

Hydrothermalgranulate – Eine Verwertungsmöglichkeit für Mauerwerkbruch

***Julia Seher¹, Katrin Rübner¹, Alexander Schnell², Andreas Hahn³,
Ingo Bruch⁴, Ulrike Alewell⁴, Manuel Vöge⁵, Kasra Shafiei⁵,
Gundula Schumann⁶***

¹ Bundesanstalt für Materialprüfung und -forschung (BAM), Berlin

² Bauhaus-Universität Weimar, F.A. Finger-Institut für Baustoffkunde,
Weimar

³ ZetA Partikelanalytik GmbH, Mainz

⁴ Dr. Bruch & Partner, Geowissenschaftler und Ingenieure,
Schmalfelderhof

⁵ Beton und Naturstein Babelsberg GmbH, Potsdam

⁶ T.B.R. Teltower Baustoffrecycling GmbH, Teltow

Abstract

Approximately 220 million tons of mineral construction and demolition waste (CDW), which can be used as a secondary raw material source, were accumulated in 2020 in Germany. Despite high recycling rates, some CDW are still landfilled or used in applications with low quality requirements because an effective recycling of such heterogenous wastes is rather complicated. Masonry rubble is a heterogeneous, SiO₂-rich secondary raw material composed of a mixture of different demolished building materials such as bricks, precast concrete, lightweight concrete, aerated autoclaved concrete, calcium silicate blocks, natural stones, plaster and mortar. The exact composition depends on the demolition site, the pre-sorting and the reprocessing in the recycling plant. A direct reuse as recycled aggregates is prohibited because of its non-uniform compo-

sition and up to 50% fines after mechanical treatment. One way to recycle masonry rubble effectively is the feedstock recycling via a chemically hydrothermal conversion process that produces porous granules. The pore structure of these hydrothermal hardened granules results in possible applications as filter or water storage material, applications beyond the construction sector. These novel granules can substitute lightweight aggregates of natural origin (e.g., lava sand, pumice) or grains made from natural raw materials (e.g., expanded clay). The new recycling strategy saves natural resources. Compared to the production of expanded clays, the energy consumption is much lower. The aim of the joint research project HYTEGRA was the development of a process to produce lightweight aggregates from SiO₂-rich and CaO-rich secondary raw materials. As raw materials masonry rubble as SiO₂ source and paper ash from energetic utilization of the residues of wastepaper recycling as CaO source were used. The complete process from the mechanical-physical processing to the formation of the green granules to the hydrothermal hardening was developed and tested on laboratory scale. The applications of the hydrothermal hardened granules as water storage material for the internal curing of high-performance concrete, plant substrate and filter material in soil filters for wastewater treatment were investigated. The contribution gives an overview of the main results of the successfully completed joint research project HYTEGRA.

Resümee

Im Jahr 2020 fielen in Deutschland rund 220 Millionen Tonnen mineralische Bau- und Abbruchabfälle an, die als Sekundärrohstoffquelle genutzt werden können. Trotz hoher Recyclingquoten wird ein Teil der mineralischen Bau- und Abbruchabfälle immer noch deponiert oder in Anwendungen mit geringen Qualitätsanforderungen eingesetzt, da ein effektives Recycling dieser heterogenen Abfälle recht kompliziert ist. Bauschutt ist ein heterogener, SiO₂-reicher Sekundärrohstoff, der sich aus einem Gemisch verschiedener abgebrochener Baumaterialien wie Ziegel, Betonfertigteile, Leichtbeton, Porenbeton, Kalksandsteine, Natursteine, Gips und Mörtel zusammensetzt. Die genaue Zusammensetzung hängt von der Abbruchstelle, der Vorsortierung und der Wiederaufbereitung in der Recyclinganlage ab. Eine direkte Wiederverwendung als rezyklierte Gesteinskörnung ist aufgrund der uneinheitlichen Zusammensetzung und des bis zu 50 %igen Feinanteils nach der mechanischen

