

## **Bindung und Fixierung biopolymerhaltiger Granulate auf Basis von Roggen und Leguminosen durch Nutzung alumosilikatischer Bindungskapazitäten**

*Dr. J. Volk*<sup>1)</sup>, *Dipl.-Ing. B. Leydolph*<sup>2)</sup>, Prof. Dr. rer. nat. habil. Christian Kaps, Dipl.-Ing. Marc Hohmann<sup>3)</sup>

Die nachfolgend vorgestellten Arbeiten resultieren aus einem F/E-Projekt, das aus Haushaltsmitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) über die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen (AiF-Vorhaben-Nr.: 14479BR) gefördert wurde. Das Vorhaben wurde im Verbund von 3 Forschungsstellen entwickelt und in der Zeit 08/2005 bis 07/2007 realisiert:

- 1) Institut für Lebensmittel- und Umweltforschung e.V. (ILU e.V.)  
Arthur-Scheunert-Allee 40/41, 14558 Bergholz-Rehbrücke  
Leiter der Forschungsstelle: Dipl.-Ing. Peter Kretschmer  
Projektleiter: Herr Dr. J. Volk
- 2) Institut für Fertigteiletechnik und Fertigbau Weimar e.V.  
Cranachstraße 46, 99423 Weimar  
Leiter der Forschungsstelle: Dr.-Ing. Ulrich Palzer  
Projektleiter: Dipl.-Ing. Barbara Leydolph
- 3) Bauhaus-Universität Weimar  
Professur Bauchemie  
Coudraystraße 13C, 99421 Weimar  
Leiter der Forschungsstelle: Prof. Dr. rer. nat. habil. Christian Kaps  
Projektleiter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Christian Kaps

### **Zielstellung der Arbeit**

Biopolymere Rohstoffe, welche von der Natur bereitgestellt werden, bieten die Möglichkeit der Entwicklung von Materialien mit neuen Eigenschaften für verschiedene Industriezweige. Insbesondere im Sinne eines ressourcenschonenden und nachhaltigen Umgangs mit unserer Umwelt ist der Einsatz von natürlichen, biopolymeren Rohstoffen im Bereich der Baustoffindustrie attraktiv. Ein interessanter Aspekt hinsichtlich erzielbarer Funktionalität und Rohstoffkosten ist die Kombination mineralischer Rohstoffe mit stärkebasierten Biopolymeren (z.B. Produkten aus Getreide und Leguminosen) zu neuartigen Verbundwerkstoffen für den Baubereich. Hinsichtlich der Verfügbarkeit von biopolymeren Rohstoffen, den relativ geringen Kosten, der Möglichkeit des Erzielens homogener Qualitäten im jährlichen Anbau und natürlich auch in der Bereitstellung mit konstanten Inhaltsstoffparametern ist speziell Roggen ein günstiger Rohstoff für derartige Werkstoffentwicklungen. Die zwingende Notwendigkeit für den Anbau von Roggen in vielen Regionen Deutschlands und Europas zum Erhalt der Bodenqualität, unabhängig vom Konsum des Getreides als Nahrungsmittel ermöglicht dabei eine breite und sichere

Rohstoffbasis. Leguminosen wurden außer im Fall der amylosereichen Markerbse bisher noch nicht in die Werkstoffforschung einbezogen. Auf Grundlage ihrer stofflichen Zusammensetzung, der Verfügbarkeit und der Kosten sind auch sie ein potentieller Rohstoff, dessen Eignung/Funktionalität im Vorhaben geprüft wurde.

Mit dem Ziel, gute Wärmedämmeigenschaften raumabschließender Bauteile an Wohn- und Gesellschaftsbauten zu realisieren, wurden in der Vergangenheit verschiedene neue Dämmstoffe entwickelt. Dabei führte die Vielzahl von Anwendungen derartiger Baustoffe zu den unterschiedlichsten Rohstoffkombinationen. Durch die besondere Beachtung ökologischer Aspekte – wie dem Primärenergiebedarf der Dämmstoffproduktion und dem Einsatz nachwachsender Rohstoffe – sind bereits erste Produkte entwickelt, die als Rohstoff Biopolymere wie z.B. Kork- oder Papierabfälle bzw. Fasern nutzen. Mit der erfolgreichen Vermarktung dieser Produkte begann gleichzeitig die Suche nach neuen nutzbaren Rohstoffen mit dem Ziel, Produkte mit neuen Eigenschaften bei gleichzeitiger Schonung endlicher natürlicher Ressourcen wie Erdöl zu entwickeln. Der potentielle Einsatz von Getreide und Leguminosen als Zuschlagstoff für Verbundwerkstoffe ist aus den genannten Gründen, insbesondere auf der Basis der erreichbaren Funktionalität der Endprodukte, von großem Interesse.

