

## **Zur Verfestigung von Abfällen und den Prüfverfahren für verfestigte Abfälle**

**Reinhard Wienberg, Ulrich Förstner, Günther Hirschmann**

1.	Umfang der Regelungen in der TA Sonderabfall .....	1
2.	Zur Begriffsbestimmung .....	3
3.	Zu den Testverfahren für verfestigte Abfälle .....	5
3.1.	Festigkeit .....	5
3.2.	Ermittlung des Durchlässigkeitsbeiwertes .....	6
3.3.	Elutionstests .....	6
3.3.1.	Säulenelution in der Triaxialzelle .....	6
3.3.2.	Der DEV S4-Test, eine Alternative ? .....	9
3.3.3.	Exkurs: Elution mit zerkleinertem oder unzerkleinertem Material ? .....	10
3.3.4.	Weitere gebräuchliche Auslaugtests .....	11
3.3.5.	Diffusionstests .....	13
3.4.	Untersuchung der Bindungsformen der Schadstoffe .....	15
3.5.	Lösungs- und Ausfällungs- beziehungsweise Sorptions- und Desorptionsverhalten .....	16
4.	Anforderungen und notwendiger Untersuchungsaufwand für Verfestigungsverfahren .....	18
5.	Literatur .....	19

### **1. Umfang der Regelungen in der TA Sonderabfall**

Die Verfestigung als Abfallbehandlungsmethode ist in der TA Sonderabfall unter dem im Abschnitt 4.1 genannten Grundsatz zu betrachten: "Die Behandlung von Abfällen hat so zu erfolgen, daß schädliche und gefährliche Inhaltsstoffe in den Abfällen durch thermische, chemisch/physikalische oder biologische Behandlung nach Nr. 8 soweit zerstört, umgewandelt, abgetrennt, konzentriert oder immobilisiert werden, daß sie, soweit nicht verwertbar, ohne Beeinträchtigung des Wohls der Allgemeinheit abgelagert werden können. Dabei ist eine Volumenreduzierung anzustreben." (1). Unter diesem Grundsatz erscheint die Verfestigung von Sonderabfällen ambivalent: zum einen geht mit ihr regelmäßig eine Volumenvergrößerung vor sich, zum anderen versprechen aber mehrere Verfahren eine weitgehende Immobilisierung der Schadstoffe im Verfestigungsprodukt.

Bereits im folgenden Abschnitt 4.2, "Vermischungsverbot", wird geregelt, daß Abfälle, die abgelagert werden sollen, nur vermischt oder verfestigt werden dürfen, wenn jeder zu vermischende oder verfestigende Abfall und der Abfall nach Vermischung oder Verfestigung die Anforderungen nach Nr. 4.4.3.1 erfüllt, d.h. wenn sämtliche Zuordnungswerte aus Anhang D eingehalten werden (Tabelle 1). Bei nicht ausreichender Festigkeit ist eine Verfestigung zur Einhaltung des Zuordnungswertes D1 (Flügelscherfestigkeit > 25 kN/m<sup>2</sup>) zulässig.

**Tabelle 1:**

Anhang D der TA Sonderabfall. Zuordnungskriterien. Bei der Zuordnung von Abfällen zur oberirdischen Ablagerung sind folgende Zuordnungswerte einzuhalten:

Nr	Parameter*	Zuordnungswert		
D1	Festigkeit**			
D1.01	Flügelscherfestigkeit	>	25	kN/m <sup>2</sup>
D1.02	Axiale Verformung	<	2	%
D1.03	Bruchfestigkeit (Fließwert)	>	50	kN/m <sup>2</sup>
D2	Glühverlust des Trockenrückstandes der Originalsubstanz	<	10	Gew.-%
D3	Extrahierbare lipophile Stoffe	<	4	Gew.-%
D4	Eluatkriterien			
D4.01	pH-Wert		4 - 13	
D4.02	Leitfähigkeit	<	100 000	µS/cm
D4.03	TOC	<	200	mg/l
D4.04	Phenole	<	100	mg/l
D4.05	Arsen	<	1	mg/l
D4.06	Blei	<	2	mg/l
D4.07	Cadmium	<	0,5	mg/l
D4.08	Chrom-VI	<	0,5	mg/l
D4.09	Kupfer	<	10	mg/l
D4.10	Nickel	<	2	mg/l
D4.11	Quecksilber	<	0,1	mg/l
D4.12	Zink	<	10	mg/l
D4.13	Fluorid	<	50	mg/l
D4.14	Ammonium	<	1 000	mg/l
D4.15	Chlorid	<	6 000	mg/l
D4.16	Cyanide, leicht freisetzbar	<	1	mg/l
D4.17	Sulfat	<	5 000	mg/l
D4.18	Nitrit	<	30	mg/l
D4.19	AOX	<	3	mg/l
D4.20	Wasserlöslicher Anteil	<	10	Gew.-%

\* Analysenvorschriften siehe Anhang B

\*\* D1.01 ist maßgebend, D1.02 kann gemeinsam mit D1.03 als Alternativnachweis erbracht werden.

Bisheriges Fazit: Die Verfestigung im engsten Sinne des Wortes wird ausdrücklich zugelassen. Andererseits wird die Verfestigung von solchen Abfällen ausgeschlossen, die im unverfestigten Zustand die übrigen Zuordnungskriterien nach Anhang D nicht einhalten. Dies gilt auch dann, wenn die Verfestigung mit dem Ziel erfolgt, daß - auch langfristig - die Schadstoffe so eingebunden werden sollen, daß "eine Ablagerung ohne Beeinträchtigung des Wohls der Allgemeinheit" möglich wäre. Dies wird lediglich für eine Übergangsfrist von 4 Jahren erlaubt; im Anhang H sind dazu "Eignungsprüfungen für verfestigte Abfälle" angegeben.

