

Gezielte Karbonatisierung

Verbesserte Qualität von Betonrezyklaten durch Bindung von Kohlendioxid

M. Seidemann, A. Müller, H.-M. Ludwig

Die Bauwirtschaft setzt immer mehr Beton ein. Dadurch nimmt der Anteil von Betonbruch in Bauabfällen zu. Im Zuge der knappen Ressourcen und der kostenintensiven Deponierung von Bauschutt, gewinnt das Recycling von Betonschutt zunehmend an Bedeutung.

Um hochwertige Gesteinskörnungen aus Betonbruch zu erhalten, ist es erforderlich, die Porosität von rezyklierten Gesteinskörnungen zu vermindern und ihre Festigkeit zu erhöhen. Die Herstellung, Verarbeitung, Festigkeit und Dauerhaftigkeit von Beton wird durch die Gesteinskörnungen mitbestimmt. Hierbei hat der Kapillarporenanteil einen bedeutenden Einfluss, da die wesentlichen Transportvorgänge im Betongefüge über die Kapillarporen erfolgen.

Die höhere Kapillarporosität von rezyklierten gegenüber natürlichen Körnungen findet sich in Betonen mit aufbereiteten Anteilen wieder. Dies verschlechtert die Betoneigenschaften. So vermindert sich beispielsweise die Festigkeit, wenn nicht durch einen höheren Zementeintrag gegengesteuert wird. Auch die Verarbeitungseigenschaften werden negativ beeinflusst, so dass beispielsweise zum Erreichen einer vorgegeben Konsistenz mehr Fließmittel eingesetzt werden muss.

Besonders gravierend wirkt der höhere Kapillarporenanteil auf den Sättigungsgrad und damit auf den Frost- und Frost-Tausalz-Widerstand. Auch andere Dauerhaftigkeitskenngrößen wie Karbonatisierung, Chlorideindringen und chemischer Widerstand können sich durch kapillarporenreiche rezyklierte Gesteinskörnungen signifikant verschlechtern.

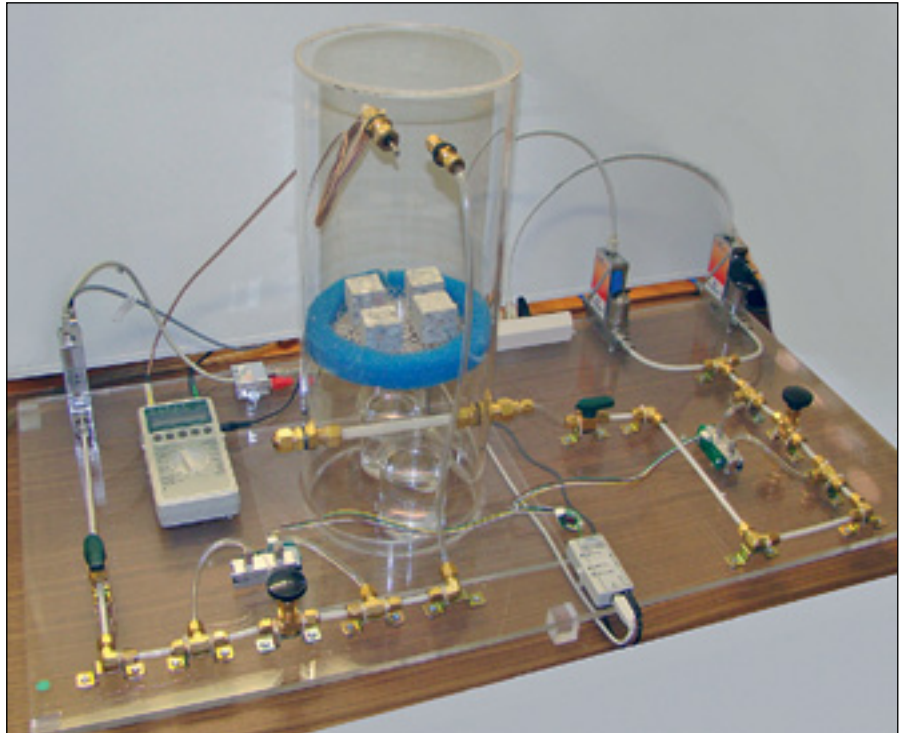


Abb. 1: Versuchsapparatur

Karbonatisierungsverlauf im Test

Die gesteuerte Karbonatisierung soll ein Maximum an Kohlendioxid (CO_2) in Betonrezyklaten dauerhaft binden. So verringert sich die Kapillarporosität des Rezyklats und die Betoneigenschaften verbessern sich.