Die Zielstellung des Forschungsvorhabens bestand in der Entwicklung von Verbundwerkstoffen aus Biopolymeren und einem für diese Anwendung geeigneten Polymerbinder, d.h. der Kombinationen von Granulaten und geeigneten matrixbildenden Bindemittelsystemen.

Die Aufgabenstellung beinhaltete die Entwicklung von Granulaten mit höherer Wasserbeständigkeit und damit verbundener Verringerung der Wasseraufnahmefähigkeit der extrudierten Granulate auf unter 120 %. Parallel dazu sollte eine Schüttdichte von 100 bis 130 kg/m<sup>3</sup> und eine Partikelgröße von unter 4 mm erreicht werden.

Die Lösung bestand in der Herstellung von Verbundwerkstoffen mit bisher für diese Anwendung noch nicht eingesetzten alumosilikatischen Polymerbindern. Diese bestehen aus einer reaktiven Feststoffkomponente, die mit einer alkalischen Aktivierungslösung zur Reaktion gebracht wird. Als Feststoffkomponente kommen hauptsächlich thermisch aktivierte alumosilikatische Rohmaterialien auf der Basis von Tonen und Kaolinen in Frage. Daneben ist der Einsatz alumosilikatischer Recyclingprodukte, wie Schlacken und Aschen möglich. Insbesondere die energiemoderate Erzeugung des aktivierten Tonnes bei ca. 800°C bzw. der Einsatz bereits thermisch behandelten Recyclingmaterialien verbessert die CO<sub>2</sub> und Energiebilanz derartiger Materialien. Durch Polykondensation entstehen Netzwerke aus SiO<sub>4</sub> und AlO<sub>4</sub> Tetraedern, welche über Brückensauerstoffe miteinander fest verbunden sind. Die Kationen (Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>) bewirken im Netzwerk die Kompensation der negativen Ladung am Aluminium, die sich aus dessen 4-fach Koordination ergibt. Entstehende Polykondensate lassen sich unkompliziert in ihrer Rohdichte und Festigkeit variieren

### **Zusammenfassung der Ergebnisse**

Die erste Zielstellung bestand in der Entwicklung eines neuen leichten, getreidebasierten Granulates als Leichtzuschlagstoff. Dabei erfolgte eine Modifizierung des Wasseraufnahmeverhaltens bei Beibehaltung einer verhältnismäßigen geringen Schüttdichte und beinhaltete eine Optimierung der Form, der Struktur und des Porenbildes der Granulate in Abhängigkeit vom Expansionsgrad. Das wesentliche Ziel bei der Kombination

der Rohstoffe bestand im Initiieren von festen Verbindungen (chemische, physikalische), die zu einer mechanisch stabilen Matrix der Granulate führen sollten.

Hinsichtlich des Extrusionsprozesses war der Energieeintrag auf die Rohstoffe der bestimmende Faktor, der den Expansionsgrad, die Bindeeigenschaften der Rohstoffbestandteile und die mechanische Festigkeit beeinflusste. Mit Erhöhung des Expansionsgrades wurde auch die Depolymerisation der Inhaltsstoffe erhöht. Das wurde bis zu einem bestimmten Grad erwünscht, um Reaktionen zwischen den Inhaltsstoffen zu ermöglichen. Limitierend wirkte sich die Degradation der Polymere auf die Strukturfestigkeit der Granulate sowie deren hydrophobe/hydrophile Eigenschaften als Dämmstoff aus. Resultierend aus den vorliegenden Ergebnissen können stärkebasierte Systeme nur einen definierten Anteil an nicht expandierfähigen Additiven in das System integrieren. Die Verwendung von treibmittelhaltenden Komponenten erwies sich im Extrusionsprozess als nicht produktionsstabil. Die entsprechend den gewählten inhaltsstofflichen und technischen Parametern vorgegebene Zielstellung, Granulate für den Einsatz in alumosilikatischen Bindemittelsystemen zu modifizieren, wurde in Bezug auf die Schüttdichte (167 bis 180 kg/m<sup>3</sup>) und der Porosität (~50 %) nur teilweise entsprochen. Die Parameter Brandklasse B1, Kornstruktur und reduzierte Ammoniakbildung im Produktionsprozess und im Produkt konnten dagegen erreicht werden.