Aufbereitung nicht zulässig. Eine Möglichkeit, Mauerwerksschutt effektiv zu recyceln, ist die rohstoffliche Verwertung über ein chemisch-hydrothermales Umwandlungsverfahren, das poröse Granulate erzeugt. Durch die Porenstruktur dieser hydrothermal gehärteten Granulate ergeben sich Anwendungsmöglichkeiten als Filter- oder Wasserspeichermaterial, die über den Bausektor hinausgehen. Diese neuartigen Granulate können leichte Gesteinskörnungen natürlichen Ursprungs (z. B. Lavasand, Bimsstein) oder Körner aus natürlichen Rohstoffen (z. B. Blähton) ersetzen. Die neue Recyclingstrategie spart natürliche Ressourcen. Im Vergleich zur Herstellung von Blähton ist der Energieverbrauch wesentlich geringer. Ziel des Verbundprojektes HYTEGRA war die Entwicklung eines Verfahrens zur Herstellung von leichten Gesteinskörnungen aus SiO_2 - und CaO -reichen Sekundärrohstoffen. Als Rohstoffe wurden Mauerwerksschutt als SiO_2 -Quelle und Papierasche aus der energetischen Verwertung von Reststoffen der Altpapierverwertung als CaO -Quelle eingesetzt. Der komplette Prozess von der mechanisch-physikalischen Aufbereitung über die Bildung des Grüngranulats bis zur hydrothermalen Härtung wurde entwickelt und im Labormaßstab getestet. Die Anwendungen des hydrothermal gehärteten Granulats als Wasserspeichermaterial für die innere Nachbehandlung von hochfestem Beton, Pflanzensubstrat und Filtermaterial in Bodenfiltern zur Abwasserreinigung wurden untersucht. Der Beitrag gibt einen Überblick über die wichtigsten Ergebnisse des erfolgreich abgeschlossenen Verbundforschungsprojekts HYTEGRA.

Keywords/Schlüsselwörter

Feedstock recycling, masonry rubble, paper ash, lightweight aggregates, porous granules, chemical recycling, hydrothermal hardening
Rohstoffliches Recycling, Mauerwerkbruch, Papierasche, leichte Gesteinskörnung, poröse Granulate, hydrothermale Behandlung

1 Mineralische Bauabfälle in Deutschland

Im Jahr 2020 fielen in Deutschland 220,6 Mio. t mineralische Bauabfälle an, welche sich aus 58,6 % Boden und Steine, 27,2 % Bauschutt, 7,6 % Straßenaufbruch und 6,3 % Baustellenabfälle zusammensetzen. Die durchschnittliche Verwertungsquote aller Fraktionen lag bei 89,5 %. Die Statistik zeigt, dass mineralische Bauabfälle in Deutschland zu einem gro-

ßen Teil verwertet werden und somit die Vorgaben der EU-Abfallrichtlinie (70 % Verwertungsquote) weit übertroffen werden. Dennoch ist die Art der Verwertung kritisch zu hinterfragen, da das Verwertungs-niveau insbesondere im Bereich Tiefbau niedrig ist und Materialien nicht im Kreislauf gehalten werden. 76,9 Mio. t Recycling-Baustoffe bzw. Gesteinskörnungen aus den mineralischen Bauabfällen wurden im Jahr 2020 hergestellt, welche zu 50,3 % im Straßenbau, 23,0 % im Erdbau, 19,5 % in der Asphalt- und Betonherstellung und 7,2 % anderweitig verwertet wurden. Alle Anwendungen stellen unterschiedlich hohe Qualitätsanforderungen an die Recycling-Baustoffe. Eine Umverteilung der Recycling-Baustoffe von einem Anwendungsgebiet in ein anderes, also beispielsweise vom Straßenbau mit geringeren Qualitätsanforderungen in die Betonherstellung mit höheren Qualitätsansprüchen, würde auf jeden Fall einen zusätzlichen Einsatz primärer Rohstoffe im Entnahmebereich zur Folge haben. Die 76,9 Mio. t Recycling-Baustoffe deckten im Jahr 2020 nur 13,2 % des Bedarfs an Gesteinskörnungen (Kreislaufwirtschaft Bau 2023).

Es besteht somit Bedarf an der Entwicklung neuer Recyclingprozesse, um noch höhere Verwertungsquoten zu erreichen, Produkte in hochwertigen Anwendungen zu halten, die Wertschöpfung für die Recyclingunternehmen zu verbessern und insgesamt den Einsatz von Recycling-Baustoffen gegenüber primären Rohstoffen zu erhöhen. Im Fokus des ZIM-Kooperationsprojekts HYTEGRA stand deshalb die Entwicklung einer Verwertungsmöglichkeit für feinkörnigen gemischten Mauerwerkbruch, für den gegenwärtig ein Verwertungsdefizit vorliegt. Das Verwertungspotential von Papierasche, ein mineralischer Reststoff aus dem Altpapierrecycling, wurde ebenfalls im Projekt betrachtet. Als neues Produkt entstanden poröse Granulate, die nachfolgend als Hydrothermalgranulate bezeichnet werden.

