

Braunkohleflugasche - ein möglicher neuer Einsatzstoff für bautechnische Zwecke

von Hans Kurzweil

Vortrag, gehalten am 27. November 1996

Einleitung

Der Verkauf von Kohle der GRAZ KÖFLACHER BERGBAU GMBH (GKB) an Industriekunden ist seit Jahren mit einer Rücknahme der bei der Kohleverbrennung anfallenden Aschen verbunden. Ihre Verkipfung erfolgt mit bergbehördlicher Bewilligung fast ausschließlich in der Mulde des ehemaligen Braunkohlentagbaues Karlschacht 1 unter strikter Befolgung behördlich angeordneter Prüfungen und Auflagen.

Rechtliche und wirtschaftliche Gründe führten dazu, dass seit 1993 von einer ausschließlichen Depositionierung der Aschen abgegangen wurde. In Kenntnis

mineralogischer, chemischer und bautechnischer Bewertungskriterien wurde ab diesem Zeitpunkt versucht, wenigstens Teile der jährlich mit deutlich über 100.000 t anfallenden Braunkohleaschen für bautechnische Zwecke zu nutzen und damit einen problembehafteten Abfallstoff in einen wirtschaftlich interessanten Sekundärrohstoff umzuwidmen.

Die seit langem bekannte Eigenschaft nach Zugabe von Wasser Abbinde-Reaktionen einzuleiten und Stabilisate zu bilden hat dazu geführt, dass Flugaschen in Österreich zwar noch nicht als traditioneller Baustoff bewertet werden, ihre Bedeutung für lokale Bauvorhaben sowie als Zuschlagstoff in der Zement- und Baustoffindustrie aber zunimmt. Dies umso mehr, wenn, wie im gegenständlichen Fall, in Kraft tretende Gesetzesregelungen das Deponieren von Flugaschen in der bisherigen Art durch erschwerte Rahmenbedingungen wirtschaftlich praktisch unmöglich machen.

Ein möglicher Einsatz von Flugaschen für bautechnische Zwecke erfordert jedoch umfangreiche Voruntersuchungen. Neben den zuvor genannten Parametern sind es vor allem Prüfungen zum Langzeitverhalten der Aschen bzw. an den sich aus ihnen entwickelnden Aschesteinen sowie Feststellungen zur Umweltverträglichkeit.

Braunkohleflugaschen haben generell eine relativ variable Zusammensetzung, die von der Qualität des Brennstoffes, den Zuschlägen sowie den Feuerungsbedingungen gesteuert wird. Trotz dieser

Rahmenbedingungen ist der mineralogische Stoffbestand der Aschen qualitativ als relativ einförmig zu bezeichnen. Es sind die quantitativen Unterschiede im jeweiligen Mineralbestand, die das Verhalten von Braunkohleaschen bei Abbindereaktionen sowie den dabei entstehenden Stabilisaten prägen.

Ohne auf Details hier näher eingehen zu können, lässt sich die mineralogische Zusammensetzung der Aschen als ein Gemenge aus nichtreaktiven Primärphasen und den durch Verbrennung entstandenen Neubildungen charakterisieren. Die Reaktivität der neugebildeten Phasen mit wässrigen Lösungen ist dann entscheidend für die späteren Stabilisateigenschaften und damit für Einsatz und Brauchbarkeit dieser Aschen für bautechnische Zwecke.

Am Institut für Petrologie der Universität Wien wurden bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt im Rahmen von Projekten verschiedene Forschungsschwerpunkte zu möglichen Alternativen zur Aschedeponierung wahrgenommen. Sie alle wurden in großzügiger Weise von der GRAZ KÖFLACHER BERGBAU GMBH (GKB) unterstützt, wobei nicht nur finanzielle Mittel, sondern im hohen Ausmaß Hilfestellungen bei der Bewältigung verfahrenstechnischer Probleme die Untersuchungen erst möglich machten.