Ein weiterer Arbeitsschwerpunkt bestand in der Entwicklung eines Leichtmörtels auf Basis eines Geopolymer-Leimes nach DE 102 20 310 C1 zur Bindung und Fixierung biopolymerhaltiger Granulate als Leichtzuschlagstoff. In der vorliegenden Arbeit wurde aufgabegemäß und zielgerichtet das Zweikomponenten-System aus dem reaktiven Feststoff Metakaolin und der stark alkalischen Alkalisilikatlösung systematisch auf seine relevanten Werkstoffeigenschaften hin untersucht. Zur Einbindung der biopolymeren Leichtzuschläge wurde der optimierte Geopolymer-Leim zu einem Leichtmörtel weiterentwickelt. Diese Optimierung des Leichtmörtel-Kompositwerkstoffes erfolgte durch das Einbringen von inerten, teilreaktiven funktionellen Füllstoffen, Fasern und Poren. Es haben sich Holz- und Cellulosefasern als Faserbewehrung, thermisch aktivierte Tone als teilreaktive funktionelle Füllstoffe und H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> als Porosierungsmittel zur Erreichung des Forschungszieles als geeignet erwiesen. Zur Verbesserung der Strukturbildung und der damit verbundenen Dauerhaftigkeit dieses Kompositwerkstoffes wurde Hüttensand wegen seines Calciumgehaltes eingesetzt, wobei eine CSH-Phasenbildung nicht nachgewiesen wurde. Dieser Leichtmörtel ist geeignet, einen Verbundwerkstoff mit Leichtzuschlägen herzustellen. Gute baubiologische und bauphysikalische Eigenschaften, wie Wasserdampfdurchlässigkeit, Wasserbeständigkeit und Beständigkeit gegenüber Pilzen und Insekten ist für den Leichtmörtel gegeben. Diese Forschungsergebnisse korrespondieren mit dem aktuellen internationalen Erkenntnisstand. Ein über den Stand des Patents DE 102 20 310 C1 hinausgehendes Schutzrecht ist nicht bekannt.

Im Rahmen der Entwicklung des Verbundwerkstoffes aus Biopolymergranulat und Geopolymerbinder wurden Versuche zur Kombination der Einzelkomponenten vorgenommen. Für die Werkstoffmodifikation wurde der Granulattyp ausgewählt, der die günstigste Eignung aufwies. Mit der optimierten Binderrezeptur konnte die Entwicklung eines Leichtbaustoffes durchgeführt werden, der das gesamte Spektrum der möglichen Gefügestrukturen vom matrixporosierten Schaummörtel über haufwerksporiges Gefüge bis zu Mörteln mit gefügedichter binderdominierter Struktur erreichte. Von entscheidender Bedeutung war die Ermittlung und Festlegung der notwendigen Randbedingungen für den Herstellungsprozess und den anschließenden Erhärtungsverlauf. Es zeigte sich, dass die chemische Modifikation des Geopolymerbinders durch Substitution eines

Inhaltsstoffes stark zur Verbesserung der Wasserstabilität des Kompositwerkstoffes beitrug.

