



Karbonatisierungsgrad Betongranulat

Empa, Materials Science and Technology

Dr. Andreas Leemann

cemsuisse-Projekt 201906 - Mai 2021

Diese Forschungsarbeit wurde durch cemsuisse, Verband der Schweizerischen Cementindustrie mitfinanziert.



Marktgasse 53, 3011 Bern Telefon 031 327 97 97, Fax 031 327 97 70 info@cemsuisse.ch

Vorwort der Begleitgruppe

Die Zementindustrie liefert mit der Herstellung von Zement einen der wichtigsten Ausgangsstoffe für die Herstellung des weltweit meistgenutzten Baustoffs: Beton.

Die Prozesse zur Produktion von Zementklinker und Zementen machen sie gleichzeitig zu einer energie- und rohstoffintensiven Branche, welche grosse Mengen Kohlendioxid (CO₂) freisetzt.

Ein Teil dieses ausgestossenen CO₂ wird von Betonbauwerken durch die Karbonatisierung sowohl während ihrer Nutzungsdauer als auch während der Abbruch- und Recyclingphase wieder aufgenommen.

Vor allem in der Recyclingphase besteht die Möglichkeit einer potentiell beschleunigten CO₂-Aufnahme durch das Zerkleinern und Aufbereiten des Betonabbruches zu Betongranulat und die daraus resultierende hohe spezifische Oberfläche des Materials. Derzeit fehlt jedoch eine verlässliche Datenbasis zur Menge an CO₂-Aufnahme von Betongranulat während der Abbruch- und Recyclinghase.

Das Ziel dieses Projektes ist es, den Karbonatisierungsgrad der rezyklierten Gesteinskörnung Betongranulat zu untersuchen, um eine verbesserte Datenbasis für die Berechnung der CO₂-Rückbindung während der Abbruch- und Recyclingphase zu erhalten.

Cathleen Hoffmann, Produktmanagerin Beton, Holcim (Schweiz) AG

cemsuisse Forschungsförderung

Die cemsuisse Forschungsförderung unterstützt Forschungsprojekte im Bereich der Betonanwendung, welche von kompetenten Forschergruppen an cemsuisse herangetragen werden. Mit der proaktiven Forschungsförderung definiert cemsuisse zudem Forschungsprojekte von spezifischem Interesse und trägt diese an kompetente Forschergruppen heran oder schreibt sie öffentlich aus. Die Projektnehmer werden jeweils von einer Begleitgruppe aus cemsuisse-Vertretern fachlich unterstützt.

Dr. Martin Tschan, Leiter Umwelt, Technik, Wissenschaft, cemsuisse

Inhaltsverzeichnis

Zusa	mmenfassung	5
1.	Einleitung	6
2.	Materialien und Methoden	6
2.1 2.2 2.3 2.4 2.5	Materialien Methoden Bildanalyse Karbonatisierungsgrad des Betongranulates Berechnungsbeispiel	
3.	Resultate	14
3.1 3.2 3.3 3.4 3.5 3.6	Situation in den Kies- und Betonwerken Feuchte bei der Anlieferung Siebkurve Rohdichte und Wasseraufnahme Karbonatisierungsgrad Benetzung des Betongranulates	
 .		
4.1 4.2 4.3 4.4 4.5	Allgemeines CO ₂ -Absorption während der Lagerung CO ₂ -Absorption vor der Lagerung Anwendbarkeit auf Betongranulat aus verschiedenen Zementsorten Fehlerbetrachtung	22 23 28 29 31
5.	Zusammenfassung	32
6.	Umsetzung und Ausblick	33
7.	Referenzen	34

Für das cemsuisse-Projekt 201906:

Dübendorf, Abteilung Beton & Asphalt, 23.11.2021

A. Jumann

Dr. Andreas Leemann

Zusammenfassung

Projektdauer: Januar 2020 - Mai 2021

Autoren: Andreas Leemann, Beat Münch

Der Karbonatisierungsgrad von drei industriell produzierten Betongranulaten wurde als Funktion der Lagerungsdauer, der Exposition, der Position im Haufwerk und der Korngrösse untersucht. Aus dem während der Lagerung karbonatisierten Zementstein, wurde die CO₂-Absorption berechnet. Zum Karbonatisierungsgrad können folgende Schlussfolgerungen gezogen werden:

- Die Betongranulate karbonatisieren, obwohl ihre Feuchte meistens über ihrer kapillaren Wasseraufnahme liegt und sie somit auch oberflächenfeucht sind. Betongranulat in unbewitterter Exposition trocknet zudem nur langsam.
- Der Karbonatisierungsgrad ist am Rand des Haufwerks leicht höher als im Innern des Haufwerks.
- Unbewittertes Betongranulat karbonatisiert etwas schneller als bewittertes Betongranulat.
- Der Karbonatisierungsgrad steigt mit sinkender Korngrösse.
- Der Fortschritt des Karbonatisierungsgrades verlangsamt sich mit der Zeit. Einerseits ist die Feinstfraktion innerhalb von wenigen Wochen vollständig karbonatisiert. Andererseits folgt der Karbonatisierungsfortschritt bei gröberen Partikeln wahrscheinlich dem Wurzel-Zeit-Gesetz.

Aus dem Karbonatisierungsgrad als Funktion der Zeit kann eine CO₂-Absorption des Betongranulates berechnet werden:

- Die höchste CO₂-Absorption erfolgt in der Sandfraktion mit Werten, die meistens deutlich über 50 % der gesamten CO₂-Absorption des Betongranulates liegen.
- Je länger das Betongranulat gelagert wird, umso höher ist die CO₂-Absorption: nach 1.5 Monaten ist bereits rund 80 % des Wertes nach 6 Monaten erreicht.
- Abhängig vom Betongranulat, der Position im Haufwerk, der Lagerungsart und -dauer werden zwischen 10.1 und 20.9 % des während der Calcinierung emittierten, geogenen CO₂ absorbiert.
- Die CO₂-Absorption des rückgebauten Betons ist von dessen Recycling-Quote abhängig.
- Bei einer Recycling-Quote von 100 % ist die Menge des von Betongranulat absorbierten CO₂ gleich gross oder bis zu einem Faktor 2 höher als die Menge des während der Lebensdauer der Bauwerke absorbierten CO₂.

Mit relativ einfachen Massnahmen kann die CO₂-Absorption von Betongranulat erhöht werden:

- Nach dem Brechen wird das Betongranulat mindestens 1.5 Monate gelagert.
- Das Haufwerk wird regelmässig umgeschichtet (alle 1-2 Wochen).
- Das Betongranulat wird unbewittert gelagert.

Bei diesen drei Massnahmen hat die Lagerungsdauer den mit Abstand grössten Effekt auf den Karbonatisierungsgrad des Betongranulates. Wird bei der Aufbereitung die Sandfraktion separiert, welche die höchste CO₂-Absorptionskapazität aufweist und am Schnellsten karbonatisiert, können die oben aufgeführten Massnahmen unter Umständen auch nur auf sie angewandt werden.

Um die Karbonatisierung zu beschleunigen, können auch Prozesse in Erwägung gezogen werden, die mit CO₂-angereicherten Gasen (z. Bsp. Abluft Zementofen, reines CO₂ aus Biogas-Auftrennungsanlagen) arbeiten.

1. Einleitung

Die Zementproduktion ist für etwa 5-8 % des antropogenen CO_2 -Ausstosses verantwortlich [1]. Ein Teil dieses ausgestossenen CO_2 wird von Betonbauwerken während ihrer Nutzungsdauer wieder absorbiert (Abbildung 1). Entsprechende Berechnungen für verschiedene europäische Länder kommen auf Werte von 7-19 % des durch die Calcinierung und den Brennstoffverbrauch freigewordenen CO_2 [2-6]. Das grosse Fragezeichen bei diesen Berechnungen ist die CO_2 -Aufnahme des Betons während der Abbruch- und Recyclingphase. Durch das Zerkleinern und Aufbereiten des Betonabbruches zu Betongranulat wird die Karbonatisierung durch das Entstehen einer hohen spezifischen Oberfläche potentiell stark beschleunigt. Es wird davon ausgegangen, dass während des Abbruch- und Recyclingprozesses zwischen 4-21 % des gesamthaft freigewordenen CO_2 wieder absorbiert werden [3,4]. Die Abschätzungen für die Schweiz kommen auf Werte von 10 % während der Nutzungsdauer und zusätzlichen 5-15% während der Abbruch- und Recyclingphase [6]. Allerdings beruhen die Berechnungen für die Abbruch- und Recyclingphase hauptsächlich auf Annahmen, die nicht durch entsprechende Daten aus der realen Situation im Recyclingprozess abgestützt sind [4,6]. Es fehlt eine verlässliche Datenbasis.



Abbildung 1: Schätzung des Anteils des während der Zementproduktion (durch Calcinierung und Brennstoff) emittierten CO₂, das von Beton während seiner Lebensdauer im Bauwerk und während der Recyclingphase aufgenommen wird [6].

Das Ziel dieses Projektes ist es, den Karbonatisierungsgrad von Betongranulat zu untersuchen, um eine verbesserte Datenbasis für die Berechnung der CO₂-Rückbindung während der Abbruch- und Recyclingphase zu erhalten.

2. Materialien und Methoden

2.1 Materialien

Im Projekt wurden industriell produzierte Betongranulate aus drei verschiedenen Quellen untersucht. Dabei wurde wie in Abbildung 2 gezeigt vorgegangen. Die Betongranulate 1 (0/16 mm) und 2 (0/22 mm) wurden nach dem Brechen im Werk bewittert gelagert, während die Lagerung dieser Granulate an der Empa bewittert und unbewittert vorgenommen wurde. Nach der Lagerung im Werk von sechs (Betongranulat 1) respektive acht Monaten (Betongranulat 2) wurden je eine Probe von der Randzone des Haufwerkes und von seinem Innern gezogen. Grund dafür war, dass sich nach der Lagerung im

Werk eine Schichtenbildung gezeigt hatte (Abbildungen 3, 4 und 9). Wurde das Haufwerk bis in eine Tiefe von ca. 30 cm freigelegt und mit dem pH-Indikator Phenolphtalein eingesprüht (Umschlagpunkt bei ~ pH 11), verfärbten sich die äussersten 10-15 cm nicht (karbonatisiert). Das tiefergelegene Betongranulat verfärbte sich Magenta (unkarbonatisiert). Die äusserten ca. 5 cm bildeten zudem eine verdichtete Kruste. Entsprechend den festgestellten Verfärbungen wurde davon ausgegangen, dass ein Haufwerk wie ein Betonkörper von aussen nach innen karbonatisiert. Damit war ein anderer Karbonatisierungsgrad und damit eine unterschiedliche CO₂-Absorption im Randbereich verglichen zu den tiefergelegenen Bereichen zu erwarten. Entsprechend wurden die zwei Bereiche separat beprobt. Die im Werk gelagerte Menge Betongranulat von den beprobten Chargen war > 100 Tonnen. An die Empa wurden zwischen 75 und 230 kg geliefert.