2 Mauerwerkbruch als SiO₂-Träger

Mauerwerkbruch ist eine Fraktion des Bauschutts, wovon jährlich 25-30 Mio. t in Deutschland anfallen (Müller 2016). Hierbei handelt es sich um ein heterogenes Gemisch variabler Zusammensetzung aus gängigen Wandbaustoffen wie Ziegeln, Beton-, Leichtbeton-, Porenbeton- und Kalksandstein-Steinen sowie Mörtel- und Putzanhaftungen. Die Zusammensetzung unterliegt starken Schwankungen, da sie vom Aufkommen

der verwendeten Baustoffe lokaler Abbruchstellen sowie den individuellen Möglichkeiten für Sortierung und Aufbereitung abhängig ist. Bei der Aufbereitung fallen bis zu 50 % Feinanteile an. Die Verwertung dieses heterogenen und feinkörnigen Gemischs ist daher aufgrund der unterschiedlichen chemisch-mineralogischen und physikalischen Eigenschaften der einzelnen Bestandteile stark beschränkt. Störstoffe, z. B. Sulfat oder Schwermetalle, können Anwendungen aus umwelt- oder baurechtlichen Gründen ausschließen. Feinkörniger Mauerwerkbruch wird deshalb überwiegend in Anwendungen geringerer Qualitätsanforderungen wie Verfüllungen oder Deponiebau eingesetzt oder deponiert. Aber gemischter Mauerwerkbruch hat ein hohes Potential für ein rohstoffliches Recycling, da er reich an Siliciumdioxid, meist als Quarz vorliegend, ist und somit als Quarzsandsubstitut eingesetzt werden kann. Im Allgemeinen ist unter rohstofflichem Recycling die Verwertung durch eine Stoffumwandlung zu einem neuen Produkt zu verstehen. Für das Recycling werden die chemisch-mineralogischen Eigenschaften des Reststoffs genutzt. Das neue Produkt unterscheidet sich dadurch in seinen mechanischen, physikalischen und chemisch-mineralogischen Eigenschaften komplett vom ursprünglichen Material. Das rohstoffliche Recycling steht im Kontrast zum Produkt- und Materialrecycling. Hierbei findet eine Wieder- oder Weiterverwendung von Bauteilen in ihrer ursprünglichen Gestalt (Produktrecycling) oder nach physikalisch-mechanischer Aufbereitung (Materialrecycling) statt.

Im Rahmen des Projekts HYTEGRA wurde ein Mauerwerkbruch bestehend aus 72 Ma.-% Beton und Gesteinskörnung, 21 Ma.-% Ziegel und Klinker sowie 7 Ma.-% Fremdbestandteilen verwendet. Dieser Mauerwerkbruch wurde zu einem feinen Mehl (Korngröße $< 120 \mu\text{m}$) aufbereitet. Die chemische Analyse des Mauerwerkbruchmehls ergibt hauptsächlich 65 Ma.-% SiO_2 und 13 Ma.-% CaO (Tabelle 1). Quarz (SiO_2) und Calcit (CaCO_3) wurden als kristalline Hauptbestandteile bestimmt. Umweltanalytisch wurden die wässrigen Eluate (Wasser/Feststoff = 10 L/kg) in Anlehnung an die Vorgaben für rezyklierte Gesteinskörnungen nach ABuG untersucht, wobei die Einhaltung aller Grenzwerte festgestellt wurde (ABuG 2019).

3 Papierasche als CaO-Träger

In Deutschland fallen jährlich etwa 0,6 Mio. t Papierasche aus der energetischen Verwertung von Reststoffen der Altpapieraufbereitung an (Weßel et al. 2022). Hierbei werden Deinking- und Abwasserschlämme, Spuckstoffe und Papierfaserreststoffe betriebsintern oder extern thermisch verwertet. Die zurückbleibenden Kessel- und Flugaschen werden als kostenpflichtiger Abfall an die Ziegel- und Zementindustrie abgegeben oder deponiert. Die Herausforderung einer Verwertung ergibt sich aus der großen Schwankungsbreite der chemisch-mineralogischen Zusammensetzung dieser Aschen. Das Vorhandensein hydraulischer Phasen macht die Aschen interessant für die Anwendung als Bindemittelkomponente bei der Betonherstellung (Gluth et al. 2014, Barthel 2023), aber ein zu hoher Gehalt an Sulfat und Chlorid kann diese Anwendung ausschließen. Aufgrund eines signifikanten Gehalts an Freikalk besteht für Papierasche das Potential als Kalksubstitut. Je nach Verbrennungsregime der Recyclingrückstände sowie Alter und Lagerung der Papierasche können unterschiedliche Mengen reaktiver Kalk enthalten sein.

Im Rahmen des Projekts HYTEGRA wurde eine repräsentative Papierasche von einem Altpapierrecycler als Materialmuster zur Verfügung gestellt. Die Asche wurde keiner zusätzlichen Rohstoffaufbereitung unterzogen, sondern konnte aufgrund ihrer Feinheit direkt eingesetzt werden. Die chemische Analyse ergab, dass die Hauptbestandteile der Papierasche 63 Ma.-% CaO und 23 Ma.-% SiO₂ waren, die überwiegend als die kristallinen Phasen Calcit (CaCO₃), Freikalk (CaO), Gehlinit (Ca₂Al(AlSi)O₇) und Quarz (SiO₂) vorliegen (Tabelle 1). Der Freikalkgehalt betrug 23 Ma.-%. Bei der umweltanalytischen Untersuchung konnte keine Belastung des Feststoffs oder der hergestellten Eluate mit Arsen, Schwermetallen oder schädlichen Salzen festgestellt werden.