Die Aufbereitung von Betonbruch vergrößert die Oberfläche, daraus ergibt sich eine stärkere Karbonatisierung. Diese ist ein von Bauwerksbetonen her bekannter Vorgang. Als diffusionsgesteuerter Prozess verläuft er jedoch sehr langsam. Die technische Herausforderung besteht darin, die Karbonatisierungsreaktion in einem Reaktor zu beschleunigen und damit technisch nutzbar zu machen. Die Karbonatisierung sollte dabei unter konstanten Bedingungen ablaufen, wobei eine Variation von Parametern wie der Zusammensetzung des Reaktionsgases, der Temperatur und der relativen Luftfeuchtigkeit möglich sein muss.

Der Karbonatisierungsverlauf von Zementstein und Modellbetonen wurde in einer Versuchsapparatur untersucht und so gesteuert, dass aus den experimentellen Ergebnissen die Abhängigkeit der Karbonatisierungsgeschwindigkeit von den äußeren Bedingungen ableitbar ist. Die gewonnenen Ergebnisse geben Rückschlüsse auf die Haupteinflussgrößen.

Nachdem die Beaufschlagung der Probe mit CO_2 in der Versuchsapparatur abgeschlossen ist, werden die physikalischen Eigenschaften untersucht. Diese werden mit der Ausgangsprobe verglichen, um beurteilen zu können, ob die erwarteten Veränderungen bezüglich der Porosität, Porengrößenverteilung, Rohdichte etc. eingetreten sind.

Versuchsanlage

Um rezyklierte Gesteinskörnungen gezielt karbonatisieren und im Labor untersuchen zu können, wurde eine Versuchs-

* Korrespondierender Autor.
Kontakt:
Marko Seidemann
Bauhaus-Universität Weimar
Tel: + 49 (0) 3643 / 58 46 99
marko.seidemann@uni-weimar.de

► Ergebnisse auf einen Blick

- Mit gesteuerter Karbonatisierung wurden Zementpasten und Modellbetone untersucht.
- Karbonatisierung mit Kohlendioxid verringert den Calciumhydroxidgehalt und erhöht den Calciumcarbonatgehalt.
- Gezielte Karbonatisierung bindet Kohlendioxid dauerhaft und verbessert Materialeigenschaften wie Verarbeitungseigenschaften und Festigkeit.

apparatur entwickelt. Abb. 1 zeigt die vollständig aufgebaute Versuchsanlage mit dem Rohrreaktor, den Gaszu- und abführungen sowie den Messsonden.

Im Rohrreaktor werden die Probekörper kontinuierlich mit einem voreingestellten Gasmischungs beaufschlagt. Nachdem sich das Gasmischungs im Probenraum befindet, kommt es durch das stetige Nachdrängen von Gas zu einer Durchströmung. Die Strömungsgeschwindigkeit ist veränderbar.

Weiterhin kann die CO₂-Konzentration des Reaktionsgases zwischen 0 und 100 Vol.-% variiert werden. Eine im Zulauf befindliche CO₂-Messzelle überprüft die Gaskonzentration und eine Salzlösung im Probenraum gewährleistet eine gleichbleibende relative Luftfeuchte von ca. 70 %.

Über eine Messsonde erfolgt die Überwachung der Luftfeuchtigkeit und der Temperatur im Reaktorinneren. Nachdem das Gasmischungs den Probenraum durchströmt hat, bestimmt eine zweite Messzelle erneut die Konzentration an CO₂. Aufgrund der Konzentrationsänderung zwischen dem Zu- und dem Ablauf des Rohrreaktors können erste Aussagen über die Karbonatisierung der Probe getroffen werden.