Das angelieferte Betongranulat wurde auf mit Plastik abgedeckten Paletten gelagert, die seitlich durch einen Paletten-Rahmen begrenzt wurden. Dies ergab eine Schichtdicke der Betongranulate von ca. 15 cm. Die eine Hälfte der angelieferten Menge wurde bewittert gelagert, die andere Hälfte unbewittert. Bei der Probenahme nach 1.5 und 6 Monaten wurde jeweils die gesamte Schichtdicke beprobt.

Um Informationen über den Karbonatisierungsgrad von Betongranulat am Rand und im Innern eines Haufwerks in unbewitterter Exposition zu erhalten, wurde ein drittes Material hinzugezogen. Dieses Betongranulat 3 (0/22 mm) wurde trocken aufbereitet. Vom Produzenten wurde Betongranulat von den äussersten 20 cm sowie vom Innern des Haufwerks geliefert.



Abbildung 2: Untersuchte Betongranulate mit Lagerungsbedingungen und Zeitpunkten der Analyse.



Abbildung 3: Betongranulat 1 nach einer Lagerung im Haufwerk von sechs Monaten. Das freigelegte Betongranulat wurde mit dem pH-Indikator Phenolphtalein eingesprüht und zeigt einen karbonatisierten Bereich am Rand und einen unkarbonatisierten, magenta verfärbten Bereich im Innern an.



Abbildung 4: Betongranulat 2 nach einer Lagerung im Haufwerk von acht Monaten. Das freigelegte Betongranulat wurde mit dem pH-Indikator Phenolphtalein eingesprüht und zeigt einen karbonatisierten Bereich am Rand und einen unkarbonatisierten, magenta verfärbten Bereich im Innern an.

2.2 Methoden

Nach der Anlieferung durch die Produzenten wurden die luftdicht verpackten Proben bis zur Analyse bei 20 °C und 90 % relativer Feuchte gelagert. Die Feuchte zum Zeitpunkt der Anlieferung nach der Exposition im Werk wurde bei den Betongranulaten durch die Wägung von ca. 1 kg Material im Anlieferungszustand und nach einer anschliessenden Trocknung im Ofen für 24 h bei einer Temperatur von 110 °C bestimmt.

Von den angelieferten Betongranulaten wurde eine Siebkurve bestimmt und die erhaltenen Einzelfraktionen umgehend bis zur weiteren Untersuchung luftdicht verpackt.

An den Einzelfraktionen wurde die Bestimmung der Rohdichte und der Wasseraufnahme nach SN EN 1097-6 [7] vorgenommen.

Bei Zementstein oder bei Mörtel und Beton mit rein silikatischer Gesteinskörnung kann der Grad der Karbonatisierung mittels Thermogravimetrie über die Abnahme von Ca(OH)2 und die Zunahme von CaCO₃ bestimmt werden. Sind in der Gesteinskörnung aber grosse Mengen von Calcit (CaCO₃) vorhanden, kann diese Methode nicht angewendet werden. Dies ist im gesamten Mittelland der Schweiz, im Jura und in einem grossen Teil der Alpen der Fall. Um den Karbonatisierungsgrad des Betongranulates zu bestimmen, wurde deshalb mittels Bildanalyse der Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein bestimmt. Dazu wurden die Einzelfraktionen 0/4 mm, 4/8 mm, 8/16 mm und 16/22 mm in grünem Epoxidharz eingebettet. Bei den gröberen Fraktionen > 4 mm wurden die Körner so in einem Plastikbehälter (Innenabmessungen 10.8 x 14.4 cm²) verteilt, dass genau eine Schicht aus Einzelkörnern entstand. Danach wurde das Betongranulat mit flüssigem Epoxidharz überdeckt. Um eine Blasenbildung durch die Wärmeentwicklung des Epoxidharzes beim Erhärten zu vermeiden, wurden die Plastikbehälter in ein kaltes Wasserbad gestellt. Nach dem Erhärten wurden die Unterseiten der Proben geschliffen, um einen Querschnitt durch die Körner zu generieren. Bei den Fraktionen 4/8, 8/16 und 16/22 mm erfolgte dies, indem von der einlagigen Partikelschicht etwa die Hälfte des mittleren Korndurchmessers entfernt wurde, das heisst ~2.8 mm, ~5.6 mm respektive ~8 mm. Da in der Sandfraktion zahlreiche Partikel < 1.0 mm vorliegen, die bei einem Abschleifen von 2 mm entfernt worden wären, musste hier ein anderes Vorgehen gewählt werden. Es wurde immer eine Menge von 15 g der Fraktion 0/4 mm möglichst homogen im Plastikbehälter (Innenabmessungen 8.5 x 10.3 cm²) verteilt. Dies ergab eine mehrlagige Partikelschicht. Da in der Sandfraktion typischerweise 50-60 Masse-% der Partikel < 1.0 mm sind, wurde nur 1 mm abgeschliffen. Nach dem Schleifen wurden die Proben für 30 min bei 40 °C im Ofen getrocknet, danach mit Phenolphtalein eingesprüht und für 24 h in einem luftdichten Plastiksack gelagert. Anschliessend wurden die Schliffflächen mit Isopropanol abgespült und einer Bürste gereinigt. Die so vorbereiteten Proben wurden in einem nächsten Schritt mit einem Epson V700 Flachbett-Scanner gescannt. Um den Kontrast der Scans zu erhöhen, wurde zwischen den Proben und dem Glas des Scanners eine Schicht Isopropanol aufgebracht. Die Proben der Sandfraktionen wurden mit 2400 dpi gescannt und diejenigen der gröberen Fraktionen mit 1200 dpi.

Der Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein im Betongranulat wurde in einem zweistufigen Verfahren bestimmt.

2.3 Bildanalyse

Zur Bestimmung der karbonatisierten Anteile ist Segmentation der Scans in die drei Phasen "Epoxidharz", "unkarbonatisiert" und "karbonatisiert" erforderlich. Zum großen Vorteil dienen dabei die stark gesättigten Farben des grünen bis gelben Epoxidharzes zur Unterscheidung des Betongranulates vom Epoxidharz, sowie die des magenta-farbenen Phenolphtalein zur Abgrenzung der unkarbonatisierten Zementanteile. Beide Farben werden bei natürlichen Gesteinskörnern und Zementstein kaum gefunden, schon gar nicht in solch hoher Sättigung.

Die Segmentierung wurde deshalb anhand einer Aufteilung des Farbraumes in entsprechende Sektoren vorgenommen. Zur einfachen Abgrenzung der oben genannten Farbbereiche eignet sich der HSV-Farbraum (h: hue, s: saturation, v: value, [8]). Abbildung 5 links zeigt die Ebene des HSV-Farbraumes bei größter Helligkeit (d.h. größtem v). Das rechte Bild zeigt die typische Farbwertverteilung eines Betongranulat-Scans (Jura 0/4 mm). Segmentiert wurde in zwei Stufen, zuerst die Aufteilung von Betongranulat und Epoxidharz, danach die Aufteilung des Betongranulates in karbonatisierte und unkarbonatisierte Anteile. Während der magenta-Farbsektor des Phenolphtalein mittels eines einzelnen Farbsektors im HSV-Farbraum bestimmt werden konnte (siehe Sektor unten rechts in den Abbildungen 5), waren zur Festlegung der Zonen für das Epoxidharz (grün bis gelb) drei verschiedene Farbsektoren in verschiedenen Helligkeitsbereichen notwendig (siehe Sektoren oben in den Abbildungen 5). Diese Verfeinerung war insbesondere wegen der 0/4 mm-Fraktion notwendig, wo feinste Staubpartikel mit dem Epoxidharz vermischt sind und damit die Unterscheidung von Epoxidharz und Granulat erschwert wird. Sämtliche Farbsektoren wurden durch visuelle Beurteilung ausgewählt und so festgelegt, dass über sämtliche ausgewerteten Scans eine möglichst gute Segmentierung erreicht werden konnte. Damit wurden die Sektoren für die ganze Studie einheitlich festgelegt, um Vergleiche zwischen den Messungen aller Fraktionen zu ermöglichen. Die Werte für die gewählten Farbsektoren waren wie folgt (die h,s,v-Werte waren jeweils auf das Intervall [0...1] normiert):

HSV-Sektoren zur Abgrenzung des Epoxidharzes:

- 1. $(h_{\min}...h_{\max}, s_{\min}...s_{\max}, v_{\min}...v_{\max}) = (0.22...0.4, 0.65...1, 0.4...1)$
- 2. $(h_{min}...h_{max}, s_{min}...s_{max}, v_{min}...v_{max}) = (0.16...0.4, 0.85...1, 0.5...1)$
- 3. $(h_{min}...h_{max}, s_{min}...s_{max}, v_{min}...v_{max}) = (0.16...0.4, 0.50...1, 0.9...1)$

HSV-Sektor zur Abgrenzung der unkarbonatisierten Regionen:

1. $(h_{\min}...h_{\max}, s_{\min}...s_{\max}, v_{\min}...v_{\max}) = (0.7...1, 0.1...1, 0.2...1)$



Abbildung 5: h-s-Ebene des HSV-Farbraumes bei größter Helligkeit v (links), h-s-Verteilung aus den Bildwerten eines typischen Betongranulat-Scans (rechts).

Da die Betongranulat-Scans mit einem gewissen Bildrauschen behaftet sind, wurden die aus der Segmentierung resultierenden Bildmasken einer morphologischen Nachverarbeitung unterzogen, indem abhängig von der Korngröße Objekte mit unrealistisch kleiner Pixelzahl entfernt wurden (Tabelle 1).

Fraktion [mm]	Maximal erlaubte Objektgröße [# Pixel]
0/4	15
4/8	60
8/16	250
16/32	1000

Tabelle 1: Die in Abhängigkeit der Fraktion maximal erlaubte Pixelgrösse.