Bestandteil	Mauerwerkbruch	Papierasche
SiO ₂	65,1	22,6
Al ₂ O ₃	10,1	9,4
Fe ₂ O ₃	3,95	0,9
TiO ₂	0,54	0,1
CaO	13,2	63,2
MgO	2,17	1,5
Na ₂ O	1,0	0,1
K ₂ O	2,4	0,4
SO ₃	0,9	0,8
P ₂ O ₅	0,2	0,2
Mn ₂ O ₃	0,1	0,03
Cl ⁻	0,03	0,4
Glühverlust	9,6	15,8
CO ₂	8,5	13,1

Tab. 1: Chemische Zusammensetzung von Mauerwerkbruch und Papierasche glühverlustfrei in Ma.-% (Quelle: Projekt „HYTEGRA“).

4 Hydrothermaler Prozess

Der Herstellungsprozess der Hydrothermalgranulate lässt sich im Wesentlichen in die Prozessschritte Aufbereitung der Ausgangsmaterialien, Trockenmischen, Formgebung, hydrothermale Härtung und Fraktionieren unterteilen. Als erstes werden die Quarz- und Kalkkomponenten separat aufbereitet und trocken vermischt. Hier kamen der quarzhaltige Mauerwerkbruch und die freikalkhaltige Papierasche zum Einsatz, in Vorversuchen auch Branntkalk. Die Zugabe von 10 Ma.-% Kalk, entweder als Branntkalk bzw. der äquivalenten Menge an Freikalk aus der Papierasche, erwiesen sich als optimal. Im nächsten Schritt wird die Trockenmischung durch Zugabe von Wasser im Intensivmischer zu nahezu

kugelförmigen Granulaten verarbeitet. Das Zugabewasser, die Granulierungsdauer und die Geschwindigkeit des Mixers bestimmen die Korngröße der Grüngranulate. Im nachfolgenden Schritt werden die Grüngranulate in gesättigter Wasserdampfatosphäre bei Temperaturen von bis zu 200 °C und 16 bar im Autoklaven hydrothermal gehärtet. Autoklaven mit direkter Wasserdampfeinleitung sind zu bevorzugen, um Hydrothermalgranulate mit hoher Festigkeit zu erhalten. Chargen von bis zu 30 L Hydrothermalgranulat wurden im Rahmen des Projekts HYTEGRA in einem Technikumsautoklav hergestellt. Abschließend werden die Hydrothermalgranulate entsprechend der spezifischen Anforderungen der jeweiligen Anwendung durch Sieben in unterschiedliche Korngruppen fraktioniert.

Durch den beschriebenen Prozess werden stabile poröse Granulate erhalten, weil sich unter hydrothermalen Bedingungen durch die Reaktion von Quarz, Kalk und Wasser Calciumsilikathydratphasen (C-S-H-Phasen) bilden. Diese Reaktion findet in gleicher Weise auch bei der Herstellung von Kalksandstein statt. Die Quarzpartikel werden oberflächlich von Calciumhydroxid angelöst, welches sich aus dem Kalk bildet, wenn dieser in Kontakt mit Wasser kommt. Aus den gelösten Silikaten und Calciumhydroxid bilden sich C-S-H-Phasen direkt auf der Oberfläche der Quarzpartikel. Unter den gewählten Reaktionsbedingungen entsteht typischerweise die kristalline C-S-H-Phase Tobermorit $\text{Ca}_5[\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2]\cdot 4\text{H}_2\text{O}$, aber auch amorphe C-S-H-Phasen. Die nadelförmigen Tobermorit-Kristalle verzahnen sich, sodass ein stabiles Gefüge ausgebildet wird. Abb. 1 gibt einen Überblick über die C-S-H-Phasenbildung während der hydrothermalen Härtung.

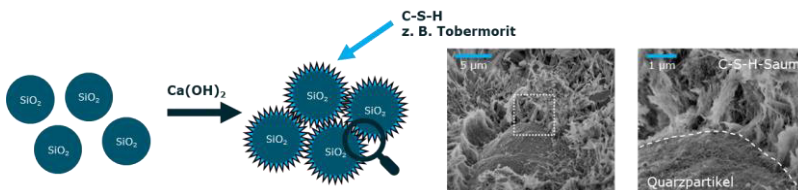


Abb. 1: Schematische Darstellung der C-S-H-Phasenbildung während der hydrothermalen Härtung (links), Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen der gebildeten C-S-H-Phasen auf Quarzpartikeln (rechts) (Quelle: Projekt „HYTEGRA“).