Gezielte Karbonatisierung von Zementpasten

Die ersten Versuche erfolgten an Zementsteinquadern, die aus Zementsteinprismen durch Sägen gewonnen wurden. Die Quader hatten eine Abmessung von 4 x 4 x 2 cm. Die Versuche erstreckten sich über verschiedene Zeitintervalle bei einer konstanten CO₂-Konzentration von 60 Vol.-%. Die Ergebnisse geben Aufschluss über die Karbonatisierungstiefe und die relative Massezunahme in Abhängigkeit vom Wasserzementwert (w/z-Wert) der Zementsteinprismen. Die relative Massezunahme gibt Auskunft über den Karbonatisierungsgrad. Vereinfachend kann bei Zementpasten von einer Massezunahme von 30 % bei vollständiger Karbonatisierung ausgegangen werden.

Abb. 2 zeigt die Abhängigkeit der Massezunahme vom w/z-Wert und der Bewitterungszeit. Erkennbar ist eine mit zu-

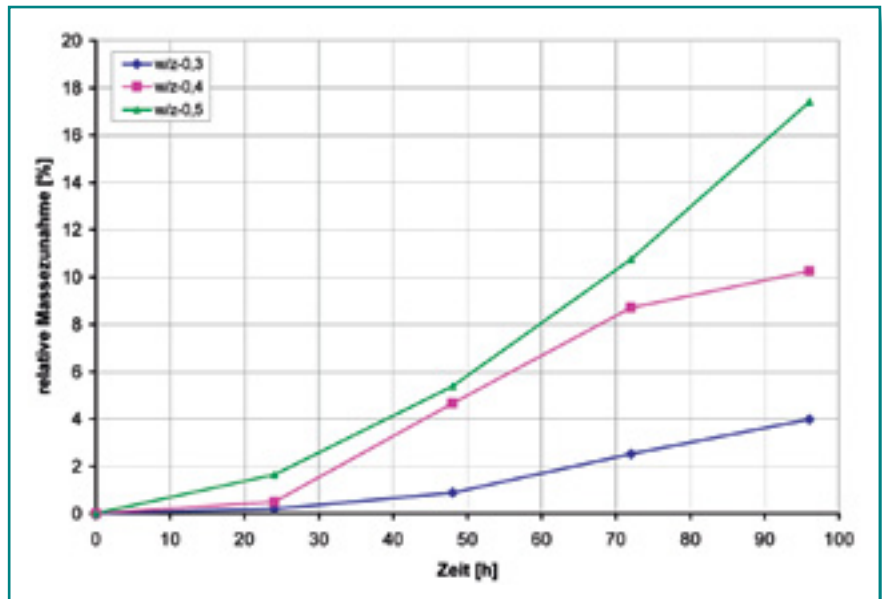


Abb. 2: Relative Massezunahme in Abhängigkeit von w/z-Wert und Zeit

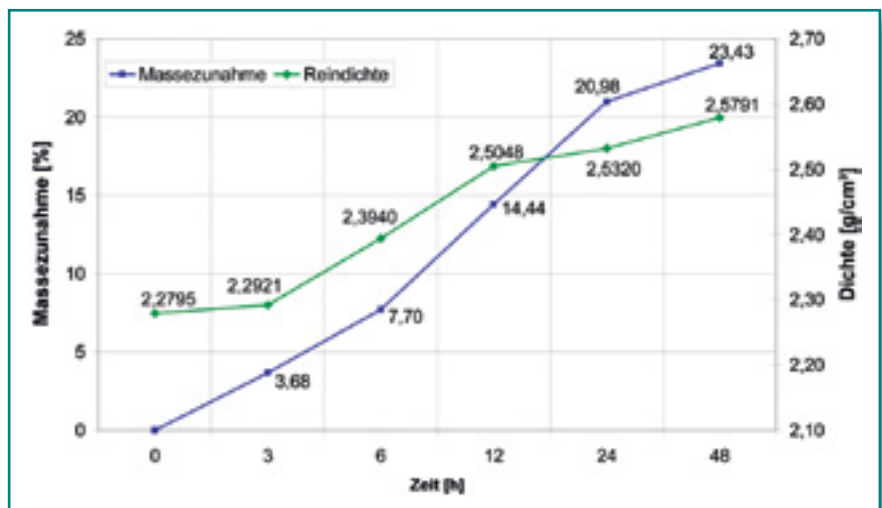


Abb. 3: Masse- und Dichtezunahme nach der Karbonatisierung

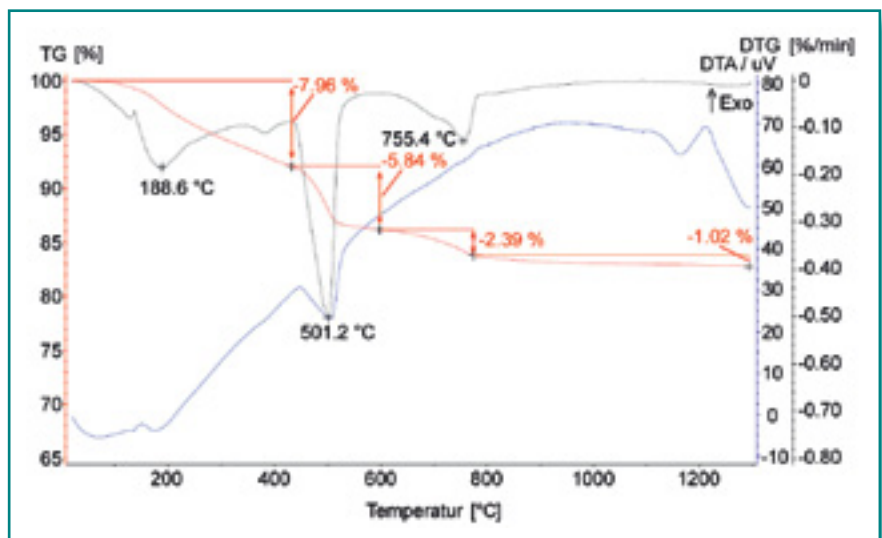


Abb. 4: DTA und TG vor der Bewitterung

nehmendem w/z-Wert stärker werdende Massezunahme über den Begasungszeitraum. Da die Massezunahme hier gleichbedeutend mit einer CO₂-Bindung ist, kann davon ausgegangen werden, dass Zementsteine (ZS) mit höherem w/z-Werten aufgrund ihrer ausgeprägten Kapillarporosität größere Mengen an Calciumcarbonat (CaCO₃) bilden.