Der gesamte Verarbeitungsprozess ist in Abbildung 6 schematisch dargestellt. Aus dem Farb-Scan (A) wurden die Bildwerte vom RGB- (B) in den HSV-Farbraum konvertiert (C), danach in die beiden zum Granulat und zum Epoxidharz gehörenden Farbsektoren aufgeteilt (D, E). Die zum Granulat gehörenden Bildwerte wurden dann weiter in die beiden Farbsektoren "unkarbonatisiert" (F) und "karbonatisiert" (G) aufgespalten, und schließlich die den jeweiligen Farbräumen zugehörenden Bilder rekonstruiert (H: Epoxidharz, I: unkarbonatisiert, J: karbonatisiert).



Abbildung 6: Segmentation von Betongranulat zur Unterscheidung von Epoxidharz, unkarbonatisiertem sowie karbonatisiertem Zementstein samt natürlichen Aggregaten.



Abbildung 7: Schritte bei der Bildanalyse am Beispiel der Fraktion 4/8 mm. 1 = Original-Scan, 2 = Segmentation der Gesteinskörnung, 3 = Segmentation der unkarbonatisierten Anteile der Gesteinskörnung.

2.4 Karbonatisierungsgrad des Betongranulates

Die Veränderung des unkarbonatisierten Anteils Zementstein im Betongranulat konnte so für jede Fraktion als Funktion der Zeit und Lagerungsbedingungen bestimmt werden. Als Referenzwert diente bei den Betongranulaten 1 und 2 der Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein bei der Anlieferung ("Nullpunkt" für Karbonatisierung während der Lagerung). Dies bedeutet, dass die Karbonatisierung vor der der Lagerung nicht berücksichtigt wird.

Die Repräsentativität der analysierten Proben ist von drei Faktoren abhängig. Erstens wird die Repräsentativität mit zunehmender Fläche der analysierten Körner besser. Die analysierte Fläche war bei den Fraktionen 4/8, 8/16 und 16/22 mm etwa gleich gross. Bei der Fraktion 0/4 mm war sie wegen dem kleinere verwendeten Plastikbehälter kleiner. Zweitens spielt auch die Anzahl der analysierten Körner eine Rolle. Bei allen Fraktionen treten Körner auf, die vollständig oder fast vollständig natürlichen Gesteinskörnern mit keinem oder wenig anhaftendem Zementstein entsprechen. Je kleiner die Anzahl der analysierten Körner ist, um so stärker beeinflusst die Präsenz oder das Fehlen solcher Körner den Anteil an Zementstein und damit auch den Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein in der analysierten Probe. Würde nur ein Korn analysiert und dabei würde es sich um ein Korn ohne anhaftenden Zementstein handeln, wäre in der Bildanalyse kein unkarbonatisierter Zementstein feststellbar, obwohl das Betongranulat als Ganzes eventuell gar nicht karbonatisiert wäre. Es ist also eine gewissen Anzahl Körner notwendig, damit solche Schwankungen klein sind. Drittens nimmt der Anteil an Zementstein im Betongranulat mit steigender Korngrösse ab, wie das gut bei der der Rohdichte und Wasseraufnahme zu sehen ist (Kapitel 3.4). Mit sinkendem Anteil an Zementstein sinkt bei gleichbleibender, analysierter Fläche auch die Repräsentativität. Bei der Fraktion 16/22 mm waren nur relativ wenig Körner in der analysierten Probemenge enthalten. Beim Betongranulat 2 waren das zwischen 30-40 Körner und beim Betongranulat 3 zwischen 45 und 50 Körnern. Der zweite und dritte Faktor wirken sich wie oben beschrieben auf die Repräsentativität respektive die Schwankungen von Probe zu Probe aus. Im Fall des Betongranulats 2 wurde die Fraktion 16/22 mm deshalb nicht für die Auswertung berücksichtigt. Beim Betongranulat 1 war diese Fraktion gar nicht vorhanden. Die Repräsentativität ist zudem von der analysierten Fläche der Körner im geschliffenen Präparat abhängig. Diese war bei den Fraktionen 4/8, 8/16 und 16/32 mm etwa gleich gross und bei der Fraktion 0/4 mm wegen dem kleineren verwendeten Plastikbehälter etwas geringer. Da das Betongranulat 3 erst nach acht Wochen Lagerung beprobt werden konnte, war es folglich nicht möglich, den Karbonatisierungsgrad am Anfang der Lagerung zu bestimmen. Als Referenzwert oder "Nullpunkt" wurde deshalb der Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein der Fraktion 16/22 mm verwendet (Durchschnitt der am Rand und im Innern des Haufwerks gezogenen Probe). Da die spezifische Oberfläche der Fraktion 16/22 mm relativ klein ist, schreitet auch die Karbonatisierung entsprechend langsam voran. Wie in Kapitel 3.5 zu sehen ist, nimmt der Karbonatisierungsgrad des Haufwerks mit zunehmender Korngrösse sowohl am Rand als auch im Innern regelmässig ab. Dies weist auf geringe Effekte der Streuung bei den analysierten Proben des Betongranulates 3 hin, was dieses Vorgehen rechtfertigt.

2.5 Berechnungsbeispiel

Für die geogene CO₂-Emission bei der Herstellung des Zementklinkers sind unterschiedliche Werte verfügbar. Im Bericht der IPCC wird von einem Wert von 507 kg/t ausgegangen [9]. In der FprEN 16757 [10] wird mit 495 kg/t gerechnet. Für die vorliegende Arbeit wurde mit dem im IPCC genannten Wert von 507 kg/t kalkuliert.

Bei der gesamten CO₂-Emission spielt neben der verwendeten Technik auch der Anteil an alternativen Brennstoffen eine wesentliche Rolle. Da dies zu stark variierenden Zahlen führen kann, wurde pragmatisch von einer gesamthaften CO₂-Emission von 844 kg/t Zementklinker ausgegangen [6]. Im vorliegenden Bericht entspricht die gesamte CO₂-Emission also immer diesen 844 kg/t.

Um aus der Änderung des Karbonatisierungsgrades der Betongranulate während der Exposition die CO₂-Absorption berechnen zu können, müssen verschiedene Annahmen getroffen werden. Dies betrifft:

- Karbonatisierungsgrad respektive in CaCO₃ umgewandeltes CaO im karbonatisierten Bereich des Zementsteins
- Klinkergehalt pro Volumen Zementstein

Bei der Herstellung von Betongranulat 1 wurden Fertigteile (Altschwellen) mit den Festigkeitsklassen C40/50, C50/60 und C60/75 gebrochen. Basierend auf diesen Werten wurde ein durchschnittlicher Gehalt an CEM I von 380 kg/m³ und ein durchschnittlicher w/z von 0.42 angenommen. Es wurde von einem Klinkergehalt im CEM I von 95 Masse-% ausgegangen [10].

Die Annahme, dass der rückgebaute Beton aus CEM I hergestellt wurde, ist plausibel, da von einem Alter der rückgebauten Bauwerke von einigen Jahrzehnten ausgegangen werden kann. Zum Zeitpunkt ihrer Erstellung wurde in der Schweiz hauptsächlich CEM I verwendet.

Bei den Betongranulaten 2 und 3 sind keine Informationen über die Zusammensetzung der rückgebauten Betone vorhanden. Der Hauptteil (ca. 90 %) des in der Schweiz produzierten klassierten Betons entfällt auf die Sorten A, B, C. Der maximale w/z-Wert für diese Sorten beträgt 0.65, 0.60 respektive 0.50 und der minimale Zementgehalt liegt bei 280, 280 respektive 300 kg/m³. Wenn davon ausgegangen wird, dass die Betonbauten zum Zeitpunkt ihres Rückbaus einige Jahrzehnte alt waren, dann kann mit hoher Wahrscheinlichkeit davon ausgegangen werden, dass sie mit CEM I erstellt wurden. Für die Berechnung des absorbierten CO₂ wurde bei den Betongranulaten 2 und 3 von einem CEM I als Zementart mit einem Gehalt von 300 kg/m³ und einem w/z von 0.55 ausgegangen.

Aus dem experimentell bestimmten Anteil des während den verschiedenen Lagerungen karbonatisierten Zementsteins kann eine CO₂-Absorption berechnet werden. Dazu muss zuerst für beide oben beschriebenen Betonrezepturen das Zementleim Volumen V berechnet werden. Als typische Dichte für einen CEM I wird der Wert von $\rho = 3.14$ g/cm³ eingesetzt. Als Luftgehalt LP wird für die Rezeptur des Betongranulates 1 2.0 Volumen-% eingesetzt und für die Betongranulate 2 und 3 1.5 Volumen-%.

 $V = z/\rho + w + LP$

(1)

z = Zementgehalt w = Wassergehalt

Das ergibt die folgenden Zementsteinvolumina:

 V_{BG1} = 296 l/m³ $V_{BG2/3}$ = 278 l/m³

Für die Berechnung der CO₂-Aufnahme von Betonbauten während ihrer Lebensdauer ging Lagerblad [2] davon aus, dass 75 % des ursprünglich im Klinker vorhandenen CaO in CaCO₃ umgewandelt wird. Dafür gibt es verschiedene Gründe. Einerseits kann noch unhydratiserter Klinker vorhanden sein, der kein CO₂ aufnehmen kann. Andererseits wird das Calcium-Silikat-Hydrat (C-S-H) als Hauptphase der Zementhydratation in CaCO₃ und ein C-S-H mit einem tieferen Ca/Si-Verhältnis als ursprünglich umgewandelt. Das heisst, dass keine vollständige Karbonatisierung stattfindet. Experimentelle Daten haben gezeigt, dass bei der natürlichen Karbonatisierung von Mörtel aus CEM I in der karbonatisierten Schicht 55 % des CaO karbonatisiert [11]. Der karbonatisierte Anteil kann auch über den w/z des Mörtels beeinflusst sein und zum Beispiel bei einem w/z 0.48 52 % und bei einem w/z von 0.60 65 % betragen [12]. Der Anteil an umgewandeltem CaO im karbonatisierten Material wird auch durch die Zementart beeinflusst und liegt bei CEM I nach [5] bei einem durchschnittlichen Wert von 61 %. Im Folgenden wurde mit einer Umwandlung von 60 % des im Klinker vorhandenen CaO in CaCO₃ ausgegangen.

Wie oben beschrieben ist der Karbonatisierungsgrad im karbonatisierten Zementstein nur partiell. Auf der anderen Seite kann auch bereits ein Teil der Hydratphasen im noch von Phenolphtalein verfärbten Bereich des Zementsteins karbonatisiert sein [13,14]. Die Karbonatisierungsfront verläuft also weniger scharf, als dies vom Umschlagpunkt des Phenolphtaleins suggeriert wird. Dies kann aber hier nicht berücksichtigt werden.