Der Anhang H sieht - neben der Zahl, Herstellung und Lagerung der Probekörper - folgende Prüfverfahren vor:

- die Festigkeit wird zum einen an Hand der Zerfallsziffer nach Endell (2) an 28 Tagen alten Proben ermittelt. Sie darf einen Wert von 2 % nicht überschreiten. Zum anderen soll die uniaxiale Druckfestigkeit in Anlehnung an DIN 18 136 bei 14, 28 und 56 Tage gelagerten Proben mindestens 1 MN/m<sup>2</sup> betragen.
- Die Durchlässigkeit wird in Anlehnung an DIN 18 130 Teil 1 bei einem hydraulischen Gradient von  $i = 50$  in der Triaxialzelle gemessen. Bei Versuchsende muß ein Durchlässigkeitsbeiwert von  $k \frac{3}{4} \times 10^{-9}$  m/s erreicht werden. Im Prüfzeitraum darf der Durchlässigkeitsbeiwert nur konstante oder fallende Tendenz aufweisen.
- Das Auslagverhalten soll durch Analyse derjenigen Eluate ermittelt werden, die beim Durchlässigkeitsversuch anfallen. Zusätzlich ist ein Eluat vom unverfestigten Abfall herzustellen und zu analysieren. Die Werte "sind miteinander zu vergleichen".

## 2. Zur Begriffsbestimmung

In der TA Sonderabfall finden sich in 2.2.1 eine Reihe von Begriffsbestimmungen; allerdings wurde darauf verzichtet, auch Bestimmungen für die in der TA Sonderabfall an verschiedener Stelle verwandten Begriffe "Verfestigung" und "Immobilisierung" zu geben. Wir sind überzeugt, daß die Unbestimmtheit der Begriffsdefinitionen zu unterschiedlichen Auffassungen über die Anforderungen an die Verfestigung führen muß; der Widerspruch entsteht auch schon bereits daraus, daß der Eindruck entsteht, daß diese Begriffe erst über die Testverfahren definiert werden sollen.

In der Literatur findet man die Begriffe Verfestigung, Konditionierung, (Mikro- und Makro-) Einkapselung, Stabilisierung, Einbindung, Fixierung und Immobilisierung, wobei eine Begriffsabgrenzung selten erfolgt; dies ist jedoch insbesondere dann erforderlich, wenn - wie in der TA Sonderabfall vorgesehen - die Behandlung durch Verfestigung einschließlich der dazugehörigen Test- und Bewertungsverfahren gesetzlich geregelt werden soll.

Die amerikanische Umweltbehörde US EPA definiert in ihrem "Handbuch der Stabilisierung/Verfestigung gefährlicher Abfälle" (3) diese beiden Begriffe ("Stabilization/Solidification", abgekürzt als "S/S techniques") gemeinsam als Abfallbehandlungsverfahren, die folgende Ziele haben:

- a) die Handhabbarkeit und die physikalischen Eigenschaften zu verbessern, z.B. durch die Sorption freier Flüssigkeiten;
- b) die freie Oberfläche des Abfalls, durch die ein Schadstofftransport oder -verlust auftreten kann, zu verringern, und
- c) die Löslichkeit gefährlicher Abfallinhaltsstoffe z.B. durch eine pH-Einstellung oder durch Sorptionsprozesse zu begrenzen.

Wir gehen davon aus, daß der Begriff Verfestigung durch die o.g. Ziele der US EPA 1. und 2. in etwa erfaßt wird: er beschreibt einen Prozeß, bei dem ein Bindemittel dem Abfallmaterial zugemischt wird, um ein mechanisch festes Produkt zu erhalten. Die zugehörigen Untersuchungsmethoden entstammen zumeist der Bodenmechanik und Bauphysik (Festigkeit, Durchlässigkeit, Temperatur- und Feuchtebeständigkeit usw.). Zusammen mit seiner technischen Umsetzung beschreibt dieser Begriff überwiegend eine Methode der Abfallbehandlung.

Im Gegensatz dazu betrifft der Begriff Stabilisierung das auf die Schadkomponenten bezogene Ziel der Verfestigung, das Abfallmaterial in eine stabilere chemische Form umzuwandeln und die Löslichkeit der Inhaltsstoffe zu begrenzen, z.B. durch Sorption oder pH-Einstellung (siehe EPA Ziel 3.) oder durch die Veränderung chemischer Bindungsformen. Der Grad der Stabilisierung wird durch Elutionstests, durch Sorptions-, Diffusions- und Verflüchtigungsuntersuchungen ermittelt. Im günstigsten Fall bewirkt die Stabilisierung durch ein Verfestigungsverfahren eine Immobilisierung; der Schadstofftransport über eine Abfalloberfläche wird unterbunden, zumindest aber minimiert.

Der Begriff Einbindung schließlich beschreibt die wirkenden Mechanismen für die Stabilisierung bzw. die Immobilisierung. Die Art der Einbindung wird durch spezielle physikalische (elektronenoptische oder röntgenographische) oder chemische Verfahren (bei Schwermetallen z.B. durch phasenspezifische sequentielle Extraktionen) ermittelt. Hinweise auf Mechanismen ergeben auch konsekutive Desorptionsversuche und weitergehende physikalisch-chemische Untersuchungen, z.B. Bestimmung der Bindungsenthalpien.

### 3. Zu den Testverfahren für verfestigte Abfälle

#### 3.1. Festigkeit

Wie fest ist wirklich fest? Durch die vorgeschlagenen Testverfahren und -Kriterien wird lediglich die Herstellung monolithischer Körper als Verfestigung akzeptiert. Im Gegensatz dazu gibt es allerdings eine Reihe von Verfahren, die das Material zu einer Art Lockergestein (erdähnlich) verfestigen.