Forschungsschwerpunkte betrafen zunächst Abmischungsmöglichkeiten von Aschen mit den vor Ort anstehenden Tonmergeln. Unter besonderer Berücksichtigung von Parametern wie Mischbarkeit, Durchlässigkeitsentwicklung, Ionenaustausch- und

Sorptionskapazität sowie von Eluierbarkeit und Sickerwasserbildung wurde an unterschiedlich gestuften Mischungsverhältnissen von Abraum und Asche u.a. ein Verfahren entwickelt, das bei Rekultivierungen von stillgelegten Tagbauen mit Erfolg eingesetzt werden konnte.

Zur Schaffung weiterer Voraussetzung für eine mögliche Verwendbarkeit der Flugaschen für praktische bautechnische Zwecke wurden anschließend umfangreiche Grundlagenuntersuchungen durchgeführt. Neben den bereits genannten Daten zur Mineralogie, Chemie und bautechnischen Parametern sollten insbesondere wichtige Kennwerte zum Langzeitverhalten von Wirbelschicht-Feuerungsaschen (WSF) im Laufe ihrer Stabilisierung erhoben werden.

Durchführung der Untersuchungen und Ergebnisse

Zum Zeitpunkt des Untersuchungsvorhabens wurden vier Wirbelschicht- Feuerungsaschearten aus Köflacher Braunkohle in Verbindung mit Feuerungsstoffen aus der Papier- und Kartonagenerzeugung in die Mulde des ehemaligen Braunkohlentagbaues "Karlschacht 1" verkippt.

Konkret handelt es sich um die Aschen BRUCK, PITTEN, RVA- und Wirbelschicht-Feuerungsaschen (WSF) Gratkorn. Daten zu ihrer Herkunft, den Bildungsbedingungen sowie zu anfallenden Aschemengen sind bei KURZWEIL (1996) und SABBAS (1995) angeführt. Das Untersuchungsvorhaben wurde auf

alle Aschearten ausgedehnt. Schwerpunkte betrafen die Bereiche

- Feststoffchemie
- Mineralogie
- Durchlässigkeitsverhalten
- Elutionsverhalten
- Stabilisierungsverhalten
- Druckfestigkeit
- Elastizitätsmodul

Umfangreiche Voruntersuchungen waren notwendig, um entsprechende Verfahren zum Prüfungsablauf zu entwickeln. Davon betroffen waren insbesondere Prüfkörperherstellungen, Optimierungen von Untersuchungszeitpunkten und letztlich genau einzuhaltende Prüfprogramme, die als unabdingbare Voraussetzung zur Vergleichbarkeit von Messdaten erforderlich sind.

Solche Überlegungen waren vor allem im Hinblick auf Beobachtungen zum Langzeitverhalten der Aschen und ihrer Stabilisate von grundlegender Bedeutung. Da nach Befeuchtung der Aschen Sofortreaktionen einsetzen, die von meist intensiven mineralogischen Um- und Neubildungen begleitet sind, musste besonders dieser Zeitraum durch kurzfristig angesetzte Untersuchungszeitpunkte belegt werden. Die Verlangsamung der Prozesse nach wenigen Tagen und ihr de facto Auslaufen nach 12 bis 14 Monaten ließ dann längere Beprobungsintervalle für zulässig erscheinen.

Die Untersuchungszeitpunkte für Mineralanalysen wurden dementsprechend unmittelbar nach der Probenahme (trocken) sowie nach 1h, 19h, 2d, 5d, 10d, 25d, 60d, 125d, 226d und 360d angesetzt, während die Durchführung von Elutionstests mittels Trog- oder Säulenverfahrens sowie Durchlässigkeitsversuche nach 3d, 5d, 10d, 25d, 60d, 125d, 228d und 360d vorgenommen wurden. Für jedes dieser Probenalter wurden eigene Probekörper hergestellt.

Chemische und mineralogische Zusammensetzung der Flugaschen

Die mit Hilfe von Röntgenfluoreszenz (XRF), Atomabsorptionsspektroskopie (AAS), Inductively-coupled-Plasma-Messungen (ICP), ionenselektiven Elektroden sowie gravimetrischen Verfahren zur Feststoffchemie charakterisiert die Aschen aus BRUCK, PITTEN und WSF-Aschen aus Gratkorn als vergleichbar in ihrer Zusammensetzung. Der Feststoffgehalt der RVA-Asche, mit hohen Konzentrationen vor allem an Erdalkalien, weicht gegenüber diesen Chemismen deutlich ab (Abb.1).