Der Anteil des im CEM I respektive Klinker vorhandenen CaO wird nach den Vorgaben von [9] berechnet:

(2)

Anhand des Betongranulates 2 wird hier beispielhaft gezeigt, wie aus dem während der Lagerung karbonatisierten Zementstein die CO₂-Absorption berechnet werden kann.

Der während der Lagerung karbonatisierte Anteil an Zementstein in der Summe aller Fraktionen des Betongranulates 2 beträgt unter Berücksichtigung des Anteils jeder Fraktion (s. Siebkurve) im Beispiel 7.5 Flächen-%. Dies kann 7.5 Volumen-% gleichgesetzt werden (Delesse-Prinzip).

Da das Zementsteinvolumen im Betongranulat 2 278 l/m³ oder anders ausgedrückt 27.8 Volumen-% beträgt, entspricht der karbonatisierte Anteil des Zementsteins:

$$V_{BG2,karb} = 7.5/0.278 = 27.0 \text{ Volumen-\%}$$
 (3)

Die Menge CaO, die in diesem Volumen karbonatisiert wird (bei einem Karbonatisierungsgrad von 60 % im karbonatisierten Bereich) berechnet sich pro m³ Betongranulat:

$$CaO_{karb} = 300 \ kg/m^3 * 0.95 * 0.65 * 0.60 * 0.27 = 30.0 \ kg/m^3 \ Betongranulat$$
 (4)

Die durch die Karbonatisierung von CaO absorbierte Menge CO_2 wird aus den Molgewichten kalkuliert (Molgewicht $CO_2 = 44$ g, Molgewicht CaO = 56 g):

$$CO_{2,abs} = 30.0 \text{ kg/m}^3 * (44/56) = 23.6 \text{ kg/m}^3 \text{ Betongranulat}$$
 (5)

Um die CO₂-Absorption pro Tonne zu berechnen, wird die für die Einzelfraktionen bestimmte Rohdichte (s. Kapitel 3.4) unter Berücksichtigung der Siebkurve verwendet:

$$CO_{2,abs} = 23.6 \text{ kg/m}^3 / 2.38 \text{ t/m}^3 = 9.9 \text{ kg/t Betongranulat}$$
 (6)

Wird von einer gesamten CO₂-Emission pro Tonne Klinker von 844 kg ausgegangen [6], kann der prozentuelle Anteil des davon wieder absorbierten CO₂ berechnet werden. Die pro 300 kg CEM I emittierte Menge an CO₂ beträgt:

$$CO_{2.em} = 844 \text{ kg} / (1000 \text{ kg} / 300^{\circ}0.95 \text{ kg}) = 241 \text{ kg}$$
 (7)

Davon werden 23.6 kg (Gleichung 4) wieder absorbiert, was einem prozentuellen Anteil des emittierten CO₂ von folgendem Wert entspricht:

$$CO_{2,abs} = 23.6 \text{ kg} / (241 \text{ kg} / 100) = 9.8 \%$$
 (8)

Bezogen auf den geogenen Anteil der CO₂ Emission von 507 kg/t [9] liegt der Wert bei 16.4 %.

3. Resultate

3.1 Situation in den Kies- und Betonwerken

Um Anhaltspunkte über die Exposition von Betongranulat im Werk (Abbildungen 8 und 9), seine Lagerungsdauer und die hergestellten Fraktionen zu erhalten, wurden verschiedene Produzenten in der Deutschschweiz kontaktiert. Diese Auswahl muss nicht repräsentativ sein, zeigt aber doch, dass die Lagerungsdauer sehr unterschiedlich sein kann. Sie reicht von einer Woche bis zu einem Jahr (Tabelle 2). Je nach Produzent wird bewittert oder unbewittert gelagert.

Werk	Exposition	Lagerung BG	Fraktion	Bemerkungen
WORK		[Monoto]	[mm]	Bernerkungen
		[Monate]	luuul	
1	bewittert	~ 6		-
2	bewittert	6-12	0-32, 4/32	-
3	unbewittert	Ø 3, max. 4	0/22	Produktion mit mobilem Brecher bei 3000-
				4000 m ³ Betonabbruch im Lager, C und M
				meistens im Magerbeton
4	bewittert	0.1-0.5	0/4, 4/8,	Lagerung des Betonabbruchs für max. 2
			8/16, 16/32	Jahre, nach dem Brechen 3-12 Tage in Silos
				vor Gebrauch, Nassaufbereitung
5	unbewittert	~ 2	0/16	0/16 mm für Beton, 0/44 mm für Fundationen
				Überkorn wird nochmals gebrochen
6	bewittert	1-2	0/22	Überkorn wird nochmals gebrochen
7	bewittert	2-4	0/22	-
8	unbewittert	0.3	0/16, 16/32	-

Tabelle 2: Exposition, Lagerungsdauer und produzierte Fraktionen von Betongranulat beiverschiedenen Herstellern.



Abbildung 8: Betongranulat im Haufwerk. Werk 2.



Abbildung 9: Betongranulat 4-32 mm im Haufwerk nach einer Lagerung von ca. 9 Monaten. Stichstelle mit Phenolphtalein besprüht. Werk 2.

3.2 Feuchte bei der Anlieferung

Die Feuchte der bewittert gelagerten Betongranulate ist nur bei der am Rand des Haufwerks entnommenen Probe des Betongranulates 1 tiefer als die Wasseraufnahme (s. Kapitel 3.4, Tabelle 3). Dies bedeutet, dass Wasser nicht nur in den Kapillarporen der Partikel, sondern auch an der Oberfläche und in den Menisken von Partikelkontakten vorhanden ist. Erstaunlich ist, dass beim unbewittert gelagerten Betongranulat 2 die Feuchte im Innern des Haufwerkes auch nach acht Wochen noch deutlich über der Wasseraufnahme liegt.

	Betongranulat 1	Betongranulat 2	Betongranulat 3
	[Masse-%]	[Masse-%]	[Masse-%]
Rand	3.8	5.9	2.6
Kern	6.1	10.4	7.8
Wasseraufnahme	4.3	4.4	4.7

Tabelle 3: Feuchte der Gemische im Anlieferungszustand und Wasseraufnahme nach SN EN1097-6.

3.3 Siebkurve

Bei den Betongranulaten 1 und 2 entspricht die Verteilung den nominalen Fraktionen von 0/16 respektive 0/22 mm, während das Betongranulat 3 mehr einer 0/16 als einer 0/22 mm Körnung entspricht (Abbildung 10).



Abbildung 10: Siebkurve der drei Betongranulate bei der Anlieferung.

3.4 Rohdichte und Wasseraufnahme

Tendenziell sinkt die Rohdichte auf ofentrockener Basis und steigt die Wasseraufnahme mit sinkender Korngrösse, weil der Anteil an Zementstein bei den feinen Fraktionen grösser ist als bei den groben (Tabellen 4-6).

Werden die in Kapitel 3.3 präsentierten Siebkurven mitberücksichtigt, ergeben sich für die Betongranulate 1-3 eine Wasseraufnahme des Gemisches von 4.30, 4.38 und 4.74 Masse-%.

Betongranulat 1		0/4 mm	4/8 mm	8/16 mm
scheinbare Rohdichte	[kg/m³]	2.69	2.68	2.67
Rohdichte ofentrocken	[kg/m³]	2.37	2.42	2.44
Rohdichte wassergesättigt und oberflächentrocken	[kg/m³]	2.49	2.51	2.53
Wasseraufnahme nach 24 h	[Masse-%]	4.92	3.99	3.49

Tabelle 4: Rohdichte und Wasseraufnahme des Betongranulates 1.

Betongranulat 2		0/4 mm	4/8 mm	8/16 mm	>16mm
scheinbare Rohdichte	[kg/m³]	2.67	2.64	2.66	2.64
Rohdichte ofentrocken	[kg/m³]	2.35	2.38	2.44	2.40
Rohdichte wassergesättigt und oberflächentrocken	[kg/m ³]	2.47	2.48	2.52	2.49
Wasseraufnahme nach 24 h	[Masse-%]	5.12	4.19	3.47	3.85

Tabelle 5: Rohdichte und Wasseraufnahme des Betongranulates 2.

Betongranulat 3		0/4 mm	4/8 mm	8/16 mm
scheinbare Rohdichte	[kg/m³]	2.71	2.70	2.69
Rohdichte ofentrocken	[kg/m³]	2.33	2.42	2.47
Rohdichte wassergesättigt und oberflächentrocken	[kg/m³]	2.47	2.52	2.56
Wasseraufnahme nach 24 h	[Masse-%]	6.00	4.30	3.31

Tabelle 6: Rohdichte und Wasseraufnahme des Betongranulates 2.

3.5 Karbonatisierungsgrad

Beim Betongranulat 1 wird der Anteil an unkarbonatisertem Zementstein während der Lagerung nur in der Fraktion 0/4 mm verringert (Abbildung 11). Zwischen den bewittert und unbewittert gelagerten Proben an der Empa sind keine Unterschiede vorhanden. Dasselbe trifft für die Proben aus dem Werk zu, die vom Rand und vom Innern des Haufwerks entnommen wurden. Dies scheint ein Widerspruch zu den Beobachtungen im Werk zu sein, wo an ausgewählten Stichstellen nach dem Einsprühen mit Phenolphtalein der Randbereich keinen Farbumschlag zeigte (Abbildungen 3 und 4). Auf dieses Phänomen wird im Kapitel 3.6 eingegangen.

Bei den gröberen Fraktionen ist keine Karbonatisierung festzustellen (Abbildung 11). Die Schwankungen des unkarbonatisierten Anteils bei den Fraktionen 4/8 und 8/16 mm reflektiert die Streuung des Anteils an Zementstein der verschiedenen Proben (siehe Kapitel 4.3).



Abbildung 11: Unkarbonatisierter Anteil in den Einzelfraktionen des Betongranulates 1 als Funktion der Lagerungsdauer in bewitterter und unbewitterter Exposition an der Empa und bewitterter Exposition im Werk (Dreieck-Symbol: gefüllt = Inneres des Haufwerks, leer = Rand des Haufwerks, liegen bei den Fraktionen 0/4 und 4/8 mm übereinander).