Hohe Festigkeitsanforderungen werden scheinbar durch Erfahrungen gestützt; häufig ist es zu beobachten, daß Verfestigungsprodukte mit geringen Festigkeiten auch in anderer Hinsicht, z.B. in Durchlässigkeit und Eluierbarkeit sehr schlechte Ergebnisse zeigen. Auch Erfahrungen aus anderen Ländern mit stationären Anlagen geben zu Skepsis Anlaß: in England sind z.B. zur Zeit beide betriebenen stationären Anlagen auf behördliche Anordnung mit Ablagerungsverboten belegt. In einem der beiden Fälle lagern in ehemaligen Tongruben mehr als 1 Mio Mg Abfall-Bindergemische, die zum großen Teil nicht fest geworden sind. Allerdings ist trotz solcher Erfahrungen festzustellen, daß es keine automatische Kopplung von solchen Größen wie Festigkeit und (geringer) Auslaugbarkeit gibt.

Vorausgesetzt, das verfestigte Material besitzt eine hohe Undurchlässigkeit - z.B. zu erreichen durch eine Körnigkeit, die dem Fuller-Prinzip folgt - und eine geringe Eluierbarkeit, so kann man bei erdähnlichem Material eine Reihe von Vorteilen sehen, die den Nachteil erheblich geringerer Festigkeit aufwiegen. Durch seine Dauerplastizität könnte es Setzungen in der Ablagerung besser folgen. Die Gefahr der Riß- und Kluftbildung wäre somit geringer, die Systemundurchlässigkeit als Folge besser. U.U. kann bei starken Setzungsrissen eine "Selbstheilung" eines derart dauerplastischen Materials erfolgen. Schließlich sehen wir eine Reihe von Vorteilen beim Transport eines nicht monolithischen Körpers, der es erleichtern dürfte, mit dem Abfallbehandlungsverfahren bis an die Quelle (Abfallerzeuger) zu gehen, was eine gezielte Behandlung vereinfacht. Daraus ergeben sich folgende Konsequenzen:

- Die Zerfallsziffer ist als Beurteilungskriterium für Verfestigungsprodukte ungeeignet. Ein derartiges Kriterium würde die erdähnlichen Verfestigungsprodukte herausfallen lassen, was nicht gerechtfertigt ist. Außerdem ist uns unklar, in welchem Zusammenhang diese Größe mit den spezifischen Ablagerungsbedingungen steht.
- Für erdähnliches, nicht monolithisches Material ist die Bestimmung der uniaxialen Druckfestigkeit die falsche Größe; Selbst für bindiges Material scheint sie mit  $1 \text{ MN/m}^2$  zu hoch angesetzt und im Hinblick auf eine Ablagerung auf einer oberirdischen Deponie nicht begründet. Im Vergleich dazu wird für entwässerten Klär-

schlamm nach (4) auf der Deponie eine Flügelscherfestigkeit von ca. 20 kN/m<sup>2</sup> angesetzt. Die TA Sonderabfall sieht ja auch für nicht verfestigte Abfälle als Zuordnungskriterium für die oberirdische Ablagerung in D1.01 eine Flügelscherfestigkeit von 25 kN/m<sup>2</sup>, also einen Wert in der gleichen Größenordnung, vor. In 4.4.3.1 heißt es: "Bei nicht ausreichender Festigkeit (Zuordnungswert D1 des Anhangs D, siehe Tabelle 1) ist eine Verfestigung zur Einhaltung dieses Zuordnungswertes zulässig." Hier sollte die TA Abfall bezüglich der Festigkeitsanforderungen an verfestigten und unverfestigten Abfall in sich konsistent bleiben.

### **3.2. Ermittlung des Durchlässigkeitsbeiwertes**

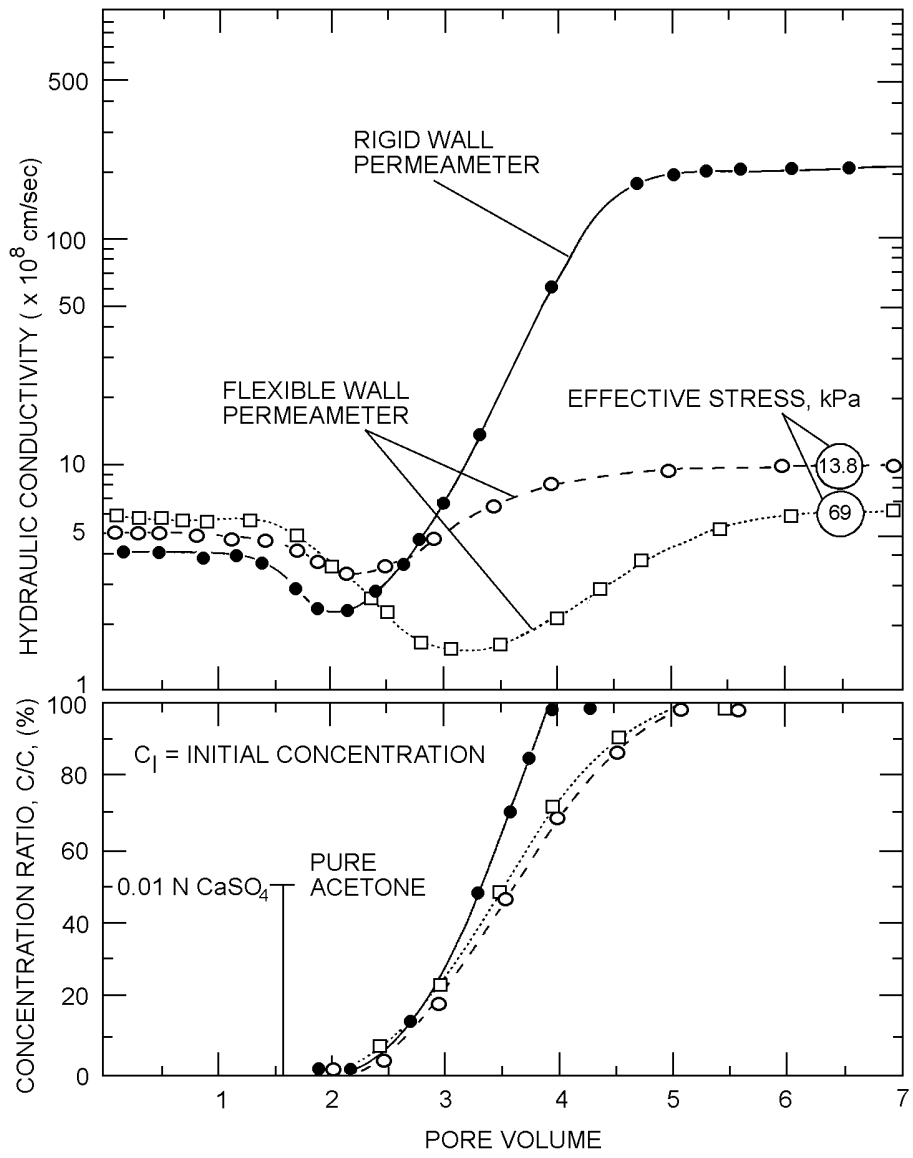
Die Triaxialzelle hat gegenüber Festbettdurchlässigkeitszellen den Vorteil, daß die Körperwandung Volumenänderungen des Materials folgt, und dadurch Rand- oder Kluftwegsamkeiten durch Schrumpfrisse weitgehend ausgeschaltet werden. Dies ist bei dauerplastischen Materialien auch sinnvoll, bei monolithischen Körpern könnten die Messungen auf zu geringe Systemdurchlässigkeiten schließen lassen, wenn tatsächlich der Wassertransport über Risse und Klüfte erfolgen würde. Das Material würde also mit diesem Verfahren als zu günstig beurteilt werden.