In weiteren Versuchsreihen erfolgten die Untersuchungen an Proben mit einer Korngröße 2/4 mm und einem w/z-Wert von 0,5. Die Versuche wurden bei 20, 40, 60, 80 und 100 Vol.-% CO₂ bei einer Bewitterungszeit von 3, 6, 12, 24 und 48 Stunden durchgeführt.

In den Abb. 3 bis 5 ist ein Teil der Ergebnisse der Versuchsreihe mit einer CO₂-Konzentration von 20 Vol.-% dargestellt. Die Abb. 3 zeigt die Korrelation zwischen der Massezunahme und der Dichte der Proben nach dem Aufenthalt im Reaktor. Es ist ein stetiger Anstieg der Dichte (ρ) in Abhängigkeit von der Massezunahme zu erkennen, was darauf hindeutet, dass eine CO₂-Aufnahme mit CaCO₃-Bildung stattgefunden hat ($\rho_{ZS} = 2,28 \text{ g/cm}^3$; $\rho_{CaCO_3} = 2,93 \text{ g/cm}^3$).

Im Anschluss an die Bewitterung konnte mittels Differentialthermoanalyse und Thermogravimetrie (DTA und TG in Abb. 4 und 5) eine Abnahme des Calciumhydroxidgehalts und eine Zunahme des CaCO₃-Gehalts eindeutig nachgewiesen werden. Beispielsweise betrug der CaCO₃-Gehalt in der Ausgangsprobe nur 6,6 %. Nach der Behandlung im Karbonatisierungsreaktor stieg er auf 73,4 %.

Die ersten Messungen zeigen, dass die CO₂-Aufnahme durch den Zementstein unter den gewählten Versuchsbedingungen signifikant beschleunigt werden kann. Die Dauer, die bei der Karbonatisierung von Betonbauwerken in Jahren gemessen wird, verschiebt sich in den Stundenbereich.