Bei den Spurengehalten sind nur die Cu-Werte von BRUCK und PITTEN sowie der As-Gehalt von WSF-Aschen aus Gratkorn auffällig. Die übrigen Elemente liegen mit ihren Konzentrationen jeweils unter den Grenzwerten für Bodenaushubdeponien (DEPONIEVERORDNUNG 1996, II. Abschnitt, Zuordnung von Abfällen, Anlage 1).

Die Ausgangsmineralogie und die sich im Zuge des Stabilisierungsprozesses neu bildenden Phasen

Feststoffgehalt - Hauptelemente

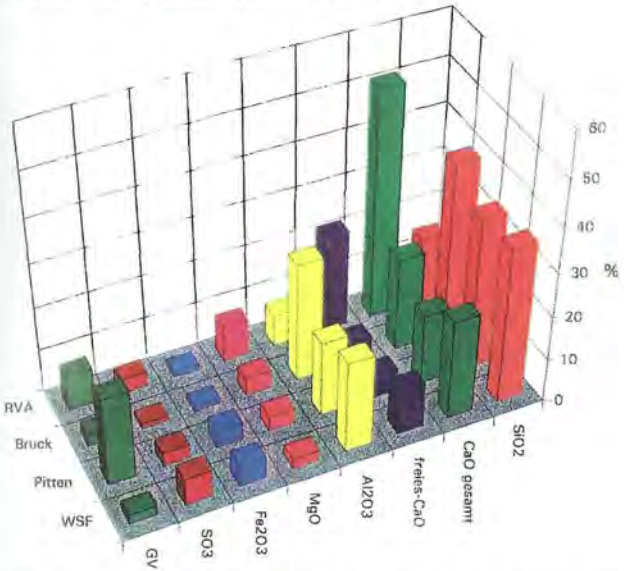


Abb. 1: Feststoffgehalt der Aschen in % (Hauptelemente)

sind entscheidend für Qualität und Verwendbarkeit der Aschen als potentieller Massenrohstoff.

Die röntgenographisch festgestellten und versuchsweise quantifizierten Mineralbestände zeigen im Alter/Zählraten-Diagramm sehr deutlich die sich Asche-spezifisch einstellenden Mineralreaktionen und die dazu erforderlichen kritischen Stabilisierungsalter.

Am Beispiel der WSF-Aschen soll gezeigt werden, dass nur unter Einhaltung dieses Prüfverfahrens Aussagen zum Langzeitverhalten des Baustoffes

WSF - Mineralogie

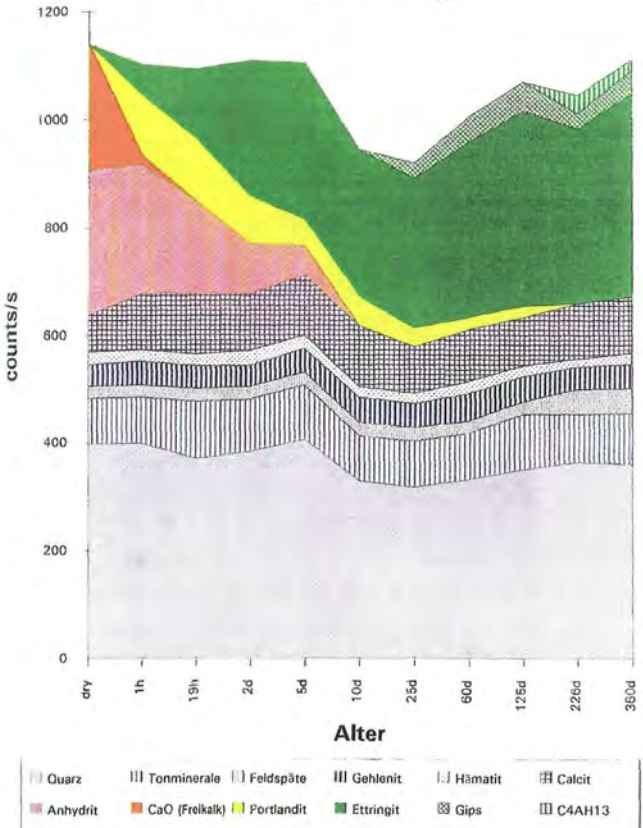


Abb. 2: Mineralogische Entwicklungsstadien der WSF Asche

Braunkohle-Flugasche möglich sind. Wie Abb.2 zeigt, besteht die WSF-Aschen aus Gratkorn im wesentlichen aus einem inerten mineralogischen