5 Eigenschaften der Hydrothermalgranulate

Mithilfe des hydrothermalen Prozesses wurden poröse Granulate erhalten, die in Anlehnung an DIN EN 13055:2016 als leichte Gesteinskörnung bezeichnet werden können. Leichte Gesteinskörnungen weisen eine Kornrohddichte von $\leq 2000 \text{ kg/m}^3$ auf (DIN EN 13055:2016-11). Je nach Zusammensetzung der Trockenmischung und geprüfter Kornfraktion konnten Hydrothermalgranulate mit Kornrohddichten von $1100\text{-}2000 \text{ kg/m}^3$ hergestellt werden. Die Gesamtporosität betrug $40\text{-}60 \%$ und die Wasseraufnahme $30\text{-}50 \text{ Ma.}\%$. Die Einzelkornfestigkeit erreichte $0,5\text{-}5 \text{ MPa}$. Hierbei ist hervorzuheben, dass der Einsatz von Papiersasche aufgrund der anteiligen hydraulischen Phasen, die zusätzliche festigkeitsfördernde Phasen, z. B. Carboaluminat (Gluth et al 2014), bilden, zur Steigerung der Kornfestigkeit führt. Die Porenstruktur der Hydrothermalgranulate wurde untersucht. Sie enthalten etwa 60% Mesoporen mit Porengrößen $2 \text{ nm} \leq d \leq 50 \text{ nm}$ und 40% Makroporen mit Porengrößen $d \geq 50 \text{ nm}$ (IUPAC-Notation: Thommes et al. 2015). Aufgrund ihres Eigenschaftsprofils wurden die Hydrothermalgranulate auf ihre Eignung als temporärer Wasserspeicher und als Filtermaterial getestet.

6 Anwendungsversuche

6.1 Innere Nachbehandlung von hochfestem Beton

Autogenes Schwinden ausgelöst durch eine innere Selbstaustrocknung mit fortschreitender Hydratation des Zementsteins im erhärtenden Beton ohne Veränderung seines Gesamtwassergehalts ist der Hauptgrund für die Bildung von Rissen in hoch- und ultrahochfestem Beton. Für die Herstellung dieser Betone werden sehr niedrige Wasser-zu-Bindemittel-Verhältnisse verwendet, was die innere Selbstaustrocknung begünstigt.

Jeder Beton neigt zum Schwinden. Die Veränderung des Volumens wird durch Trocknung, Zementhydratation, Temperatur und Carbonatisierung hervorgerufen. Daher lässt sich das resultierende Schwinden in Trocknungsschwinden, chemisches Schwinden, autogenes Schwinden, thermisches Schwinden und Carbonatisierungsschwinden unterteilen. Der Beitrag jeder Schwindart ändert sich mit dem Alter des Betons. Ex-

terne und interne Nachbehandlungsverfahren können das Schwinden reduzieren, was die Dauerhaftigkeit des Betons erhöht. Eine einfache Methode dem Trocknungsschwinden entgegenzuwirken, besteht darin, den frischen Beton für eine bestimmte Zeit abzudecken. Der Feuchtigkeitsaustausch des Betons mit seiner Umgebung wird bei dieser Methode vermieden. Eine Lagerung unter isothermen Bedingungen verringert das thermische Schwinden. Aber selbst ein abgedeckter Beton, welcher unter isothermen Bedingungen gelagert wird, schwindet. Die Volumenverringerng tritt auf, weil das Volumen des hydratisierten Zements kleiner ist als das des nicht hydratisierten Zements. Dieses Schwinden wird als chemisches Schwinden bezeichnet und tritt bei jeder Zementhydratation auf. Bei sehr niedrigen Wasser-zu-Bindemittel-Verhältnissen ($< 0,4$) reicht die Menge des Anmachwassers nicht für eine vollständige Zementhydratation aus. Daher wird mobiles Wasser aus Kapillarporen im Zementstein verbraucht, um die Hydratation des Zements fortzusetzen. Durch diesen Saugprozess entsteht ein Kapillardruck in den Kapillarporen, der zur Rissbildung führen kann. Diese Art des Schwindens wird als autogenes Schwinden bezeichnet. Eine Methode, um der Selbst-austrocknung entgegenzuwirken und somit das autogene Schwinden zu reduzieren, ist die innere Nachbehandlung mit wassergetränkter leichter Gesteinskörnung (Kovler et al. 2007, Bentz et al. 2011, Wu et al. 2017, Ma et al. 2019, Yang et al. 2021). Üblicherweise werden dazu Blähton oder andere leichte Gesteinskörnungen feiner Körnung verwendet. Die leichten Gesteinskörnungen dienen als interne Wasserreservoirs, welche zusätzliches Wasser für die Zementhydratation bereitstellen und der Entleerung der Kapillarporen aufhalten. Da die hergestellten Hydrothermalgranulate Eigenschaften leichter Gesteinskörnungen aufweisen, wurden sie auf ihre Eignung zur inneren Nachbehandlung in hochfesten Mörteln getestet.