Das Betongranulat 2 zeigt bei den an der Empa gelagerten Proben eine schnelle Karbonatisierung in der Sandfraktion, die bereits nach 1.5 Monaten praktisch vollständig karbonatisiert ist (Abbildung 12). Auch bei den Fraktionen 4/8 mm und 8/16 mm ist eine fortschreitende Karbonatisierung zu beobachten, die gesamthaft allerdings deutlich geringer ausfällt als in der Sandfraktion. Die Zunahme ist über alle Fraktionen gemittelt während der ersten 1.5 Monate grösser als bei den nachfolgenden 4.5 Monaten. Während bei der Fraktion 4/8 mm der Karbonatisierungsgrad der Proben im Werk wie bei der Sandfraktion tiefer liegt, sind die Werte bei der Fraktion 8/16 mm mit den an der Empa gelagerten Proben vergleichbar. Bei allen Fraktionen ist die Differenz zwischen bewitterter und unbewitterter Lagerung an der Empa sowie Rand- und Kernzone des Haufwerks sehr klein und dürfte im Bereich der Streuung liegen.

Die Karbonatisierung der Sandfraktion im Werk schreitet weniger schnell voran und erreicht nach 8 Monaten einen tieferen Karbonatisierungsgrad als an der Empa nach 1.5 Monaten. Dies dürfte eine Folge der relativ geringen Schichtdicke des Haufwerks der an der Empa gelagerten Proben sein (ca. 15 cm). Zudem bildete sich beim Betongranulat 2 beim an der Empa gelagerten Material keine am Rand verdichtete Kruste im Haufwerk, wie sie im Werk beobachtet wurde.



Abbildung 12: Unkarbonatisierter Anteil in den Einzelfraktionen des Betongranulates 2 als Funktion der Lagerungsdauer in bewitterter und unbewitterter Exposition an der Empa und bewitterter Exposition im Werk (Dreieck-Symbol: gefüllt = Inneres des Haufwerks, leer = Rand des Haufwerks).

Der unkarbonatisierte Anteil der Einzelfraktionen nimmt auch beim Betongranulat 3 mit zunehmender Grösse zu (Abbildung 13). Der unkarbonatisierte Anteil ist im Kern tendenziell höher als am Rand des Haufwerks. Dass sich diese Abhängigkeiten auch bei den gröberen Fraktionen 8/16 und 16/22 mm so klar zeigen, deutet darauf hin, dass die Streuung bei den analysierten Proben relativ klein ist.



Abbildung 13: Unkarbonatisierter Anteil in den Einzelfraktionen des im Werk unbewittert gelagerten Betongranulates 3 am Rand (leeres Dreieck) und im Kern (gefülltes Dreieck) des Haufwerks.

Als Beispiel für die analysierten Betongranulate werden in den Abbildungen 14-16 Ausschnitte aus den analysierten Proben gezeigt.



Abbildung 14: Fraktion 4/8mm des Betongranulates 1 aus dem Rand des Haufwerks nach einer bewitterten Lagerung von 6 Monaten ohne erkennbare Karbonatisierung der Körner (Ausschnitt; 2.1 x 3.5 cm).



Abbildung 15: Fraktion 4/8mm des Betongranulates 2 aus dem Rand des Haufwerks nach einer bewitterten Lagerung von 8 Monaten mit erkennbarer Karbonatisierung der Körner (Ausschnitt; 2.3 x 3.6 cm).



Abbildung 16: Fraktion 4/8mm des Betongranulates 3 aus dem Kern des Haufwerks nach einer unbewitterten Lagerung von 2 Monaten mit erkennbarer Karbonatisierung der Körner (Ausschnitt; 2.0 x 3.1 cm).

3.6 Benetzung des Betongranulates

Obwohl das Einsprühen einer Stichstelle am Haufwerk mit Phenolphtalein auf eine klare Differenz im Karbonatisierungsgrad zwischen dem Randbereich und dem Innern hinweist, hat die Analyse des Karbonatisierungsgrades dies nicht bestätigt. Am Haufwerk im Werk war es auffallend, dass zum Zeitpunkt dieses Phenolphtalein-Testes die Grenze zwischen verfärbtem und unverfärbtem Material auch immer mit einem Wechsel der Feuchte von oberflächlich trockenen Partikeln zu oberflächlich feuchten Partikeln zusammenfiel. Aus diesem Grund wurde an der Fraktion 0/4 mm des im Werk gelagerten Materials des Betongranulates 1 ein Versuch durchgeführt.

Je eine Probe der Fraktion 0/4 mm aus dem Randbereich und aus dem Innern des Haufwerkes wurden im Ofen bei 50 °C für 24 h getrocknet. Von dieser Probe wurde eine kleinere Menge entnommen und mit Phenolphtalein eingesprüht. Die Probe aus dem Randbereich zeigte praktisch keine Verfärbung, während sich die Probe aus dem Innern verfärbte (Abbildungen 17A und 17B). Danach wurden beide Proben in einen Plastiksack abgefüllt und so benetzt, dass alle Partikel oberflächenfeucht waren. Die Proben wurden für 24 h in den geschlossenen Plastiksäcken gelagert und danach wieder mit Phenolphtalein eingesprüht. Nun verfärbten sich beide Proben (Abbildungen 17C und 17D).



Abbildung 17: Fraktion 0/4 mm des Betongranulates 1 vom Rand (A/C) und dem Innern (B/D) des Haufwerks in getrocknetem und benetztem Zustand nach dem Einsprühen mit Phenolphtalein.

4. Diskussion

4.1 Allgemeines

Der Unterschied im Anteil an karbonatisiertem Zementstein zwischen dem Rand und dem Kern des Haufwerks widerspiegelt nicht den klaren Umschlagspunkt, der an ausgewählten Stichstellen durch das Aufsprühen mit Phenolphtalein zu erkennen war. Wie das Benetzen der Sandfraktion des Betongranulates 1 mit Wasser und das 24h später erfolgte Aufsprühen von Phenolphtalein zeigt, ist der beobachtete klare Umschlagspunkt eine Ursache des Feuchtigkeitsgehaltes. Wenn die Wassersättigung des Betongranulates so hoch ist, dass Hydroxid-Ionen aus dem unkarbonatisierten Kern von Partikeln an deren Rand diffundieren können, erfolgt der Umschlag auch an zumindest oberflächlich karbonatisierten Partikeln und offenbar auch bei vollständig karbonatisierten Feinstpartikeln.

Die Feuchte der aus dem Werk angelieferten Betongranulate ist hoch und liegt meistens über deren nach Norm bestimmten Wasseraufnahme. Entsprechend sind die meisten oberflächenfeucht. Wie der hohe Feuchtigkeitsgehalt des unbewitterten Betongranulates zeigt, trocknet Betongranulat im Haufwerk nur langsam. Wie der Verlauf der Karbonatisierung zeigt, tritt trotz der hohen Feuchtigkeitsgehalte eine Karbonatisierung auf. Dieses Verhalten entspricht nicht dem von Betonkörpern. Bereits bei einer relativen Luftfeuchte von 80 % karbonatisieren Betonkörper aus CEM

I praktisch nicht mehr [15]. Der Grund dafür ist, dass durch die kapillare Kondensation das Porensystem des Betons praktisch gasdiffusionsdicht wird. In einem Haufwerk hingegen sind immer zugängliche Hohlräume vorhanden. Bei einem gebrochenen Material wie Betongranulat beträgt das Hohlraumvolumen im Haufwerk bei der Fraktion 0/32 mm typischerweise zwischen 27-33 Volumen-% [16]. Entsprechend kann das CO₂ das Haufwerk durchdringen. Des weiteren karbonatisieren Portlandit und C-S-H in Pulverform sogar bei einer relativen Feuchte von 91 % wesentlich schneller als bei 57 % [17]. Dies kontrastiert zum Beton, der bei einer Feuchte von 55-60 % am schnellsten karbonatisiert [18]. Dass die Karbonatisierung aber nicht nur bei der Feinfraktion sondern auch bei den Fraktionen > 4 mm bei hohem Feuchtigkeitsgehalt fortschreitet, wird durch die vorliegenden Daten klar gezeigt. Bezüglich der Lagerung der Betongranulate ist also nicht zwingend eine unbewitterte Lagerung notwendig, damit die Karbonatisierung voranschreitet. Allerdings kann bei der vorhandenen Datenbasis nicht beurteilt werden, bei welchem Feuchtigkeitsgehalt Betongranulat am Schnellsten karbonatisiert.

In einem Beton schreitet die Karbonatisierungsfront nach dem Wurzel-Zeit-Gesetz voran. Die Verringerung des Anteils an karbonatisiertem Zementstein nach 1.5 und 6 Monaten Lagerung an der Empa weist darauf hin, dass dies auch beim Betongranulat zutrifft. Die Karbonatisierung der Betongranulate 1 und 2 erreicht nach 1.5 Monaten 79% des nach 6 Monaten verzeichneten Wertes.

Diese Beobachtungen zeigen, dass Karbonatisierungsgeschwindigkeit bei Partikeln von einem komplexen, korngrösseabhängigen Wechselspiel zwischen Zugänglichkeit für CO₂ und verfügbarer Feuchte für die chemische Reaktion des Karbonatisierens abhängt.

4.2 CO₂-Absorption während der Lagerung

Unter Berücksichtigung ihres Anteils an der Siebkurve und des in Kapitel 2.2 dargelegten Vorgehens kann für die Einzelfraktionen der Anteil an absorbiertem CO₂ in kg pro Tonne Betongranulat berechnet werden.

Bei der Sandfraktion des an der Empa gelagerten Betongranulates 1 liegen diese Werte zwischen 7.7 und 8.8 kg/t (Abbildung 18). Bei den gröberen Fraktionen verfärbte sich der gesamte Zementstein magenta. Entsprechend war auch keine Karbonatisierung festzustellen und es kann keine Aufnahme berechnet werden. Wie unter Kapitel 2.2 beschrieben, kann auch im magenta verfärbten Zementstein schon ein gewisser Anteil an karbonatisierten Hydratphasen vorliegen. Dies dürfte auch bei den Fraktionen 4/8 und 8/16 mm der Fall sein. Da aber der zu erwartende Anteil solcher karbonatisierter Phasen klein ist und die spezifische Oberfläche mit steigender Korngrösse abnimmt, dürfte auch die absorbierte Menge CO₂ entsprechend sehr gering sein.

Die Sandfraktion absorbiert beim Betongranulat 2 mit Abstand am meisten CO_2 (Abbildung 18). Die Werte von 5.1-5.5 kg/t liegen um rund einen Faktor 2 höher als die durchschnittlichen Werten von 2.9 und 1.9 kg/t bei den Fraktionen 4/8 respektive 8/16 mm. Trotzdem ist die Menge des in der Sandfraktion absorbierten CO_2 kleiner als beim Betongranulat 1. Dies ist einerseits darauf zurückzuführen, dass wegen dem tieferen w/z und dem höheren Zementanteil im Betongranulat 1 pro Volumeneinheit deutlich mehr CO_2 absorbiert werden kann. Andererseits ist die Karbonatisierung der Sandfraktion des Betongranulates 2 bereits nach 1.5 Monaten fast vollständig abgeschlossen. Dies bedeutet, dass viele Körner danach kein CO_2 mehr aufnehmen können.