Altbestand (blau), einem reaktiven Altbestand (rot), der Zwischenphase Portlandit (gelb) sowie Neubildungen (grün). Zum Ablauf des Reaktionsprozesses ist erkennbar, dass freies Calciumoxid (CaO) und Anhydrit bei gleichzeitiger Entwicklung von Portlandit innerhalb von nur 5 Tagen abgebaut werden. Neben dieser allmählich auslaufenden Zwischenphase wird Ettringit die zunehmend bestimmende Neubildung und später, zusammen mit anderen Reaktionsprodukten (Gips, C_4AH_{13} [Gruppe Calcium-Aluminat-Hydrate]), die entscheidende Bezugsgröße zum Verfestigungsverhalten der Asche. Diese Daten, unterstützt durch Rasterelektronenmikroskopie-Dokumentationen (Abb.3) und Durchlässigkeitsprüfungen an Aschestabilisaten, lassen den Schluss zu, dass kurzfristig ablaufende Reaktionsprozesse nach ca. 25 Tagen abklingen und der vorliegende Aschestein dann als relativ stabil eingestuft werden kann.

Die Aschen aus BRUCK und PITTEN zeigen vergleichbare Entwicklungen. Anders verhält sich die RVA-Asche, die im Beobachtungszeitraum ein Auslaufen des Reaktionsprozesses nicht erkennen lässt und damit als Baustoff ungeeignet erscheint.

Diagenetisches Altern von Flugaschen ist naturgemäß mit Gefügeänderungen im Aschekörper verbunden. Zu den wesentlichen Merkmalen dieser Prozessabläufe zählen Verzahnung und Verdichtung des Stabilisats sowie die Bildung von Speichermineralen. Verbesserte Druck- und Biegezugfestigkeiten, verbunden mit einer Abnahme von Porosität und Durchlässigkeit, sind dann die Folge.

Diese Entwicklung kann mit Hilfe von REM visualisiert werden. Es zeigt sich, dass die Zustandsänderungen im Stoffbestand auch Wachstumsänderungen bedeuten und ein körnig ausgebildeter Altbestand von blättrigen, zunehmend fasrig-verfilzten Aggregaten, wahrscheinlich aus Ettringit bestehend, abgelöst wird. Dieser zur Verringerung der Durchlässigkeit und zur Verdichtung des Materials führende Weg ist zunehmend auch mit komplexen Chemismen der Neubildungen verbunden.

Eluierbarkeit

Neben den eben dargestellten Eigenschaften, die im wesentlichen den Aggregatzustand der Aschen während ihres Stabilisierungsprozesses beschreiben, ist die Bestimmung ihrer Eluierbarkeit von wenigstens gleichrangiger Bedeutung. Auf das zu den Elutionsversuchen vorliegende, sehr umfangreiche Datenmaterial kann hier nur im Überblick eingegangen werden. Schwerpunkte dieses Untersuchungsteiles waren u.a. Feststellungen zur

- Entwicklung der Ascheeluante mit steigendem Stabilisierungsalter
- Überprüfung der Eluate auf toxische Beimengungen (ÖNORM S2072, 1990: Eluatklassen (Gefährdungspotential) von Abfällen, Österr. Normungsinstitut, Wien)
- Vergleich der Elutionsarten
- Reproduzierbarkeit der Ergebnisse und
- Beurteilung der Aussagefähigkeit kleiner Versuchsserien

Um die Prüfung des Auslaageverhaltens der Aschen möglichst naturnahen Bedingungen anzupassen wurden dazu Trog- (Trogverfahren des AK 6.4.1. der FGSV [Forschungsgesellschaft Straße und Verkehr]) und Säulenversuche (DEV S4 [Deutsches Einheitsverfahren = DIN 38 414, Teil4]) an reproduzierbaren Prüfkörpern durchgeführt, wie sie in gleicher Weise auch zur Feststellung von Durchlässigkeit und Druckfestigkeit eingesetzt wurden.