Für die Untersuchungen wurde zunächst eine Rezeptur für einen schwindanfälligen, hochfesten Vergleichsmörtel mit 2 mm Größtkorn ohne Zusatz wassergetränkter leichter Gesteinskörnungen entwickelt. Um den Einfluss wassergetränkter Hydrothermalgranulate auf das Schwindverhalten zu ermitteln, wurde in der Vergleichsmörtelmischung die normale Gesteinskörnung durch 10, 20 oder 30 Vol.-% Hydrothermalgranulat ausgetauscht. Zum Vergleich diente außerdem ein kommerzieller Blähton. Die leichten Gesteinskörnungen wurden jeweils mit der

Wassermenge gesättigt, die dem Wert der 24-h-Wasseraufnahme entsprach.

Das autogene Schwinden der Mörtel wurde in Anlehnung an DIN EN 12617-4 über Längenänderungsmessungen an Mörtelprismen (40 mm x 40 mm x 160 mm) untersucht (DIN EN 12617-4:2002). Um ausschließlich das durch innere Selbstaustrocknung induzierte Schwinden zu bestimmen, wurden die Prismen unmittelbar nach dem Ausschalen luftdicht in Folie verpackt. Auf diese Weise wird das Trocknungsschwinden unterbunden, da kein Feuchteaustausch mit der Umgebung möglich ist. Die Längenänderung der Mörtelprismen im Verlauf von 28 Tagen zeigt Abb. 2 (links). Alle Mörtel mit Zusatz wassergesättigter leichter Gesteinskörnungen zeigen ein geringeres Schwinden als der Vergleichsmörtel. Bei 30 Vol.-%-Austausch ist die schwindreduzierende Wirkung aller leichten Gesteinskörnungen am größten. Bei einer Austauschmenge von 10 Vol.-% und 20 Vol.-% zeigen die Mörtel mit Hydrothermalgranulaten HTG-1 und HTG-2 ein ähnliches Schwindverhalten wie die mit Blähton, mit HTG-3 sogar ein besseres.

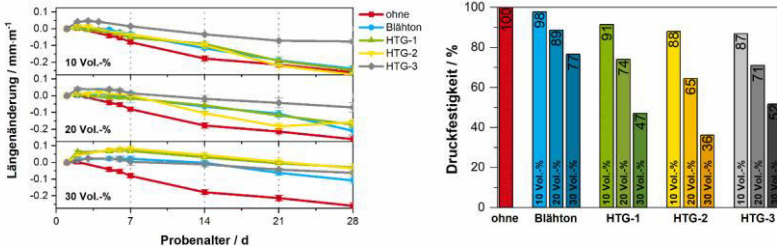


Abb. 2: Links: Schwindverhalten der Mörtelprismen mit Zusatz von 10, 20 und 30 Vol.-% wassergesättigter leichter Gesteinskörnung (Blähton, HTG-1, HTG-2 und HTG-3) im Vergleich zum Mörtel ohne leichte Gesteinskörnung, rechts: relative Druckfestigkeiten der Prismen nach 28 Tagen (Quelle: Projekt „HYTEGRA“).

Die Mörtelprismen wurden im Alter von 28 Tagen in Anlehnung an DIN EN 196-1 auf ihre Druckfestigkeit geprüft (DIN EN 196-1:2016-11). Die Entwicklung der Druckfestigkeit relativ zum Vergleichsmörtel ohne Zusatz leichter Gesteinskörnungen zeigt Abb. 2 (rechts). Die Druckfestigkeit des Vergleichsmörtels betrug 77 MPa. Die Festigkeiten der Mörtel mit leichter Gesteinskörnung nehmen mit steigender Austauschmenge ab. Bei der Verwendung von Hydrothermalgranulaten sinkt die Druckfestigkeit von 87-91 % bei einem Austausch von 10 Vol.-%

% auf 36-52 % bei 30 Vol.-% Austausch. Bei der Verwendung von Blähton ist diese Abnahme von 98 % auf 77 % deutlich geringer. Vermutlich wird die höhere Festigkeitsabnahme durch die geringere Kornfestigkeit der Hydrothermalgranulate im Vergleich zu Blähton und Natursand hervorgerufen. Die erzielten Ergebnisse zeigen dennoch, dass Hydrothermalgranulate alternativ zu Blähton für die innere Nachbehandlung von hochfesten Mörteln und Betonen verwendet werden können und dass das autogene Schwinden zum Teil sogar stärker reduziert wird.