Vergleichende Untersuchungen mit verschiedenen Durchflußmeßzellen wurden vor allem im Zusammenhang mit der Untersuchung des Einflusses von Schadstoffen auf die Durchlässigkeit von Tonen durchgeführt (5). Wie Bild 1 zeigt, ist bei Durchströmung von Kaolinit mit Aceton bei Verwendung einer Festbettzelle eine Zunahme der Durchlässigkeit um fast zwei Zehnerpotenzen festzustellen; beim Einsatz einer Triaxialzelle sind die Durchlässigkeiten höchstens geringfügig erhöht (6). Ideal wäre u.E. eine Durchlässigkeitsuntersuchung sowohl mit Triaxialzellen als auch mit Festbettzellen. Zumindest aber wäre Quellen bzw. Schrumpfen unter deponierelevanten Bedingungen (Wassersättigung oder Teilaustrocknung) sorgfältig zu ermitteln.

### **3.3 Elutionstests**

#### **3.3.1 Säulenelution in der Triaxialzelle**

Bei dem in der TA Sonderabfall vorgesehenen Elutionstest scheint der Wunsch im Vordergrund gestanden zu haben, angesichts des Charakters dieser Regelung als rel. kurzfristige Übergangslösung den Aufwand zu minimieren, ansonsten erscheint es uns unverständlich, daß hier ein neues, wenig erprobtes Verfahren gewählt wurde. Folgende Einwendungen machen wir geltend:



**Bild 1**

Durchlässigkeit und Durchbruchkurven von einem mit Aceton durchstromten kaolinit bei Verwendung einer Festbettzelle und einer Triaxial-Durchlässigkeitsmeßzelle, aus: (6)

- Wird überhaupt genügend Eluat produziert? Bei Durchlässigkeiten um  $10^{-9}$  m/s und darunter werden auch nur in langen Zeiträumen geringe Eluatmengen abgegeben und eine Analyse dieser Eluate ist kaum möglich.
- Der Vergleich mit dem Eluat des unverfestigten Abfalls gibt einige Rätsel auf: wie soll dieses Eluat gewonnen werden? Nach welchen Kriterien ist zu vergleichen? Welche Folgerungen sind zu ziehen?
- Bei der Säulenelution ist zunächst zu erwarten, daß die Porenlösung mitsamt den am leichtesten löslichen Stoffen durch das nachströmende Wasser ersetzt wird, wobei die chemischen Verhältnisse, die die Konzentrationen in der Lösungsphase kontrollieren, nachhaltig verändert werden. Dies gilt im besonderen Maße für die Ionenstärke und das pH der Lösung, beides "Meisterfaktoren", die, insbesondere bei Schwermetallen und Metalloiden, je nach Species, zu erhöhter oder erniedrigter Konzentration führen müssen. Eine sinnvolle Aussage scheint u.E. nur in Kombination mit anderen Versuchen und bilanzierenden Untersuchungen und Analysen möglich. Das Ziel, mit einer einfachen und schnellen Methode eine Abschätzung der Schadstoffeinbindung zu ermöglichen, läßt diese Methode jedenfalls nicht zu.

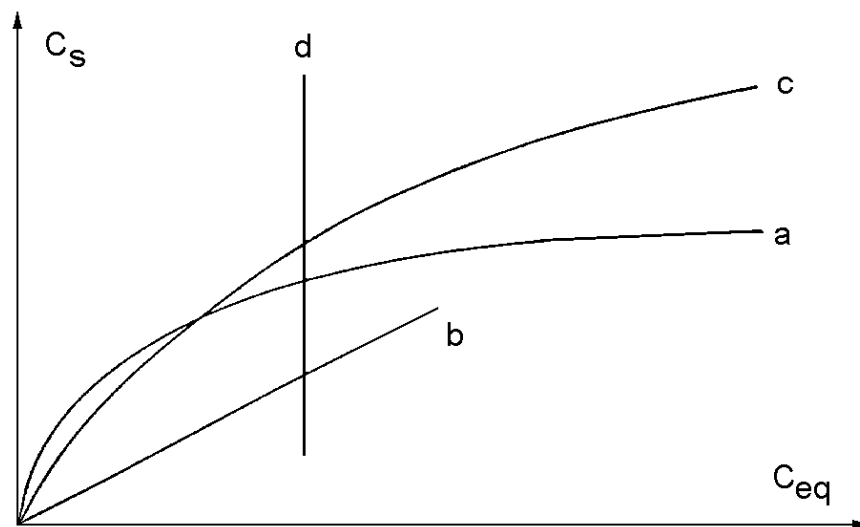


Bild 2

- a: Sorptionsisotherme nach Langmuir; b: konstante Verteilung oder lineare Sorption;  
 c: Sorptionsisotherme nach Freundlich; d: Fällungs/Auflösungsbezeichnung;  
 $C_{eq}$ : Konzentration in der Gleichgewichtslösung;  $C_s$ : Konzentration im Feststoff