Die Konzentrationsentwicklungen der Eluate wurden zu den bereits genannten Untersuchungszeitpunkten gemessen. Da seit Beginn behördlich angeordneter und an den Aschen in regelmäßigen Abständen durchgeführten Prüfungen keine erhöhten Schwermetallkonzentrationen in den Eluaten nachgewiesen werden konnten (KURZWEIL, 1996; SABBAS, 1995), wurden die Analysen - mit Ausnahme der Beprobung nach 125 Tagen - auf die Hauptbestandteile der Lösungsinhalte beschränkt. Am Beispiel von Konzentrationsentwicklungen im Trogversuch sind in Abb. 4 am mengenmäßig vor Ort überwiegenden Aschetyp (WSF-Aschen aus Gratkorn) Lösungskonzentrationen mit zunehmendem Stabilisierungsalter dargestellt.

Das sich generell zur Entwicklung von Lösungsinhalten von Ascheeluat abzeichnende Bild zeigt beträchtliche Unterschiede, zum einen materialbedingt, zum anderen aber auch methodisch verursacht. Die Qualität und Höhe der Ionenkonzentrationen ist dem mineralogisch ausgewiesenen Feststoffgehalt der Aschen angepasst, wobei allerdings offen bleibt, welche Rolle den in den Aschen

ebenfalls angereicherten, röntgenamorphen Bestandteilen oder auch Glaspartikeln beim Ablauf der Lösungsprozesse zukommt. In jedem Falle sind jedoch Art und Höhe der Ionenkonzentrationen ein wesentliches Kriterium für die mögliche Einsetzbarkeit dieses Rohstoffes für bautechnische Zwecke.

Zunehmendes Stabilisierungsalter ist generell mit einer Verringerung von Gesamtmineralisierungen der Eluate verbunden. Fortschreitende Verfestigung und die abnehmende Durchlässigkeit der Aschekörper sind dafür die Ursache. Im Zuge dieser Entwicklung unterliegen zwar einzelne Parameter beträchtlichen Schwankungen, und es gibt auch Rekurrenzen, doch ist davon auszugehen, dass die Konzentrationsbilder durchwegs den deutlichen Trend erkennen lassen, dass die Prozesse - anfänglich von hohen Konzentrationen mit einer z.T. deutlichen Schwankungsbreite begleitet - nach etwa 125 Tagen auslaufen.

Für den wichtigsten unter den vier Aschetypen, der WSF-Aschen aus Gratkorn, ergibt sich demnach eine Eluatentwicklung, die für den angesprochenen Zeitraum eine Mehrphasigkeit erkennen lässt:

- Leitfähigkeit, pH-Wert und Calcium sinken auf ein relativ konstantes Niveau
- Kalium und Natrium steigen rasch auf ein relativ konstantes Niveau
- Sulfat und Chlorid sinken zunächst ebenfalls stark, um später wieder anzusteigen
- Aluminium zeigt insbesondere im Säulenversuch von Beginn an steigende Tendenz