6.2 Pflanzsubstrat

Zur Untersuchung der Eignung der Hydrothermalgranulate als Pflanzsubstrat wurden zwei Versuchspflanzen mit unterschiedlichem Wasserbedarf, Steinbrech und Teppichphlox, ausgewählt und in verschiedene Pflanzsubstrate gepflanzt. Als Pflanzsubstrat dienten reine Pflanzerde, ein grobes Lavagestein (8-16 mm) sowie feine (0-4 mm) und grobe (2-8 mm) Hydrothermalgranulate. Zusätzlich wurden auch 50:50-Mischungen aus Hydrothermalgranulat und Pflanzerde getestet. Allen Versuchspflanzen wurde über einen Zeitraum von sieben Monaten die gleiche Wasser- und Düngermenge verabreicht. Dabei wurde die Wuchshöhe und Vitalität der Pflanzen kontinuierlich dokumentiert. Das Wasserspeichervermögen der Hydrothermalgranulate erwies sich als sehr gut. Die besten Ergebnisse lieferte Steinbrech mit einem geringen Wasserbedarf in einer 50:50-Mischung aus grobem Hydrothermalgranulat und Pflanzerde. Das sehr gute Wasserspeichervermögen der Hydrothermalgranulate führte zu einer kontinuierlichen Überdosierung der Wassermenge, sodass hingegen bei der ausschließlichen Verwendung von Hydrothermalgranulaten die Wurzeln fortwährend im Wasser standen und verfaulten. Die gleiche Beobachtung wurde auch mit dem Vergleichssubstrat Lavagestein gemacht. Bei den Versuchen mit Teppichphlox mit einem hohen Wasserbedarf ergaben sich keine nennenswerten Unterschiede zwischen den verschiedenen Pflanzsubstraten. Anhand des Pflanzenmonitorings wurde die Eignung der Hydrothermalgranulate als Pflanzsubstrat gezeigt. Die Substitution von Blähton oder anderen Pflanzsubstraten durch Hydrothermalgranulate wurde somit erfolgreich demonstriert. Abb. 3 zeigt die Versuchspflanzen nach Ende des Monitorings.



Abb. 3: Versuchspflanzen nach Ende des Monitorings: Steinbrech mit 1) HTG (grob) mit Erde; 50:50 und 2) Pflanzerde; Teppichphlox mit 3) HTG (fein), 4) HTG (grob), 5) Lavadrän 8/16, 6) HTG (fein) mit Erde; 50:50, 7) HTG (grob) mit Erde; 50:50 und 8) Pflanzerde (von links nach rechts) (Quelle: Projekt „HYTEGRA“).

6.3 Abwasserbehandlung

Die Reinigungsleistung von ausgewählten Hydrothermalgranulaten als Filtermaterial für die Abwasserbehandlung wurde im Labor in 1-L-Säulen und anschließend in 20-L-Säulen mit nachgestelltem und realem Abwasser getestet. Die abwasserrelevanten Parameter chemischer Sauerstoffbedarf (CSB) als Maß für den Kohlenstoffabbau, Nitrit- ($\text{NO}_2\text{-N}$), Nitrat- ($\text{NO}_3\text{-N}$), Ammonium- ($\text{NH}_4\text{-N}$) und Gesamtphosphorgehalt (Pges) sowie Temperatur und pH-Wert wurden kontinuierlich bestimmt. Grundsätzlich wurden in allen Laborversuchen sehr gute Reinigungsleistungen für alle ausgewählten Parameter festgestellt. Kohlenstoff, Phosphor und Stickstoff wurden nahezu vollständig entfernt und somit konnten die abwasserrechtlichen Grenzwerte eingehalten werden. Die Reinigungsleistung ist vergleichbar mit denen von Lavasand und fluvialen Sanden. Nur der pH-Wert des Ablaufs der Testsäulen lag stets knapp oberhalb des Grenzwertes von 8,5, der meist in wasserrechtlichen Erlaubnissen angegeben. Die Laborergebnisse zeigen dennoch das Potential der Hydrothermalgranulate als Filtersubstratkomponente, auch wenn noch weitere Anpassungen der Granulateigenschaften notwendig sind.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Ziel des ZIM-Kooperationsprojekts HYTEGRA war die Entwicklung

eines Verfahrens zur Erzeugung poröser Granulate mittels hydrothermal-chemischer Stoffumwandlung, um die Sekundärrohstoffe Mauerwerkbruch und Papierasche verwerten zu können. Die Herstellung der Hydrothermalgranulate erfolgte in einem mehrstufigen Prozess. Der Mauerwerkbruch wurde zu einem Mehl verarbeitet, das im Intensivmischer unter Zugabe von Wasser und Papierasche granuliert wurde. Die Härtung der Grüngranulate erfolgte hydrothermal bis zu einer Temperatur von 200 °C unter erhöhtem Druck in einer gesättigten Wasserdampf-atmosphäre. Durch die Variation des SiO₂-CaO-Mischungsverhältnisses, des Granulierprozesses und der Syntheseparameter Temperatur, Druck und Zeit ist eine gezielte Einstellung der Eigenschaften der Hydrothermalgranulate möglich. Aufgrund ihrer Eigenschaften können die Hydrothermalgranulate als leichte Gesteinskörnung bezeichnet werden. Ihre Eignung als Filtermaterial in Bodenfiltern für die Abwasserbehandlung und als Bestandteil von Pflanzsubstraten wurde erfolgreich in Applikationsversuchen gezeigt. Sie konnten ebenfalls für die innere Nachbehandlung von hochfestem Beton angewendet werden.