Tab. 1 zeigt die Gesamtporositäten, die mit der Quecksilberdruckporosimetrie bestimmt wurden: Die Karbonatisierung verringert die Gesamtporosität.

In Abb. 6 ist die Porenradienverteilung für die Proben aus Tab. 1 grafisch dargestellt. Deren Kapillarporenanteil sinkt gegenüber der Referenzprobe mit zunehmender Karbonatisierungszeit. Das Gefüge im Zementstein wird durch die Karbonatisierung dichter.

Gezielte Karbonatisierung von Modellbetonen

Für die gezielte Karbonatisierung eines Modellbetons erfolgte die Anfertigung von Probekörpern. Für die Herstellung des Betons wurde ein Portlandzement (CEM I 32,5R) und ein w/z-Wert von 0,5 verwendet. Die Betonwürfel hatten eine Seiten-

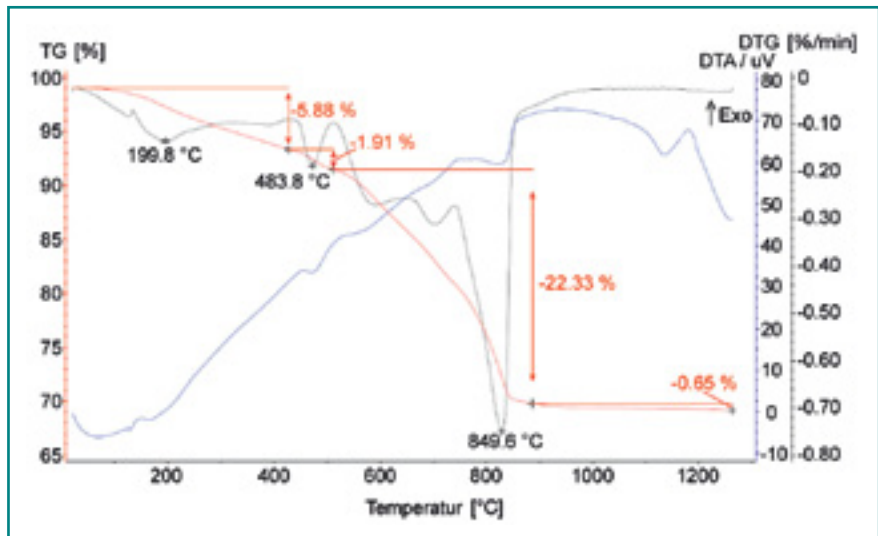


Abb. 5: DTA und TG nach der Bewitterung

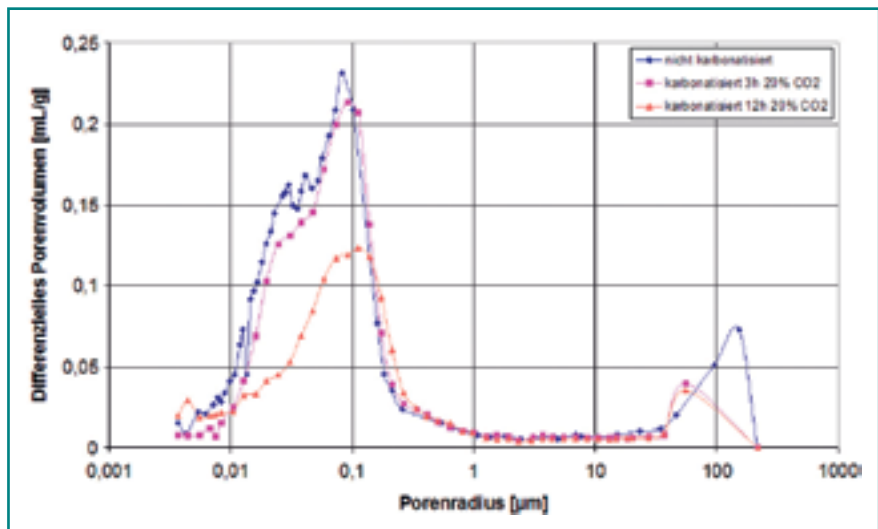


Abb. 6: Porenradienverteilung vor und nach der Karbonatisierung

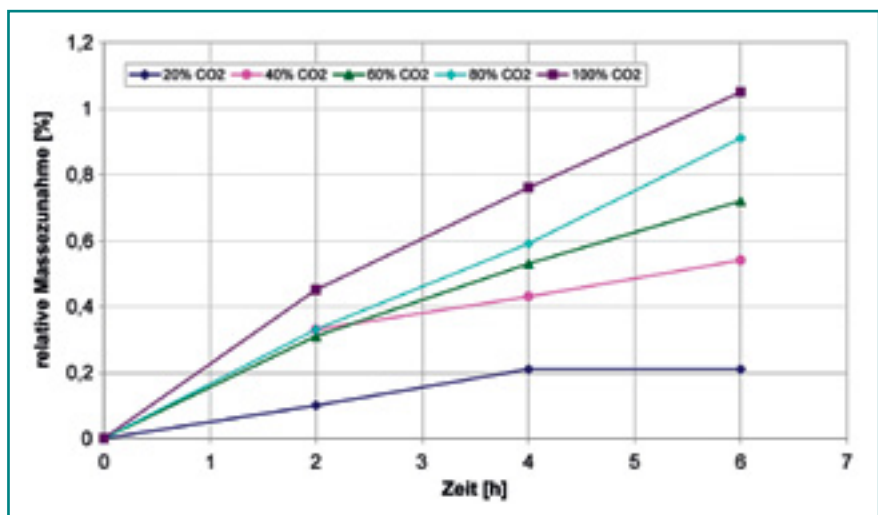


Abb. 7: Relative Massezunahme in Abhängigkeit von Zeit und CO₂-Konzentration

► Tab. 1: Abhängigkeit der Porosität von der Bewitterungszeit

Bewitterungszeit [h]	0	3	12
Porosität [%]	35,02	32,41	25,24

länge von 15 cm und wurden in mehrere kleinere Würfel geteilt. Die Zerkleinerung der Betonwürfel wurde über eine Nasssägung realisiert.

Die gezielte Karbonatisierung erfolgte jeweils an drei Würfeln mit einer Seitenlänge von 3,5 cm bei CO₂-Konzentrationen von 20, 40, 60, 80 und 100 Vol.