Abbildung 18: CO₂-Absorption der Einzelfraktionen der Betongranulate 1 und 2 nach 1.5 und 6 Monaten in unbewitterter (U) und bewitterter (B) Lagerung an der Empa. Der Anteil der Einzelfraktionen an der Korngrössenverteilung ist mitberücksichtigt.

Die CO₂-Absorption der Sandfraktion von Betongranulat 1 ist im Werk nach 6 Monaten mit durchschnittlich 10.1 kg/t etwas höher als beim an der Empa gelagerten Material mit einem Durchschnittswert von 7.9 kg/t (Abbildung 19). Der Grund dafür ist nicht klar.

Im Gegensatz dazu fällt die Menge an absorbiertem CO₂ des im Werk gelagerten Betongranulates 2 kleiner aus als bei den an der Empa gelagerten Proben (Abbildung 19).

Die CO₂-Absorption der Sandfraktion des Betongranulates 3 liegt mit durchschnittlich 6.9 kg/t zwischen den beiden anderen Betongranulaten (Abbildung 19). Bei der Fraktion 4/8 mm ist sie höher als beim Betongranulat 2 und bei der Fraktion 8/16 mm gleich gross.

Die oben diskutierten Werte sind in Tabelle 7 zusammengefasst.



Abbildung 19: CO₂-Absorption der Einzelfraktionen der Betongranulate 1 nach 6 Monaten, Betongranulat 2 nach 8 Monaten in bewitterter Lagerung (B) sowie des Betongranulates 3 nach 2 Monaten in unbewitterter Lagerung (U) Lagerung im Werk. Der Anteil der Einzelfraktionen an der Korngrössenverteilung ist mitberücksichtigt.

Bei der von der Firma Neustark verwendeten Schnellkarbonatisierungstechnik kann innerhalb einer Stunde rund 10 kg CO₂/t Betongranulat absorbiert werden [19]. Dieser Wert liegt im Bereich der hier untersuchten Betongranulate. Die Angaben der Firma Eberhard zur CO₂-Absorption in ihrem als Zirkulit® angebotenen Recyclingbeton belaufen sich 10 kg CO₂-Absorption bei 1750 kg Sekundärrohstoffen in einem Kubikmeter Beton [20]. Da die Verfahren dieser beiden Firmen bei Betongranulat nach der Lagerung im Werk vorgenommen werden können, erhöht sich so die CO₂-Absorption zusätzlich.

Material	Lagerung	Dauer	Abso	Absorbiertes CO ₂ [kg/t]		
		[Monate]	0/4mm	4/8mm	8/16mm	
	U, Empa	6	8.8	<0.5	<0.5	8.8
	B, Empa	6	7.7	<0.5	<0.5	7.7
BG1	B, Werk, Rand	6	10.2	<0.5	<0.5	10.2
	B, Werk, Kern	6	10.1	<0.5	<0.5	10.1
	U, Empa	6	5.1	3.0	2.1	10.3
	B, Empa	6	5.5	2.8	1.7	10.0
BG2	B, Werk, Rand	8	3.5	0.7	1.2	5.4
	B, Werk, Kern	8	3.7	0.9	1.1	5.7
PC2	U, Werk	2	7.1	4.0	1.6	12.7
BG3	U, Kern	2	6.7	2.7	0.5	9.9

Tabelle 7: CO₂-Absorption von Betongranulat in kg/t Betongranulat am Ende der Lagerung. U = unbewittert, B = bewittert.

Das absorbierte CO₂ relativ zur Emission bei der Klinker-Herstellung wird in Tabelle 8 aufgeführt. Je nach Betongranulat, Lagerung und Position im Haufwerk schwanken die Werte zwischen 8.9 und 20.9 %. Bezogen auf die gesamthaft emittierte Menge CO₂ (844 kg/t Klinker) entspricht dies 5.4 und 12.6 %. Dieser Bereich umfasst drei der vier Werte, die in Abbildung 20 als CO₂-Absorption von Betongranulat dargestellt sind (100% Recycling-Rate). Der erste Wert (b) wurde in einer Laborstudie an Betongranulat bestimmt [21]. Der zweite Wert (c) wurde für eine bewitterte Exposition von zwei Wochen berechnet [4]. Der dritte Wert (d) basiert auf einer Bestimmung des Karbonatisierungsgrades zweier Betongranulate [4,6]. Damit können diese mit einem einfachen Ansatz berechneten Werte in den aufgeführten Studien durch die wesentlich breiter und besser abgestützten Werte der vorliegenden Studie bestätigt werden.

Material	Lagerung	Dauer	Absorbiertes geogenes CO ₂ [%]			Summe geogenes CO ₂	Summe gesamthaftes CO ₂
		[Monate]	0/4 mm	4/8 mm	8/16 mm	[%]	[%]
	U, Empa	6	11.5	<0.5	<0.5	11.5	6.9
PC1	B, Empa	6	10.1	<0.5	<0.5	10.1	6.0
BGI	B, Werk, Rand	6	13.2	<0.5	<0.5	13.2	7.9
	B, Werk, Kern	6	13.1	<0.5	<0.5	13.1	7.9
	U, Empa	6	8.3	4.9	3.6	16.9	10.1
BC2	B, Empa	6	8.9	4.6	2.8	16.4	9.8
BGZ	B, Werk, Rand	8	5.7	1.2	2.0	8.9	5.4
	B, Werk, Kern	8	6.0	1.5	1.9	9.4	5.6
DC2	U, Werk	2	11.4	6.7	2.8	20.9	12.6
BG3	U, Kern	2	10.9	4.5	0.9	16.2	9.7

Tabelle 8: CO₂-Absorption von Betongranulat am Ende der Lagerung an der Empa und im Werk. U = unbewittert, B = bewittert.

Wird weniger als 100 % Betonabbruch dem Recycling zugeführt, sinkt auch die absorbierte Menge an CO_2 (Abbildung 20). In [4,6] wurde von einer Recyclingquote in der Schweiz von 70% anstatt wie oben von 100% ausgegangen. Wird hier auch dieser Wert verwendet, reduziert sich der Anteil an absorbiertem CO_2 bezogen auf die geogene Emission auf 6.2-14.6 % und bei der gesamthaften

Emission auf 3.8-8.8 %. Diese Werte können mit Resultaten aus anderen Studien, denen aber meistens keine experimentellen Daten, sondern nur Annahmen zugrunde liegen, verglichen werden (Tabelle 9). In [22] wird für die nordischen Länder von einer CO₂-Absorption von 6-33 % des geogenen Anteils mit einem Durchschnittwert von 18 % ausgegangen. In [23] wird beim Beton ein globaler Wert von 4% aufgeführt. Die in dieser Studie erhobenen Werte für die CO₂-Absorption sowohl während der Lebensdauer von Betonbauwerken als auch der Recycling-Phase sind allerdings kritisch zu beurteilen.



Abbildung 20: Anteil des absorbierten CO₂ relativ zu der Gesamtemission während der Lebensdauer von Betonbauwerken und während der Recycling-Phase bei Recycling-Quoten von 40, 70 und 100 % [6]. Rot eingezeichnet sind die in der vorliegenden Studie bestimmten Werte von den in den Werken gelagerten Betongranulaten.

Publikation	Land	absorbiertes CO ₂ (geogen) [%]		
Fublikation	Lanu	Lebensdauer	Recycling	
	Schweden	18	15	
Rada & Cuimaraga 2007	Norwegen	16	17	
Fade & Guimaraes, 2007	Dänemark	24	33	
	Island	30	6	
		42 (Beton)	4	
Xi et al., 2016	Global	72 (alle Zement-basierten Materialien)		
Andrade & Sanjuán, 2018	Spanien	11	-	
Nygaard & Leemann, 2012 Leemann, 2019	Schweiz	16	8-25*	
Leemann, 2021	Schweiz	-	6-15*	

* Recyclingquote von 70%

Tabelle 9: Während der Recyclingphase absorbiertes CO₂ in Relation zur Emission des geogenen Anteils während der Zementproduktion.

4.3 CO₂-Absorption vor der Lagerung

Aus der Bildanalyse ist der Anteil des unkarbonatisierten Zementsteins der Betongranulate 1 und 2 am Anfang der Lagerung bekannt. Aufgrund der angenommenen Betonrezepturen (siehe Kapitel 2.2) kann bei den Granulaten von einem bestimmten Zementsteinvolumen ausgegangen werden. Entsprechend kann auch der Anteil des Zementsteins berechnet werden, der bereits karbonatisiert war, als mit der Lagerung begonnen wurde. Dies umfasst die Karbonatisierung am Bauwerk, während der Lagerung des Betonabbruchs und sowie während der Lagerung des Betongranulates vor der Lieferung an die Empa. Aus dieser Karbonatisierung lässt sich wiederum das absorbierte CO₂ in Relation zur Emission während der Klinkerproduktion berechnen. Bezogen auf die gesamthafte und die geogene Emission hat das Betongranulat 1 4.6 respektive 7.6 % wieder absorbiert, das Betongranulat 2 12.9 respektive 21.6 % und das Betongranulat 3 10.2 und 16.9 %. Die Werte sind beim Betongranulat 1 deutlich tiefer als bei den Betongranulaten 2 und 3. Dies ist vermutlich auf Folgendes zurückzuführen. Im Gegensatz zum Hochbaubeton waren die Altschwellen mehrheitlich der Witterung ausgesetzt. In der bewitterten Lagerung von Betonkörpern schreitet die Karbonatisierung abhängig vom w/z-Wert um etwa einen Faktor 3 langsamer voran (Abbildung 21). Bei tiefen w/z-Werten kann diese Differenz zudem noch grösser sein, weil in diesem Fall die kapillare Kondensation wegen dem höheren Anteil an feinen Poren im Vergleich zu einem hohen w/z-Wert bereits bei tieferen relativen Feuchten zu einem markanten Verlangsamen der Karbonatisierung führen kann [12,15,24].

Die Werte der Betongranulate 2 und 3 mit 12.9 respektive 10.2 % Absorption von der gesamten CO₂-Emission bei der Klinkerherstellung passen aber gut mit dem kalkulierten Wert von 10 % aus [6] zusammen (Abbildung 20).