### 3.3.2 Der DEV S4-Test, eine Alternative ?

Als Alternative oder Ergänzung war auch der Elutionstest nach DEV S4 im Gespräch. Der deutsche Auslaugtest DEV S4 (DIN 38 414 Teil S4) ist ein konventionelles Verfahren; physikalisch-chemisch stellt er einen unkontrollierten Diffusionstest mit Sorptions- und Sättigungsanteilen dar; eine auf der Kenntnis von ablaufenden Prozessen beruhende Langzeitabschätzung der Mobilität von Schadkomponenten ist nicht möglich. Als alleiniger Test ist er nicht geeignet, Aussagen über die "Immobilisierung" zu machen. Von daher kann auch das Argument der Schnelligkeit, Einfachheit und Praktikabilität nicht überzeugen. Andererseits sollte er als konventionelles Verfahren - dann aber wirklich in seiner DIN gemäßen Form, also mit Zerkleinerung des Materials - mit eingesetzt werden.

Die Grundsatzkritik am DEV S4-Test soll anhand der ablaufenden Feststoff-Lösungs-Interaktionen beispielhaft aufgezeigt werden. Die wichtigsten ablaufenden Prozesse, Lösung/Fällung, Verteilung und Sorption/Desorption sind in Bild 2 schematisch als Lösungs/Feststoff-Beziehung dargestellt. Es lassen sich folgende Fälle unterscheiden:

- Im einfachsten Fall handelt es sich bei den Schadstoffen um leicht wasserlösliche Substanzen wie z.B. Kochsalz. Hier ist zu erwarten, daß die Lösungskonzentration proportional der Feststoffkonzentration ist (Fall b). In diesem Fall ist der DEV Test ein geeignetes Verfahren. Der Fall b ergibt sich ebenfalls bei Verteilungen zwischen zwei nicht mischbaren Flüssigkeiten (z.B. ein an ein Feststoff gebundenes Öl und Wasser) und wurde auch von (7) in vielen Fällen bei der Sorption/Desorption organischer Schadstoffe an Verfestigungsmaterialien beobachtet. Der letzte Fall setzt insbesondere bei sehr sorptiven Stoffen sorgfältiges Experimentieren voraus, sämtliche benutzten Gefäße sind so zu wählen, daß keine Adsorption an den Gefäßwandungen bzw. am Filter beim Filtrieren der Lösung die Ergebnisse verfälscht.
- Der Fall c stellt die Freundlich-Isotherme dar; rechnerisch gilt folgender Zusammenhang:

$$C_s = K_f C_{eq}^{1/n}$$

mit  $K_f$  und  $1/n$  als sog. Freundlich-Konstanten. Dieses Sorptionsverhalten findet sich häufig dann, wenn in die Untersuchung auch relativ hohe Konzentrationen einbezogen werden. Mit zunehmender Konzentration in den Verfestigungsprodukten nehmen also die Eluatkonzentrationen exponentiell stark zu; da in diesem Fall geringe Unterschiede in der Feststoffkonzentration zu sehr großen Unterschieden in der Lösung führen, ist eine reproduzierbare und representative Überprüfung im DEV S4 Versuch kaum möglich.

- Im sehr viel stärkerem Maße gilt dies noch im Fall a (Langmuir-Isotherme). Diese Feststoff/Lösungs-Beziehung findet sich vor allem dann, wenn die Zahl der Bindungsplätze begrenzt ist, und darüber hinaus keine Bindung erfolgt. Sie ist z.B. typisch für die Sorption durch Kationenaustausch; ist die Kationenaustauschkapazität erschöpft, findet keine weitere Sorption statt. Mit steigender Konzentration nähert sich die feststoffgebundene Fraktion asymptotisch einem Plateaubereich, der maximal möglichen Bindung. Wenn im Plateaubereich eluiert wird, wird man keine reproduzierbaren Werte erwarten können; die Anwendung des DEV S4-Tests produziert hier lediglich Unsinn.
- Die Anwendung zementöser Binder führt in der Regel zu hohen pH-Werten in der Lösung. Schwermetalle liegen hier meist als schwerlösliche Hydroxide (aber in einigen Fällen auch bereits wieder als relativ mobile Hydroxokomplexe) vor. Bei solchen schwerlöslichen Stoffen bestimmt ausschließlich die in Fall d gezeigte Lösungs/Fällungs-Beziehung die Eluatkonzentration, d.h. diese ist unabhängig von der Konzentration der Schadstoffe im Verfestigungsprodukt. Eine Abschätzung eines Langzeit-Gefährdungspotentials durch Schwermetalle ist in diesem Fall durch den DEV S4-Test nicht möglich.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß nur in einem einzigen Fall (Fall b) das DEV S4-Verfahren zuverlässige Aussagen über das Gefährdungspotential zuläßt. Erschwerend kommt hinzu, daß auf der Grundlage dieses Verfahrens keine Aussage darüber, welcher der genannten Wechselwirkungstypen nun vorliegt, möglich ist. Dazu ist die Kenntnis der Chemie der einzelnen Schadstoffe bzw. sind weitergehende Untersuchungen zum Verhalten der Schadstoffe erforderlich.