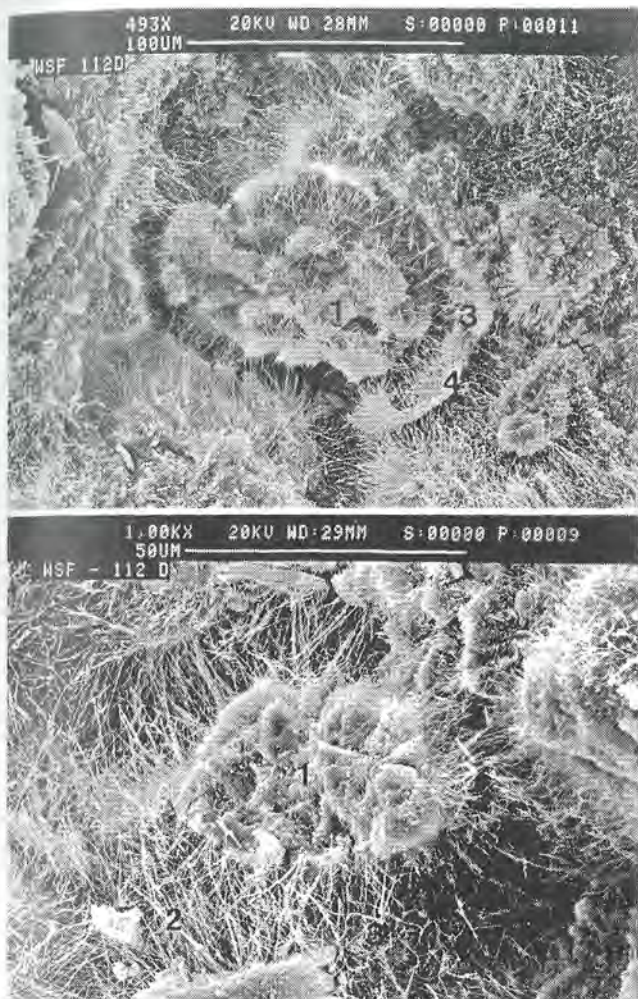


Abb. 3: Entwicklungen der Korngefüge der Asche im Zuge von Abbindereaktionen: WSF-Asche - 112 Tage alt - 493-fache Vergrößerung (oben) bzw. 1000-fache Vergrößerung (unten)

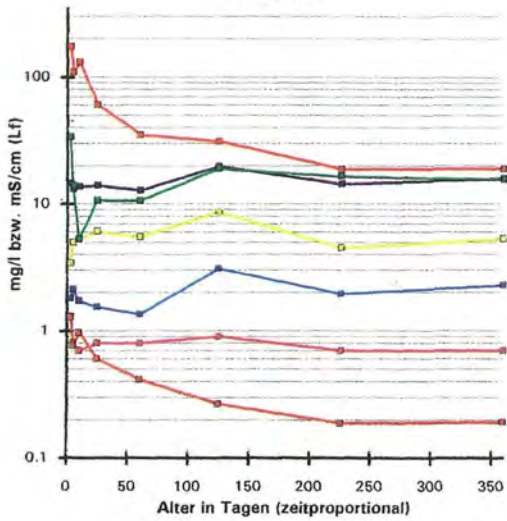
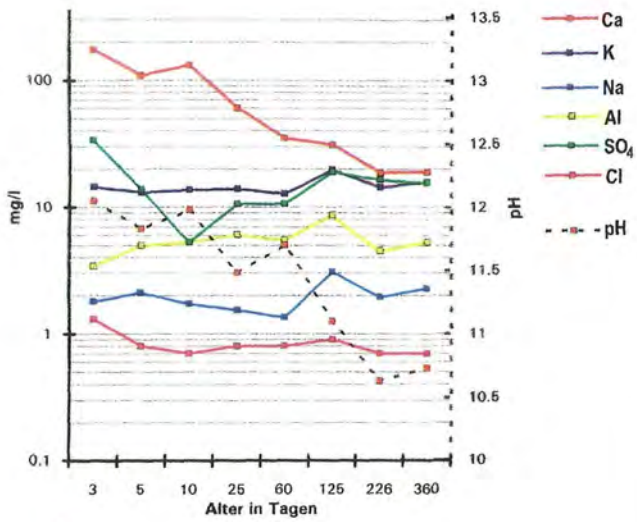


Abb. 4.

