehnungen und dem gewichteten SiO<sub>2</sub>-Überschuss im Eluat nach 56-tägigem Löseversuch erkennbar. So zeigt sich beispielswei-

se beim Waschbeton, dass der gewichtete SiO<sub>2</sub>-Überschuss im Eluat nach 56 Tagen mit Zugabe von 0,5 und 1,0 M.-% NaCl ohne Bezug auf die BET-Oberfläche zur gleichen Einstufung der Gesteinskörnungen wie bei den Dehnungen im 60 °C-Betonversuch mit 3%iger NaCl-Lösung führt. Außerdem korrelieren die im 60 °C-Betonversuch mit 10%iger NaCl-Lösung ermittelten Dehnungen mit dem gewichteten SiO<sub>2</sub>-Überschuss im Eluat bei Zugabe von 2 M.-% NaCl. Auch hier liefert der Bezug auf die BET-Oberfläche keine zusätzlichen Erkenntnisse. Im Gegensatz dazu ist bei den Betonversuchen nach der Alkali-Richtlinie des DAfStb [2] der Bezug des gewichteten SiO<sub>2</sub>-Überschusses auf die BET-Oberfläche zielführend. So führt hier die Relativierung des gewichteten SiO<sub>2</sub>-Überschusses durch den Bezug auf die BET-Oberfläche zur gleichen Einstufung der Gesteinskörnungen im Löseversuch und im 40 beziehungsweise 60 °C-Betonversuch (Dehnungsmessung der Prismen).

## 2 Folgerungen für die Praxis

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die bisherigen Ergebnisse der korrelativen Betrachtung zwischen den Löseversuchen mit NaCl-Zugabe und den Betonversuchen nach dem ARS 04/2013 [1] durchaus vielversprechend sind. Allerdings lässt die geringe Anzahl der bisher untersuchten Gesteinskörnungen noch keine verallgemeinernden Aussagen zu. Es wird deshalb empfohlen, die vergleichenden Untersuchungen zwischen den Löseversuchen an Korngemischen der einzelnen Fraktionen und den Betonversuchen nach dem ARS 04/2013 [1] mit einer möglichst hohen Anzahl an Gesteinskörnungen fortzuführen. Der Untersuchungsumfang ist dabei wie folgt zu präzisieren:

- Verzicht auf Löseversuche in 1 M KOH-Lösung mit 10 M.-% NaCl-Zugabe,
- Erhöhung der Einwaage der Gesteinskörnung bei Beibehaltung des Mischungsverhältnisses zwischen GK und Eluat von 1:10 (gegebenenfalls alternativ mehrere Ansätze),
- zusätzliche Durchführung adäquater Löseversuche mit der Kornfraktion 16/22 der jeweiligen Gesteinskörnung (Mindesteinwaage der GK: 270 bis 540 g),
- Erprobung alternativer Durchführung von Löseversuchen an Gemischen von Kornfraktionen, die der Sieblinie der Gesteinskörnung im Beton entsprechen und
- Gegebenenfalls Verzicht auf BET-Analysen der Gesteinskörnungen, da der Oberflächenbezug des SiO<sub>2</sub>-Überschusses bei den Löseversuchen in 0,1 M KOH-Lösung mit NaCl-Zugabe bisher nicht zielführend ist (Dominanz anderer Einflussgrößen).