### 3.3.3. Exkurs: Elution mit zerkleinertem oder unzerkleinertem Material ?

Der DEV S4 Test (DIN 38 414 Teil S4) sieht eine Zerkleinerung des Materials vor. Andererseits ist in der LAGA-Richtlinie EW/77 vorgesehen mit unzerkleinertem Material zu arbeiten (8). Dies führte zum Vorschlag von (9), mit einem Probekörper der gleichen Abmessungen, wie in der TA Sonderabfall vorgesehen, in 2 l demineralisiertem Wasser unter vorsichtigem Rühren zu eluieren. In diesem Zusammenhang wurde argumentiert, daß es nicht sinnvoll sei, mit hohem Aufwand ein mechanisch stabiles Produkt herzustellen, um es in einem praxisfernen Test zerkleinert zu prüfen.

Dieses Argument beruht auf einem sehr grundsätzlichen Mißverständnis: der DEV S4-Test ist - in welcher Form auch immer - weit von den Vorgängen in der Deponie entfernt. Er wurde weder als "Auslaugmodell" für die Abschätzung des Langzeitverhaltens von Schadstoffen in der Deponie entwickelt, noch ist er dazu geeignet.

Dieses Mißverständnis verkennt den Charakter von wissenschaftlichen Modellen; nicht das Modell, welches die "Natur" möglichst weitgehend nachbildet, ergibt die besten Ergebnisse, im Gegenteil, es reproduziert mit zunehmender Annäherung die Rätsel der Natur. Im Gegensatz dazu reduziert ein gutes Modell die Natur bis auf die relevantesten Randbedingungen, um zu ermöglichen, auf eine gezielte Frage eine hinreichend genaue und zuverlässige Antwort zu erhalten.

Mit den Versuchsanordnungen "zerkleinert" oder "monolith" sind zwei ganz unterschiedliche Einzelfragen verbunden. Die übergeordnete Frage nach dem Schadstofftransport aus dem verfestigten Material in die umgebene Umwelt läßt sich auflösen entsprechend den wirkenden Mechanismen, und diese sind im wesentlichen:

- die Retardation der Schadstoffe beim konvektiven Transport durch Lösung/Fällung bzw. Sorption/Desorption und
- der diffusive Stofftransport.

Beide Mechanismen sind miteinander verknüpft; in der Porenlösung kann nur das diffusiv transportiert werden, was nicht sorbiert oder gefällt vorliegt. Der Zusammenhang lautet im einfachsten Fall (Bild 2, Fall b):

$$D_{ef} = \frac{D_o \cdot \Theta \cdot \tau}{(\rho \cdot K_p) - \Theta}$$

mit  $D_{ef}$  als effektivem Diffusionskoeffizienten,  $D_o$  als Diffusionskoeffizient der Substanz in reinem Wasser,  $\Theta$  als Porosität,  $\rho$  als Schüttdichte und  $\tau$  als Impedanzfaktor (im wesentlichen Tortuosität = "Umwegfaktor") sowie  $K_p$  als linearem Verteilungskoeffizienten.

Die Erfassung der beiden Faktoren erfordert aber zwei getrennte Versuchsanordnungen. Im ersten Fall (Retardation durch Lösung/Fällung bzw. Sorption/Desorption) wird man das Material so weit zerkleinern müssen, daß diffusive Wirkungen im Ergebnis nur eine irrelevante Rolle spielen. Im zweiten Fall wird man die Diffusion über die Oberfläche integrierender Probekörper erfassen wollen. Beide Versuchsanordnungen sind also zur Abschätzung des Langzeittransportes von Schadstoffen aus verfestigtem Material erforderlich.

#### 3.3.4. Weitere gebräuchliche Auslaugtests

Sowohl für Verfestigungsprodukte als auch für andere Abfälle existieren eine Reihe von Elutionsverfahren, die sich grundsätzlich folgendermaßen systematisieren lassen (10):

Statische Tests (Gleichgewichtstests):

- Schütteltest

- Standtest
- Sequentielle Extraktion

Dynamische Tests (Lösungserneuerung):

- Flaschentest (batch-test)
  - a) geschüttelt
  - b) nicht geschüttelt (Diffusionstest)
- Säulentest/ Lysimetertest

Sonstige Tests:

- Soxhlet-Extraktion
- Sättigungstest (Feststofferneuerung)

Für verfestigte und nicht-verfestigte Abfälle wurden in der Vergangenheit eine Vielzahl von verschiedensten Elutionsverfahren entwickelt. Eine gewisse Vereinheitlichung hat erst in jüngerer Zeit durch intensive vergleichende Untersuchungen, gefördert durch die amerikanische Umweltbehörde (11), stattgefunden.

Ham et al. (12) entwickelten im Auftrag der US EPA den sogenannten Wisconsin-Test (auch Kaskadenschütteltest, "standard leaching test") für Abfälle, die auf Hausmülldeponien zur Ablagerung kommen. Innerhalb dieses Verfahrens wird der zu prüfende Abfall sowohl einem dynamischen Flaschentest als auch einem Sättigungstest unterzogen. Als Auslaugflüssigkeit kam unter anderem auch ein zu diesem Zweck entwickeltes synthetisches Sickerwasser zum Einsatz, das das Sickerwasser einer jungen anaeroben Deponie (saure Phase) simulieren sollte. Die Instabilität, zu große Komplexierungskapazität und die Toxizität dieser Sickerwasserrezeptur führte allerdings dazu, daß die US EPA diesen Test nicht akzeptierte (11). Stattdessen wurde seit 1980 von der US EPA der Toxizitätsauslaugtest (EP-Test) (13) vorgeschrieben, bei dem der Abfall innerhalb eines statischen Schütteltests mit Essigsäure bei pH 5 ausgelaugt wird. Die Probe durfte nur dann als monolithischer Körper ausgelaugt werden, wenn sie zuvor einer Festigkeitsprüfung standgehalten hat; ansonsten erfolgte die Zerkleinerung. Im Eluat wurde dann die Bestimmung der Konzentration von 14 Schadstoffen vorgenommen. Der EP-Test wird durch den seit 1986 existierenden TCLP-Test ("toxicity characterizing leaching procedure") ersetzt (11). Der TCLP-Test unterscheidet sich von dem EP-Test insofern, als daß grundsätzlich zerkleinerte Abfallmaterialien durch eine saure Auslaugflüssigkeit, deren pH sich nach der Alkalinität der Abfallprobe richtet, eluiert werden. Außerdem erfolgte eine Erweiterung der im Eluat zu überprüfenden Schwermetalle bzw. organischen Verbindungen auf 52 Schadstoffe, deren Bewertungskriterien sich bei organischen Schadstoffen nicht nur auf Grenzwerte sondern zusätzlich auch auf toxikologische Daten stützen. Flüchtige Schadstoffe können durch die Verwendung einer Head Space-Einrichtung erfaßt werden.