Abbildung 21: Karbonatisierungskoeffizient K_B in bewitterter Exposition als Funktion des Karbonatisierungskoeffizienten K_U in unbewitterter Exposition nach fünf Jahren. Die farblich herausgehobenen Punkte betreffen Beton aus CEM I 52.5 hergestellt mit w/z-Werten von 0.40 und 0.65. Daten aus [15]. Die Zahlen bei den Betonen stehen für den jeweiligen Anteil an Zusatzstoff in Masse-%. S = Hochofenschlacke, MS = Silikastaub, L = Kalksteinmehl, FA = Flugasche.

4.4 Anwendbarkeit auf Betongranulat aus verschiedenen Zementsorten

Die durchgeführten Berechnungen zur CO₂-Absorption beruhen wie unter Kapitel 2.5 beschrieben auf der Annahme, dass die rückgebauten Betone als Quelle der untersuchten Betongranulate aus CEM I hergestellt wurden. Wenn beim rückgebauten Beton eine andere Zementsorte verwendet wurde und diese bekannt ist, können dieselben Berechnungen wie unter 2.5 dargelegt auch für diese durchgeführt werden. Dabei muss der Klinkergehalt der jeweiligen Zementsorte berücksichtigt werden. Üblicherweise ist beim rückgebauten Beton aber nicht bekannt, welche Zementsorten eingesetzt wurden. Zudem findet im Werk ein Vermischungs- und Homogenisierungsprozess statt, wodurch eine Rückverfolgbarkeit erschwert wird und letztlich immer von Annahmen hinsichtlich Zementsorten ausgegangen werden muss.

Grundsätzlich muss von zwei verschiedenen Situationen ausgegangen werden:

Situation A: Vollständige Karbonatisierung

Wenn das Betongranulat vollständig karbonatisiert ist, ist der relative Anteil des absorbierten CO_2 bezogen auf die geogene Emission unabhängig von der Zementsorte immer derselbe. Wie schnell dieser Zustand erreicht wird, ist vom Karbonatisierungskoeffizienten *K* des spezifischen Betongranulates abhängig.

Situation B: Teilweise Karbonatisierung

Während der Karbonatisierung nimmt ein Betongranulat aus zum Beispiel aus CEM II/B-LL CO_2 wegen seines vergleichsweise hohen Karbonatisierungskoeffizienten *K* wesentlich schneller auf als ein Betongranulat aus CEM I mit einem vergleichsweise tiefen Karbonatisierungskoeffizienten *K*. (identischer w/z vorausgesetzt). Um zu illustrieren, wie unterschiedlich schnell die CO_2 Absorption während der Karbonatisierung von Beton ist, wurde dies für eine Gruppe von Betonen nach einer unbewitterten Exposition nach einer Zeit von fünf Jahren berechnet (Abbildung 22).

Schematisch sind die beiden Situationen A und B in Abbildung 23 dargestellt. Beim Betongranulat aus CEM II/B-LL verläuft die CO₂ Absorption während der laufenden Karbonatisierung schneller als beim Betongranulat aus CEM I (Situation A). Sind beide Betongranulate vollständig karbonatisiert, ist die CO₂ Absorption beim Betongranulat aus CEM I wegen dem höheren Klinkeranteil höher (Situation B).

Diese schematische Darstellung gilt für das Betongranulat als Ganzes. Nun muss aber beachtet werden, dass Betongranulat aus einem breiten Korngrössenspektrum besteht. Feine Partikel können nach einer kurzen Expositionszeit schon vollständig karbonatisiert sein (Situation A), wenn grössere zum selben Zeitpunkt erst teilweise karbonatisiert sind (Situation B). Vor dem Erreichen einer vollständigen Karbonatisierung sind also immer sowohl Situation A als auch Situation B in einem Verhältnis präsent, das sich in Abhängigkeit der Expositionsart und -dauer. der Korngrössenverteilung, dem w/z und der Zementart kontinuierlich auf nicht-lineare Weise ändert. Aus diesem Grund können die erhobenen Daten für die spezifischen Betongranulate nicht auf Betongranulate aus anderen Zementarten extrapoliert werden. Bei einer kurzen Lagerungsdauer von wenigen Wochen nehmen Betongranulate mit einem hohen Karbonatisierungskoeffizienten K tendenziell mehr CO₂ auf. Die gilt auch ganz allgemein für Betongranulate mit einem hohen Sandanteil.



Abbildung 22: Absorbiertes CO₂ in der karbonatisierten Schicht eines Betons als Funktion des Karbonatisierungskoeffizienten K_S in unbewitterter Exposition nach fünf Jahren. Berechnung für ein Volumen mit der Grundfläche von 1 cm² und der Karbonatisierungstiefe der spezifischen Betone. Grunddaten aus [15]. Die Zahlen bei den Betonen stehen für den jeweiligen Anteil an Zusatzstoff in Masse-%. S = Hochofenschlacke, MS = Silikastaub, L = Kalksteinmehl, FA = Flugasche.



Abbildung 23: Schematische Darstellung der CO₂-Absorption (kg CO₂ pro Tonne Betongranulat) von Betongranulat aus CEM I mit einem relativ tiefen Karbonatisierungskoeffizienten *K* und CEM II/B-LL mit einem relativ hohen Karbonatisierungskoeffizienten *K* als Funktion der Zeit.

4.5 Fehlerbetrachtung

Die präsentierten Resultate müssen auch hinsichtlich möglicher Fehlerquellen respektive aus Sicht der Messunsicherheit her betrachtet werden. Quantitative Betrachtungen sind allerdings nicht möglich, weil dies die Datenlage nicht zulässt. Trotzdem geben diese qualitativen Überlegungen einen Eindruck über den Grad der Unschärfe.

Die im Werk gebrochene und für das Projekt gelagerte Menge an Betongranulat liegt bei über 100 Tonnen. Davon wurden am Anfang des Projektes und am Schluss der Lagerung im Werk 75-230 kg an die Empa geliefert. Beim Brechvorgang und dem anschliessenden Transport zum Lagerungsort findet eine gewisse Homogenisierung statt. Es sind aber keine Daten über die Homogenität des Haufwerks als Ganzes vorhanden. Entsprechend besteht eine gewisse Unsicherheit wie gross die Streuung zwischen den Betongranulaten aus der ersten und der zweiten Lieferung sind. Bei der zweiten Lieferung wurden zudem der Rand und das Innere des Haufwerks beprobt. Auch zwischen diese beiden Teilproben können Differenzen bezüglich den Eigenschaften des Betongranulates bestehen.

Das Betongranulat der ersten Lieferung wurde an der Empa homogenisiert und dann bewittert respektive unbewittert gelagert. Hier kann davon ausgegangen werden, dass die Homogenität gut war.

Für das Einbetten in Epoxidharz wurden jeweils mehrere Kilogramm Betongranulat gesiebt. Von den Einzelfraktionen wurden beim Sand jeweils 15 g und von den gröberen Fraktionen so viele Körner verwendet, dass im Plastikbehälter eine Lage an Körnern entstand. Wie bei jeder Probenreduktion können auch hier Schwankungen auftreten. Wie bereits in Kapitel 2.2 beschrieben, können bei einer geringen Anzahl Körner Schwankungen des Anteils an Zementstein und damit auch des unkarbonatisierten Zementsteins auftreten, speziell bei den groben Fraktionen mit einem gesamthaft geringeren Anteil an Zementstein. Die Anzahl Körner war beim Sand sicher hoch genug, da ihre Anzahl deutlich > 1000 liegen dürfte. Bei der Fraktion 4/8 mm wurden 350-400 Körner analysiert, bei der Fraktion 8/16 mm 90-110 Körner und bei der Fraktion 16/22 mm 30-50 Körner. Wegen der geringen Anzahl an Körnern wurde die Fraktion 16/22 mm für die Auswertung nicht berücksichtigt. Bei den Fraktionen 4/8 und 8/16 mm gibt das Betongranulat 1 einen guten Anhaltspunkt über die Schwankungen im Verhältnis zwischen Volumen Zementstein und Volumen Gesteinskörnung. Diese Fraktionen wiesen keine Karbonatisierung auf und wurden bei der ersten Lieferung insgesamt sechs Mal analysiert (nach 0, 1.5 und 6 Monaten Lagerung bewittert und unbewittert) und bei der zweiten Lieferung zweimal. Mittelwerte und Standardabweichung sind in Tabelle 10 dargestellt. Die Standardabweichung ist bei der Fraktion 4/8 mm etwas kleiner als bei der Fraktion 8/16 mm, was gut mit der höheren Anzahl an analysierten Körnern bei der Fraktion 4/8 mm erklärt werden kann. Bei der zweiten Lieferung, bei allerdings nur zwei analysierten Proben, ist die Differenz grösser. Der durchschnittliche Anteil an unkarbonatisiertem Zementstein ist in der zweiten Lieferung bei beiden Fraktionen etwas kleiner.

Bei den Fraktionen > 4 mm ist ein kleiner Einfluss zu erwarten, wenn die abgeschliffene Schicht nicht auf den Millimeter genau der Hälfte des mittleren Korndurchmesser entspricht. Bei der Sandfraktion würde eine zu gering entfernte Schicht dazu führen, dass keine Querschnitte durch die gröberen Körner der Sandfraktion vorhanden sind. Bei der Entfernung einer zu dicken Schicht, würde ein grosser Teil der Feinstfraktion entfernt. Auch wenn das Abschleifen mit grosser Sorgfalt erfolgte, kann hier eine Fehlerquelle durch Variationen der Dicke der entfernten Schicht nicht ausgeschlossen werden.

Lieferung	Potongropulat 1	unkarbonatisiert [Flächen-%]		
Lieferung	Detorigranulat	4/8mm	8/16mm	
11	Mittelwert		28.5	
I	Standardabweichung	±2.5	±3.6	
\mathbf{n}^2	Mittelwert	27.4	26.2	
Z	Standardabweichung	±0.1	±8.1	

¹ jeweils 6 analysierte Proben ¹ jeweils 2 analysierte Proben

Tabelle 10: Mittelwert und Standardabweichung des Anteils an unkarbonatisiertem Zementstein bei
den Fraktionen 4/8 und 8/16 mm des Betongranulates 1.

Die Berechnungen der CO₂-Absorption beruhen auf Annahmen des beim ursprünglichen Betons verwendeten Zementgehalts, w/z und Zementtyps (Kapitel 2.2). Um den Einfluss dieser gewählten Werte auf die berechnete CO₂-Aufnahme abzuschätzen, wurden die Berechnungen bei den Betongranulaten 2 und 3 für weitere Zementgehalte, w/z-Werte, einen CEM II/A-LL und eine höhere CO₂-Absorption im karbonatisierten Zementstein berechnet (Tabelle 11). Die Abweichungen vom ursprünglich berechneten Wert reichen beim Betongranulat 2 von -0.8 bis zu +1.4 kg/t und beim Betongranulat 3 von -1.6 bis +2.8 kg/t. Relativ gesehen entspricht dies bei beiden Betongranulaten Werten von -14 bis +25 %.