-%. Der Versuchszeitraum erstreckte sich über sechs Stunden im gleichmäßig durchströmten Rohrreaktor. Dabei wurde der 1. Würfel nach zwei Stunden, der 2. nach vier Stunden und der 3. nach sechs Stunden aus dem Rohrreaktor entnommen. Im Reaktorinneren herrschte eine durchschnittliche Temperatur von 24 °C und eine relative Luftfeuchte von ca. 70 %. Der Durchfluss wurde mit 150 ml/min eingestellt, d.h. die Strömungsgeschwindigkeit betrug 0,09 mm/s.

Die Würfel wurden im Trockenschrank bei 105 °C vor und nach der Bewitterung bis zur Massekonstanz getrocknet.

Das in Abb. 7 dargestellte Diagramm zeigt den Verlauf der Massezunahme über einen definierten Zeitabschnitt in Abhän-

gigkeit von der CO₂-Konzentration. Es ist eindeutig zu erkennen, dass mit dem Anstieg der CO₂-Konzentration die Karbonatisierungsreaktion beschleunigt wird. Weiterhin ist aus dem Diagramm zu entnehmen, dass mit zunehmender Karbonatisierungszeit die Massezunahme steigt, was wiederum auf die vermehrte Bildung von CaCO₃ hindeutet. Im Vergleich zu reinem Zementstein ist die Massezunahme deutlich geringer. Ursache ist der geringere Zementsteingehalt im Beton gegenüber den reinen Zementsteinpasten.

Dank

Die Autoren danken der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU) für die Unterstützung im Rahmen des Forschungsprojekts „Gezielte Karbonatisierung rezyklierter Gesteinszuschläge zur simultanen Nutzung von Betonbruch und Verbesserung der Materialeigenschaften als Beitrag zur CO₂-Minderung“.

Die Zunahme der Masse endet, sobald für die Karbonatisierung keine Reaktionspartner mehr zur Verfügung stehen oder das Kapillarporensystem nicht mehr vollständig durchgängig ist, so dass die CO₂-Nachlieferung in das Probeninnere verhindert wird.