Daneben existieren in den USA zwar noch mehrere andere Auslaugtests, die sich aber gegen den TCLP-Test nicht durchsetzen konnten.

Während beim amerikanischen Auslaugtest mit Essigsäure angesäuert wird, um somit den ungünstigsten Fall eines "Codisposal" mit hausmüllartigen Abfällen nachzubilden, geht die Schweiz nach (14) von der Deponie als Endlager ohne Kontakt zu biologisch aktivem Material aus. Zur Simulation von Langzeiteffekten wird das Elutionswasser kontinuierlich mit Kohlensäure angesäuert.

In den Niederlanden wurde in der Netherlands Energy Research Foundation (Energie Onderzoek Centrum Nederland (ECN), Petten) ein Auslaugverfahren für Kohleverbrennungsrückstände entwickelt (SOSUV-Test nach Studiegroep Ontwikkeling Standard Uitloogtesten Verbrandingsresiduen) (15), das aber auch auf andere Abfallmaterialien anwendbar ist. Es handelt sich dabei um einen Säulentest, der mit einem fünfstufigen dynamischen Flaschentest kombiniert ist.

### 3.3.5. Diffusionstests

Auf dem Gebiet der Abfallverfestigung wurden speziell für Verfestigungsprodukte radioaktiver Abfälle Elutionstests in Form von Diffusionstests entwickelt, die aber auch auf andere Verfestigungsprodukte angewandt werden. Dazu gehören der IAEA-Test (International Atomic Energy Agency) (16), der aus dem IAEA-Test hervorgegangene ANS-16.1 Test (American Nuclear Society) (17), der "dynamic leaching" Test (18), der ULP-Test ("uniform leach procedure") (19) und die verschiedenen MCC-Tests (Material Characterization Center) (20). Sämtliche Diffusionstests unterscheiden sich nur geringfügig untereinander, mit Ausnahme der MCC-Tests, die einen statischen Test ohne Erneuerung der Auslaugflüssigkeit repräsentieren. In allen Fällen werden die effektiven Diffusionskoeffizienten der eingesetzten Schadstoffe ermittelt. Eine Übersicht über Diffusionstests und Möglichkeiten der mathematischen Modellierung gab der Kongreß der American Chemical Society in Dallas vom 9.-14. April 1989. In mehr als 20 Arbeiten wurde über die Anwendung der verschiedenen Verfahren berichtet, wobei sich der ANS-16.1 Test als die am gründlichsten evaluierte Methode erwies. Dabei wird ein integrierender Probekörper in einer definierten Wassermenge gelagert (die Wassermenge in ml soll 10 mal so groß sein, wie die Oberfläche des Probekörpers in  $\text{cm}^2$ ). Das Wasser wird nach folgendem Zeitschema gegen unbelastetes ausgetauscht: 2h; 5h; 16h; 24h; 24h; 24h; 3 Tage; 3 Tage; 3 Tage und jeweils die Schadstoffkonzentration im Wasser ermittelt; die rechnerische Auswertung ergibt den "effektiven Diffusionskoeffizienten", eine chemisch-physikalische Größe, die von der Feststoffstruktur- und Zusammensetzung sowie der Diffusivität der Chemikalie im Wasser abhängt. Diese Größe ist neben den Sorptionskoeffizienten Eingangsgröße für die rechnerische Modellierung von Langzeit-Schadstoffströmen. Der Quotient aus dem effektiven Diffusionskoeffizienten  $D_{\text{eff}}$  und dem Diffusionskoeffizienten bei  $20^\circ \text{C}$  in reinem Wasser,  $D_0$ , ergibt den Auslaugfaktor LF.

Beim ANS-16.1 wird mit integren Probekörpern gearbeitet, bei erdähnlichem Material ist er nicht anwendbar. Daher wurde der Test - in Anlehnung an seine ursprüngliche Form (16) - bei unseren eigenen Untersuchungen (7) so abgewandelt, daß das Material in mehreren Schichten unter leichter Verdichtung in ein Glasgefäß ( $\bar{Y} = 5,7$  cm,  $h = 3,5$  cm) bis zum Rand gefüllt wurde und mit einer grobporigen Glasfritte abgedeckt wurde. Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist dabei der diffusive Transport über die Oberfläche des Verfestigungsproduktes; der Ausgleich Glasfritte/Wasser erfolgt im Vergleich dazu um mehrer Zehnerpotenzen schneller.

Van der Sloot et al. haben zwei Verfahren für die Elution von Verfestigungsprodukten vorgeschlagen. Bei dem sogenannten "tank leaching"-Verfahren handelt es sich um einen Diffusionstest, der sowohl eine statische als auch eine dynamische Auslaugung je nach Fragestellung ermöglicht (21-23). Eine Unterscheidung des effektiven Diffusionskoeffizienten für die verschiedenen Formen eines Schadstoffes (z.B. Metallspezies) erlaubt das zweite Verfahren, auch als Röhrenverfahren bezeichnet (23-25). Damit können auch Materialien untersucht werden, die lockergesteinsähnliche Eigenschaften aufweisen.