Druckfestigkeit und Elastizitätsmodul

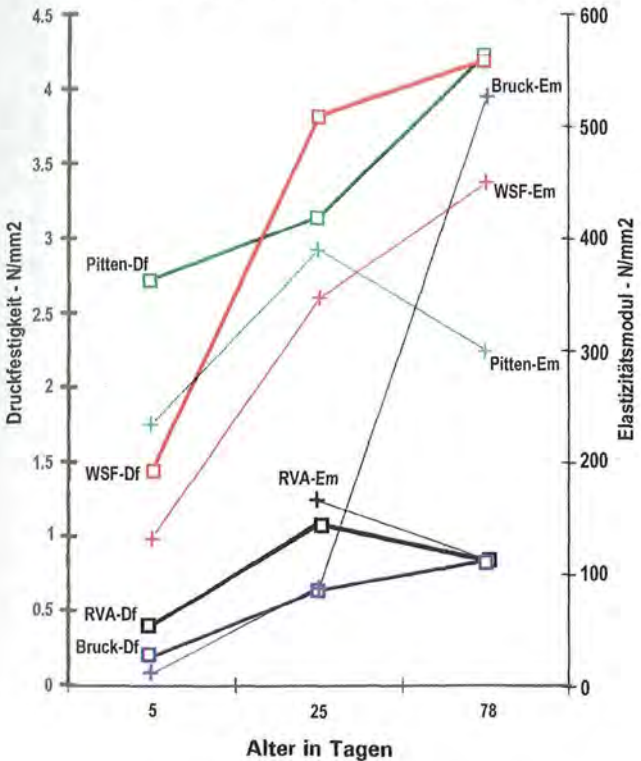


Abb. 5: Druckfestigkeiten und Elastizitätsmodule der Aschen

links:

Abb. 4: Konzentrationsentwicklung der WSF-Asche im Trogversuch (oben entsprechend den Untersuchungszeitpunkten; unten zeitproportional)



Abb. 5: Anwendung der WSF-Aschen zur Abstützung und Befestigung eines Rutschungsbereiches des Braunkohletagbaues Barbara

Wiederum auf Gratkorn bezogen, ist in den Eluaten lediglich das Aluminium als problematisch anzusehen, während die ebenfalls erhöhten Werte für Leitfähigkeit, pH und Ammonium nur über den Säulenversuch als kritisch ausgewiesen sind. Alle

sonstigen von insgesamt 31 gemessenen Parametern liegen innerhalb der Eluatklasse I a. Toxische Beimengungen konnten in den vier Aschearten nicht nachgewiesen werden.

Trotz dieser an sich günstigen Analysedaten bleibt das in jedem Falle störende Aluminium als Hindernis für einen uneingeschränkten Einsatz dieser Asche für bautechnische Zwecke bestehen.

Für die hohen Aluminium-Konzentrationen in den Aschen aus Köflacher Braunkohle gibt es mehrere Möglichkeiten. Neben einer unmittelbaren Herkunft durch Lösung aus Aktivglas, Calcium-Aluminat-Hydrat (CAH)- oder Calcium-Aluminium-Sulfat-Hydrat (CASH)-Phasen wird einer geogenen Abstammung des Aluminiums jedoch der Vorzug eingeräumt. Es ist dabei davon auszugehen, dass gemeinsam mit Kohle verbrannte, tonige Sedimentanteile nach dem Verbrennungsprozess auf stark alkalische, sulfathältige Lösungen besonders empfindlich reagieren, wobei über die Zwischenbildung leicht löslicher Aluminiumsulfate dann Aluminium für Eluate leicht verfügbar wird.

Druckversuche

Schließlich wurden an den Aschekörpern Druckversuche durchgeführt. Die Überprüfung der Druckfestigkeit mit einer entsprechenden Druckpresse erfolgte an Proben mit einem Stabilisierungsalter von 5, 25 und 78 Tagen.

Dabei zeigte sich, dass die festgestellten Unterschiede von Mineralogie, Kornaufbau und dem

Stabilisierungsverhalten der Aschen auch in den Druckfestigkeiten zum Ausdruck kommen (Abb.5). Während WSF-Aschen aus Gratkorn und die Asche PITTEN relativ hohe Werte zeigen, sind die erreichten Festigkeiten der beiden anderen Aschearten nicht ausreichend, um bautechnischen Erfordernissen zu genügen.

Zusammenfassung und Anwendung

Die Ergebnisse an einigen zum Zeitpunkt der Untersuchungen verfügbaren Braunkohleflugaschen zeigen, dass ein Einsatz für bautechnische Zwecke nur in beschränktem Ausmaß möglich ist. Wie die nachfolgend genannten Punkte zeigen, sind dafür folgende Gründe entscheidend:

- Die Eigenschaften von WSF-Aschen bzw. ihrer Stabilisate reagieren empfindlich auf einen Einsatz inkonstanter Feuerungstoffe
- Die unterschiedlichen Verfestigungs-, Elutions- und Durchlässigkeitseigenschaften sind eine Folge variierender chemischer und mineralogischer Zusammensetzungen
- Die Alterung der Aschen nach 360 Tagen führt durch Mineralneubildungen zu zunehmender Stabilisierung und verringertem Durchlässigkeitsverhalten
- Die Ionenkonzentrationen von Eluaten verringern sich mit zunehmendem Stabilisierungsalter generell und erreichen, mit wenigen Ausnahmen, Qualitäten der Eluatklasse Ia

Nach diesen Erkenntnissen ist eine Verwendung der Aschen als Massenrohstoff im engeren Sinn praktisch auszuschließen. Nicht aber ein mittelfristiger Einsatz zur Herstellung von Betriebsstraßen, Stützkörpern etc., insbesondere dann, wenn damit betriebsinterne Bautätigkeiten unterstützt werden.

Ein Anlass, die Tauglichkeit der Aschen als Einsatzstoff für werksinterne Bauerfordernisse unmittelbar zu prüfen, ergab sich aus einer dringenden Notwendigkeit einen Rutschhang durch den Einbau von WSF-Aschen zu sanieren. Schluffige Wäschesande, die in einer ausgekohlten Restmulde des Braunkohletagbaues Barbara deponiert waren, bildeten nach Zutritt von Schichtwasser Rutschmassen, die einen weiteren Abbau von Kohle vor Ort massiv gefährdeten. Zur Abstützung und Stabilisierung des Rutschungsbereiches eingeleitete Sofortmaßnahmen erfolgten mit dem Einsatz von WSF-Aschen, deren Chemismus, Elutionsverhalten und physikalische Parameter nach Durchführung der gegenständlichen Untersuchungen unmittelbar bekannt waren.

Die frische, unter Wasserzugabe verdichtet eingebrachte Asche erreichte rasch hohe Scherfestigkeiten, welche die kontinuierliche Kriechbewegung des Hanges sofort zum Stillstand brachte (Abb.6). Etwa 230.000 m³ Rutschmassen konnten durch den Einbau von ca. 35.000 m³ WSF-Aschen gestoppt werden. Zusätzlich erweiterte sich damit die geplante Abbaugrenze um weitere 14.000 t Kohle, die nun zusätzlich gewonnen werden konnten.

Literaturhinweise

- GKB - Graz-Köflacher Eisenbahn- und Bergbau-Gesellschaft m.b.H. (1996): Sanierung eines Rutschhanges am Braunkohlentagbau Barbara in Köflach durch Einbau von WSF (Interne Mitteilung).
- KURZWEIL, H. (1992): Verwertung von Braunkohleaschen - mögliche Alternativen zur Aschendeponie. Fachseminar, Voitsberg.
- KURZWEIL, H. (1996): Wirbelschichtfeuerungs- (WSF-) Aschen - ein möglicher Einsatzstoff für bautechnische Zwecke. In: Verwendung von Aschen und Industriemüll in verfahrenstechnischen Prozessen und bei der Umweltsanierung. Cetera, d.o.o., (Center za tehnicni razvoj izobrazevanje in organizacija Univerza v Ljubljani, NFT - Oddelek za geotehnologijo in rustarstvo Rudnik lignita Velenje, p.o. Velenje), Ljubljana.
- SABBAS, TH. (1993): Möglichkeit einer umweltschonenden Lagerung des potentiellen Schadstoffträgers Kohlenasche durch Abmischung mit Tonmergeln. Diplomarbeit an der Formal- und Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Wien.
- SABBAS, Th. (1995): Verhalten von Wirbelschichtfeuerungsaschen im Laufe ihrer Stabilisierung. Dissertation an der Formal- und Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Wien.
- WITHALM, R. (1996): Die Verwendung von Aschen bei den Bergbaubetrieben der GKB (Graz Köflacher Bergbau GmbH). In: Verwendung von Aschen und Industriemüll in verfahrenstechnischen Prozessen und bei der Umweltsanierung. Cetera, d.o.o., Ljubljana (s.o.).

Anschrift des Verfassers:

Univ.-Prof. Dr. Hans Kurzweil
Institut für Petrologie,
Universität Wien
Althanstraße 14,
A-1090 Wien