Ausblick

Die Versuchsergebnisse zeigen den Erfolg der gezielten Karbonatisierung. Es kommt zu einer dauerhaften Bindung von CO₂ und einer Verbesserung der Materialeigenschaften. Die Untersuchungen zur Karbonatisierung von Zementstein und Beton werden in verschiedenen Richtungen weitergeführt und vertieft. Im nächsten Schritt werden Messungen an Praxisbetonen durchgeführt, in denen Korrelationen zwischen der CO₂-Aufnahme und den Veränderungen der physikalischen Eigenschaften aufgezeigt werden sollen. ◀

► Literatur

- [1] Stark, J.; Wicht, B.: Anorganische Bindemittel, Bauhaus-Universität Weimar, 1998.
- [2] Locher, F. W.: Zement, Verlag Bau+Technik, 2000.
- [3] Stark, J.; Wicht, B.: Dauerhaftigkeit von Beton, Bauhaus-Universität Weimar, 2001.
- [4] Kropp, J.: Karbonatisierung und Transportvorgänge im Zementstein, Universität Karlsruhe, 1983.
- [5] Bier, T. A.: Karbonatisierung und Realkalisierung von Zementstein und Beton, Universität Fridericiana zu Karlsruhe, 1988.
- [6] Wang, S.: Berechnung des Karbonatisierungsfortschritts in Betonbauteilen, RWTH Aachen, 1993.
- [7] Jacobs, F.P.H.: Permeabilität und Porengefüge Zementgebundener Werkstoffe, AEDIFICATIO Verlag, 1994.
- [8] Castellote, M.; Andrade, C.; Turrillas, X.; Campo, J.; Campo, J.: Accelerated carbonation of cement pastes in situ monitored by neutron diffraction, Cement and Concrete Research, 2008, 38, 1365-1373.
- [9] Ghoshal, S.; Niven, R. A.: Carbon Dioxide Uptake Rate and Extent during Accelerated Curing of concrete.
- [10] Pade, C.; Guimaraes, M.: CO₂ uptake of concrete in a 100 year perspective, Cement and Concrete Research, 2007, 37, 1348-1356.



• Marko Seidemann

studierte Bauingenieurwesen an der Bauhaus-Universität Weimar. Seinen Werdegang dort begann er im Jahr 2008 als wissenschaftlicher Mitarbeiter bei Prof. Anette Müller (Professur Aufbereitung von Baustoffen und Wiederverwertung). Seit April 2011 ist er wissenschaftlicher Mitarbeiter bei Prof. Horst-Michael Ludwig am F.A. Finger-Institut für Baustoffkunde (Professur Werkstoffe des Bauens).



• Prof. Anette Müller

studierte Baustoffingenieurwesen an der Hochschule für Architektur und Bauwesen Weimar, heute Bauhaus-Universität Weimar. Sie promovierte dort im Jahr 1974 zum Dr.-Ing. Im Jahr 1988 habilitierte sie. Im Jahr 1995 wurde sie zur Universitätsprofessorin an der Bauhaus-Universität Weimar, Fakultät Bauingenieurwesen, Professur „Aufbereitung von Baustoffen und Wiederverwertung“. Seit April 2011 arbeitet sie am IFF Weimar und berät zu Themen des Baustoffrecyclings.



• Prof. Horst-Michael Ludwig

studierte Baustoffverfahrenstechnik an der Hochschule für Architektur und Bauwesen Weimar, heute Bauhaus-Universität Weimar. Im Jahr 1996 promovierte er zum Dr.-Ing. Ab 2001 war er Leiter der F&E der gesamten Schwenkgruppe. Ab 2002 zusätzlich Geschäftsführer der Zembet Entwicklungsgesellschaft mbH. Seit 2009 ist er Universitätsprofessor an der Bauhaus-Universität Weimar, am F. A. Finger-Institut für Baustoffkunde, Professur „Werkstoffe des Bauens“.



**Und nun sind Sie gefragt:
Bewerten Sie diesen Beitrag für den
FARBE UND LACK Preis 2012
www.farbeundlack.de/bewertung**