Zement	Menge	w/z	Zementsteinvolumen	CaO im Klinker	CO _{2,abs} BG2	CO _{2,abs} BG3
	[kg/m³]	[-]	[l/m³]	[kg/m ³]	[kg/t]	[kg/t]
CEM I	300	0.55	276	185	5.6	11.3
CEM I	290	0.64	288	179	5.1 (-0.5)	10.4 (-0.9)
CEM I	310	0.49	266	191	6.0 (+0.4)	12.1 (+0.8)
CEM II/A-LL	300	0.55	277	160	4.8 (-0.8)	9.7 (-1.6)
CEM I*	300	0.55	276	185	7.0 (+1.4)	14.1 (+2.8)

* gerechnet mit einer CO₂ Absorption im karbonatisierten Zementstein von 75 anstatt 60%

Tabelle 11: Werte der CO₂-Absorption bezogen auf die Gesamtemission der Betongranulate 2 und 3 am Ende der Exposition im Werk als durchschnittliche Werte für den Rand- und Kernbereich des Haufwerks gerechnet für verschiedene Betonzusammensetzungen. In Klammern: Abweichung von den in der zweiten Zeile aufgeführten Werten.

5. Zusammenfassung

Der Anteil an karbonatisiertem Zementstein wurde an drei Betongranulaten als Funktion der Expositionsdauer, der Exposition und der Korngrösse bestimmt. Daraus wurde die CO₂-Absorption berechnet. Es können folgende Schlussfolgerungen gezogen werden:

- Die Betongranulate karbonatisieren, obwohl ihre Feuchte meistens über ihrer kapillaren Wasseraufnahme liegt und sie somit auch oberflächenfeucht sind. Betongranulat in unbewitterter Exposition trocknet zudem nur langsam.
- Der Karbonatisierungsgrad ist am Rand des Haufwerks leicht höher als im Innern des Haufwerks.
- Unbewittertes Betongranulat karbonatisiert etwas schneller als bewittertes Betongranulat.
- Der Karbonatisierungsgrad steigt mit sinkender Korngrösse.
- Der Fortschritt des Karbonatisierungsgrades verlangsamt sich mit der Zeit. Einerseits ist die Feinstfraktion innerhalb von wenigen Wochen vollständig karbonatisiert. Andererseits folgt der Karbonatisierungsfortschritt bei gröberen Partikeln wahrscheinlich dem Wurzel-Zeit-Gesetz.

Aus dem Karbonatisierungsgrad als Funktion der Zeit kann eine CO₂-Absorption des Betongranulates berechnet werden:

- Die höchste CO₂-Absorption erfolgt in der Sandfraktion mit Werten, die meistens deutlich über 50 % der gesamten CO₂-Absorption des Betongranulates liegen.
- Je länger das Betongranulat gelagert wird, umso höher ist die CO₂-Absorption: nach 1.5 Monaten ist bereits rund 80 % des Wertes nach 6 Monaten erreicht.
- Abhängig vom Betongranulat, der Position im Haufwerk, der Lagerungsart und -dauer werden zwischen 10.1 und 20.9 % des während der Calcinierung emittierten, geogenen CO₂ absorbiert.
- Die CO₂-Absorption des rückgebauten Betons ist von dessen Recycling-Quote abhängig.
- Bei einer Recycling-Quote von 100 % ist die Menge des von Betongranulat absorbierten CO₂ gleich gross oder bis zu einem Faktor 2 höher als die Menge des während der Lebensdauer der Bauwerke absorbierten CO₂.

6. Umsetzung und Ausblick

Die Produzenten und Verwender versuchen eine relativ homogene Qualität des Betongranulats zu erreichen, damit bei der Betonproduktion keine Probleme entstehen und eine homogene Betonqualität erreicht werden kann. Dazu werden üblicherweise schon Massnahmen bei der Lagerung des Betonabbruchs, dem Zuführen des Betonabbruchs zum Brecher und bei der Lagerung des Betongranulates im Haufwerk ergriffen. Hinsichtlich der CO₂-Absorption des Betongranulates gibt es grundsätzlich zwei Möglichkeiten:

- Es werden keine Massnahmen für eine Optimierung getroffen
- Es werden Massnahmen für eine Optimierung getroffen.

Werden Massnahmen für eine Optimierung getroffen, können diese relativ einfacher Natur sein:

- Das Betongranulat wird mindestens 1.5 Monate gelagert.
- Das Haufwerk wird regelmässig umgeschichtet (alle 1-2 Wochen).
- Das Betongranulat wird unbewittert gelagert.

Bei diesen drei Massnahmen hat die Lagerungsdauer den mit Abstand grössten Effekt auf den Karbonatisierungsgrad des Betongranulates.

Die Erkenntnis, dass die Sandfraktion einerseits den höchsten Zementsteinanteil aufweist und andererseits am schnellsten CO₂ absorbiert, könnte unter Umstanden genutzt werden. Ein einfaches Beispiel könnten bei der Aufbereitung eine Auftrennung in die Sandfraktion 0/4 mm und eine Grobfraktion 4/d_{max} sein. Die Sandfraktion könnte dann unbewittert im regelmässig umgeschichteten Haufwerk gelagert werden, während die Grobfraktion ohne besondere Massnahmen unbewittert gelagert wird.

Abgesehen von Massnahmen zur Optimierung der Karbonatisierung bei natürlichen CO_2 -Gehalten, könnten auch Prozesse entwickelt werden, die mit CO_2 -angereicherten Gasen (z. Bsp. Abluft des Zementofens) oder reinem CO_2 aus Biogas-Auftrennungsanlagen arbeiten, wie es zum Beispiel in [18] praktiziert wird.

7. Referenzen

- [1] Le Quéré, C., Andrew, R. M., Canadell, J. G., Sitch, S., ... and Keeling, R. F., Global carbon budget 2018, Earth Syst Sci Data 10 (2018) 2141–2194,u11633
- [2] Lagerblad, B., Carbon dioxide uptake during concrete life cycle–state of the art. Swedish Cement and Concrete Research Institute CBI, Stockholm (2005)
- [3] Pade, C. and Guimaraes, M., The CO₂ uptake of concrete in a 100 year perspective, Cem Conc Res 37(9) (2007), 1348-1356
- [4] Nygaard, P. und Leemann A., Kohlendioxidaufnahme von Stahlbeton durch Karbonatisierung, Cemsuisse Projekt 201106, Bern (in German) (2012)
- [5] Andrade, C., Sanjuán, M., Updating Carbon Storage Capacity of Spanish Cement, Sustain 10 (2018) 4806.
- [6] Leemann, A., CO₂ absorption of concrete based on the boundary conditions of Switzerland, International Workshop. CO₂ Storage in Concrete – CO2STO2019, 24-25 June 2019, Ifsttar, Marne La Vallée, France.
- [7] SN EN 1097-6:2014-04, Prüfverfahren für mechanische und physikalische Eigenschaften von Gesteinskörnungen Teil 6: Bestimmung der Rohdichte und der Wasseraufnahme.
- [8] Agoston, M.K.. (2005). Computer graphics and geometric modeling: implementation and algorithms. London: Springer, 300-306
- [9] Michael J. Gibbs, Peter Soyka and David Conneely, CO₂ emissions from cement production https://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/gp/bgp/3_1_Cement_Production.pdf
- [10] FprEN 16757 (2021) CEN/TC 229 Sustainability of construction works Environmental product declarations Product Category Rules for concrete and concrete elements
- [11] Thiery, M., Dangla, P., Belin, P., Habert, G., & Roussel, N. (2013). Carbonation kinetics of a bed of recycled concrete aggregates: a laboratory study on model materials. Cement and Concrete Research, 46, 50-65.
- [12] Leemann, A., Pahlke, H., Loser, R., & Winnefeld, F. (2018). Carbonation resistance of mortar produced with alternative cements. Materials and Structures, 51(5), 1-12.
- [13] Chang, C. F., & Chen, J. W. (2006). The experimental investigation of concrete carbonation depth. Cement and Concrete Research, 36(9), 1760-1767.
- [14] Shi, Z., Lothenbach, B., Geiker, M. R., Kaufmann, J., Leemann, A., Ferreiro, S., & Skibsted, J. (2016). Experimental studies and thermodynamic modeling of the carbonation of Portland cement, metakaolin and limestone mortars. Cement and Concrete Research, 88, 60-72.
- [15] Leemann, A., & Moro, F. (2017). Carbonation of concrete: the role of CO 2 concentration, relative humidity and CO 2 buffer capacity. Materials and Structures, 50(1), 1-14.
- [16] Kündig et al. Die mineralischen Rohstoffe der Schweiz Zürich : Schweizerische Geotechnische Kommission 1997.
- [17] Steiner, S., Lothenbach, B., Proske, T., Borgschulte, A., & Winnefeld, F. (2020). Effect of relative humidity on the carbonation rate of portlandite, calcium silicate hydrates and ettringite. Cement and Concrete Research, 135, 106116.
- [18] Wierig H.J., Longtime studies on the carbonation of concrete under normal outdoor exposure, Proc. RILEM Seminar on the Durability of Concrete Structures under Normal Outdoor Exposure, 1984, 239-249.
- [19] Firma Neustark (2021) https://de.neustark.com/,
- [20] Firma Eberhard (2021) https://schweizerbaujournal.ch/eberhard-lanciert-den-ersten-zirkulaerenbeton-der-schweiz/
- [21] Kikuchi, T., & Kuroda, Y. (2011). Carbon dioxide uptake in demolished and crushed concrete. Journal of Advanced Concrete Technology, 9(1), 115-124.
- [22] Pade, C. and Guimaraes, M., The CO2 uptake of concrete in a 100 year perspective, Cem Conc Res 37(9) (2007), 1348-1356

- [23] Xi, F., Davis, S. J., Ciais, P., Crawford-Brown, D., Guan, D., Pade, C., ... & Liu, Z. (2016). Substantial global carbon uptake by cement carbonation. Nature Geoscience, 9(12), 880-883.
- [24] Fisher, L. R., Gamble, R. A., & Middlehurst, J. (1981). The Kelvin equation and the capillary condensation of water. Nature, 290(5807), 575-576.