Zukünftig wird eine anwendungsspezifische Optimierung der Granulateigenschaften durch noch gezieltere Prozesssteuerung angestrebt. Darüber hinaus sind ein Scale-Up und der Transfer der Technologie in die Praxis geplant. Eine Erweiterung des Anwendungsspektrums und die Testung weiterer Sekundärrohstoffe stehen zur Diskussion.

Förderung

Das Projekt „HYTEGRA – Hydrothermalgranulate, Entwicklung poröser Granulate mittels hydrothormaler Behandlung von auf SiO₂- und CaO-reichen sekundären Rohstoffen basierenden Stoffmischungen für die Anwendung als Filter- und Speichermaterial“ wurde im Rahmen des zentralen Innovationsprogramms Mittelstand (ZIM) durch das Bundesministerium für Wirtschaft und Klimaschutz gefördert.

Projektvorstellung auf der Internetseite der BAM:

<https://www.bam.de/Content/DE/Projekte/laufend/HYTEGRA/hytegra.html>

Bibliografie

- ABuG (2019): *Muster-Verwaltungsvorschrift Technische Baubestimmungen (MVV TB), Anhang 10: Anforderungen an bauliche Anlagen bezüglich der Auswirkungen auf Boden und Gewässer (ABuG)*. Berlin: Deutsches Institut für Bautechnik (DIBt).
- Barthel, Maria (2023): *Papierasche als Bindemittelkomponente - Potentiale und Grenze*. Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Bentz, Dale P; Weiss, W. Jason (2011): *Internal Curing: A 2010 State-of-the-Art Review (NISTIR 7765)*. Gaithersburg: NIST - National Institute of Standards and Technology.
- DIN EN 196-1:2016-11 (2016): *Prüfverfahren für Zement – Teil 1: Bestimmung der Festigkeit*, Deutsche Fassung EN 196-1:2016. Berlin: Beuth Verlag GmbH.
- DIN EN 12617-4:2002 (2002): *Produkte und Systeme für den Schutz und die Instandsetzung von Betontragwerken, Prüfverfahren Teil 4: Bestimmung des Schwindens und Quellens*, Deutsche Fassung EN 12617-4:2002. Berlin: Beuth Verlag GmbH.
- DIN EN 13055:2016-11 (2016): *Leichte Gesteinskörnungen*. Berlin: Beuth Verlag GmbH.
- Gluth, Gregor J. G.; Lehmann, Christian; Rübner, Katrin; Kühne, Hans-Carsten (2014): „Reaction Products and Strength Development of Wastepaper Sludge Ash and the Influence of Alkalis“. *Cement and Concrete Composites* 45, 82–88.
- Kovler, Konstantin; Jensen, Ole M. (2007): *Internal Curing of Concrete - State-of-the-Art Report of RILEM Technical Committee 196-ICC*. Bagneux: RILEM Publications SARL.
- Kreislaufwirtschaft Bau (2023): *Mineralische Bauabfälle Monitoring 2020, Bericht zum Aufkommen und zum Verbleib mineralischer Bauabfälle im Jahr 2020*. Berlin: Bundesverband Baustoffe – Steine und Erden e. V.
- Ma, Xianwei; Liu, Jianhui; Shi, Caijun (2019): „A review on the use of LWA as an internal curing agent of high-performance cement-based materials“. *Construction and Building Materials* 218, 385-393.
- Müller, Anette (2016): *Erschließung der Ressourceneffizienzpotenziale im Bereich der Kreislaufwirtschaft Bau*. Bonn: Bundesinstitut für Bau-, Stadt- und Raumforschung (BBSR).
- Thommes, Matthias; Kaneko, Katsumi; Neimark, Alexander V.; Olivier,

- James P.; Rodriguez-Reinoso, Fransico; Rouquerol, Jean; Sing, Kenneth S. W. (2015): „Physisorption of Gases, with Special Reference to the Evaluation of Surface Area and Pore Size Distribution (IUPAC Technical Report)“. *Pure and Applied Chemistry* 87, 1051-1069.
- Weßel, Claudia; Brabender, Katrin; Öller, Hans-Jürgen; Persin, Christoph (2022): „Wasser- und Rückstandsumfrage in der deutschen Zellstoff- und Papierindustrie 2020“. *Wochenblatt für die Papierfabrikation* 6, 56-61.
- Wu, Linmei; Farzadnia, Nima; Shi, Caijun; Zhang, Zuhua; Wang, Hao (2017): „Autogenous Shrinkage of High-Performance Concrete: A Review“. *Construction and Building Materials* 149, 62-75.
- Yang, Li.; Shi, Caijun; Liu, Jianhui; Wu, Zemei (2021): „Factors affecting the effectiveness of internal curing: A review“. *Construction and Building Materials* 267, 121017.