Im Anschluss konnten für die entwickelten Baustofftypen, welche in ihrer Zusammensetzung hinsichtlich des Verhältnisses Bindemittel zu Biopolymergranulate variieren, eine Matrix sämtlicher ermittelter Eigenschaften:

- Rohdichte (von 0,68 bis 1,1 g/cm<sup>3</sup>),
- Druckfestigkeit (von 3,33 bis 14,5 N/mm<sup>2</sup>),
- Biegezugfestigkeit (von 1,4 bis 4,03 N/mm<sup>2</sup>),
- ausgewählter Wärmeleitfähigkeiten  $\lambda_{10, tr}$  (von 0,1231 bis 0,227 W/m\*K) und
- ausgewählter  $\mu$ -Werte der Wasserdampfdiffusion (von 8 bis 50) aufgestellt werden.

Weiterhin wurden die schalltechnischen Eigenschaften der Werkstoffmodifikationen untersucht. Der Einfluss der äußeren Vibrationsverdichtung auf die Werkstoffeigenschaften und die damit verbundenen Rückschlüsse auf einen möglichen Produktionsverfahrens-ablauf für Stein und Platten wurde untersucht.

Die Anwendung möglicher Verarbeitungstechniken zur Bearbeitung und Beschichtung von Plattenprobekörpern wurde ausführlich in Vorarbeiten theoretisch und anschließend praktisch durchgeführt. Zur Klassifizierung des Materials hinsichtlich ökologischer und wirtschaftlicher Gesichtspunkte/Kriterien erfolgten umfangreiche Betrachtungen.

Als Anwendungsgebiet für die Verbundwerkstoffmaterialien werden vorerst selbsttragende wärme- und schalldämmende Wandelemente/Wandplatten unterschiedlicher Formate für Industrie- und Wohnungsbau mit einer Eigenfestigkeit größer 2 MPa favorisiert. Grundlage hierfür sind die ermittelten niedrigen Rohdichten und eine geringe Wärmeleitfähigkeit einhergehend mit einer ausreichenden mechanischen Beständigkeit. Aufgrund des Baustoffgefüges, bestehend aus extrudierten Granulaten und Bindemittel sind schalldämmende Eigenschaften zu erwarten.

Ein weiteres Ergebnis der Entwicklung sind die erzielten bauklimatischen Eigenschaften der Verbundwerkstoffprüfkörper. Die ermittelten Werte für den Wasserdampfdiffusionswiderstand, das gute Wasserdampfspeichervermögen und die niedrigen Sorptionsfeuchten lassen bauklimatische Materialeigenschaften vergleichbar mit Lehmbaustoffen erwarten. Für einen Einsatz des Verbundwerkstoffes im Wohnbereich ist allerdings erforderlich die verfahrenstechnischen Parameter zur Herstellung feinteiliger und feinstrukturierterer Bauteile hin zu optimieren, um die Herstellung optisch anspruchsvollerer Produkte zu ermöglichen

Der Kompositwerkstoff erreicht die Feuerwiderstandsklasse B 1 (schwerentflammbar) nach DIN 4102 und ist damit mit anderen Produkten vergleichbar die pflanzliche Stoffe enthalten. Positiv wirkt sich hier ähnlich wie bei Gipsbaustoffen die im Bindergefüge chemisch gebundene Wassermenge aus. Als nachteilig wird bislang die in selbst durchgeführten Vorversuchen mangelnde Verdichtung des Verbundwerkstoffgefüges einhergehend mit Entmischungserscheinungen und optisch unzureichenden Bauteiloberflächen empfunden. Auf diesem Gebiet besteht besonderer Forschungsbedarf. Die Forschungspartner schätzen ein, dass ein marktfähiger Baustoff im Ergebnis des Vorhabens vorliegt. Auf Grund der Rohstoffkosten und der Verfahrenstechnik für die Herstellung entsprechender Bauprodukte kann davon ausgegangen werden, dass sich der neue Verbundwerkstoff im mittleren Drittel des Preissegments für Wandbaustoffe bewegen wird. Ähnlich wie bei bereits am Markt etablierten Baustoffen auf der Basis ökolo-

gisch unbedenklicher Materialien, wie beispielsweise Lehmprodukte, Wärmedämm-Schüttungen aus biopolymeren Granulaten, Holzfaserplatten, Strohplatten, Korkplatten lässt das ständig wachsende Umweltbewusstsein der Bevölkerung und der Planer eine Anwendung mit steigenden Wachstumsraten erwarten.