#### **4.1. Untersuchungen der Bindungsformen der Schadstoffe**

Zur Beurteilung des Langzeitverhaltens verfestigter Schadstoffe sind insbesondere Aussagen über die Bindungsformen der Schadstoffe erforderlich.

Die Art der Einbindung wird durch spezielle physikalische (elektronenoptische oder röntgenographische (7)) oder chemische Verfahren (bei Schwermetallen z.B. durch sequentielle Extraktionen) ermittelt. Hinweise auf Mechanismen ergeben auch konsequente Desorptionsversuche und weitergehende physikalisch-chemische Untersuchungen, z.B. Bestimmung der Bindungsenthalpien.

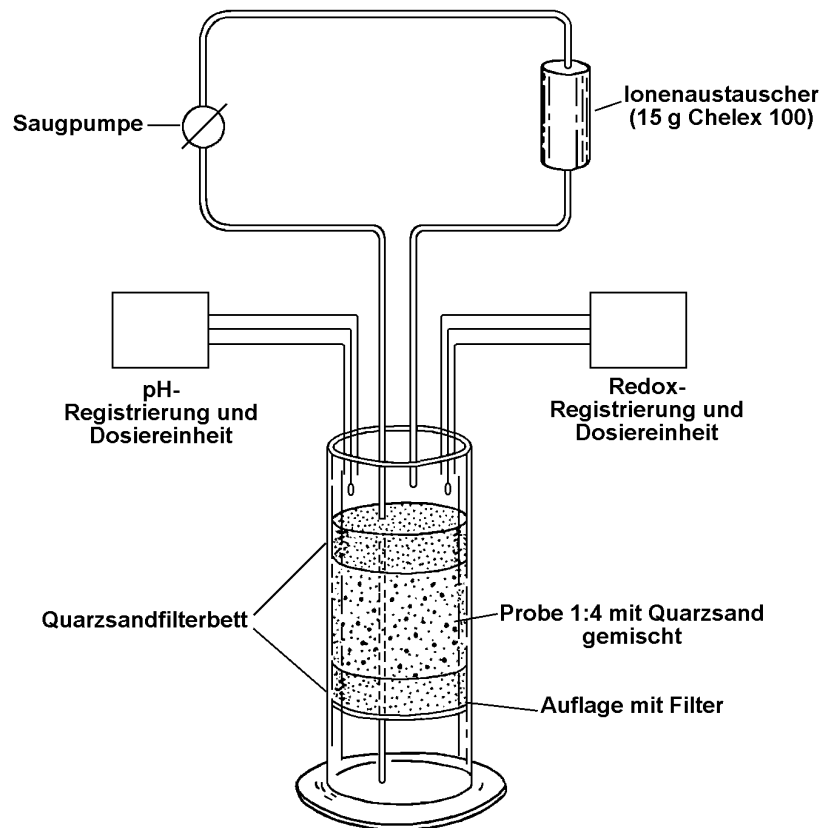
Das Umweltverhalten von Schwermetallen in festen Abfallstoffen läßt sich durch sequentielle Extraktionen zur Ermittlung der Anteile typischer Bindungsformen besser charakterisieren als durch die Gesamtkonzentration des betreffenden Elementes. Der unbestrittene Vorteil dieses Ansatzes für die Abschätzung von Langzeiteffekten besteht darin, daß nicht nur aus der Löslichkeit einzelner Substanzen, sondern auch bereits aus Verschiebungen innerhalb des Spektrums an Bindungsformen vor und nach der Anwendung der einzelnen Reagenzien bestimmte Trends zu einer verstärkten oder geschwächten Einbindung des Schadstoffs in seine Matrix erkennbar sind (26).

Eine gebräuchliche sechsstufige Extraktionssequenz für die Bestimmung von Bindungsform der Schwermetalle - auch in Verfestigungsmaterialien - ist die nach Tessier et al. (27):

1. Austauschbare Kationen:  
1 M Ammoniumacetat, pH 7, Feststoff : Lösung = 1:20, 12 Std. Schüttelzeit
2. Karbonatische Bindungsformen:  
1 M Natriumacetat, pH 5, Feststoff : Lösung = 1:20, 5 Std., 20°C
3. Leicht reduzierbare Phasen (z.B. Manganoxide):  
0,1 M Hydroxylaminhydrochlorid + 0,01 M HNO<sub>3</sub>, pH 2, Feststoff : Lösung = 1:100, 12 Std.
4. Mäßig reduzierbare Phasen (z.B. amorphe Fe-Oxidhydrate):  
0,2 M Ammoniumoxalat + 0,2 M Oxalsäure, pH 3, Feststoff : Lösung = 1:100, 24 Std.
5. Organische Fraktion und Sulfide:  
30 % H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> + HNO<sub>3</sub>, pH 2, bei 85°C, anschließend extrahiert mit 1 M Ammoniumacetatlösung, Verdünnung 1:100, 24 Std.
6. Residualfraktion (z.B. silikatische Komponenten):  
Behandlung mit konzentrierten Säuren (z.B. HF/HClO<sub>4</sub>).

Die Schwierigkeiten für die Abschätzung des Langzeitverhaltens sind bei diesem Ansatz, daß sowohl "realistische" Annahmen hinsichtlich Art, Intensität und zukünftiger Entwicklung bestimmter Umwelteinflüsse zu treffen sind, als daß auch Langzeitentwicklung im Experiment zeitlich "gerafft" werden muß.

Zur Abschätzung des "Langzeitverhaltens" (im eigentlichen Wortsinn bedeutet dies bei "Geo"-Materialien das Verhalten über geologische Zeiträume) von Schadstoffen im Boden oder im Deponiekörper kommen experimentelle Anordnungen bzw. Testverfahren in Frage, bei denen relevante Parameter wie pH-Wert, Redoxpotential, Temperatur, Salzgehalt und organische Komplexbildner innerhalb sinnvoller Randbedingungen kontrolliert intensiviert werden. Zur Freisetzung von Metallen aus Feststoffen wurde von Schoer & Förstner (28) ein Test vorgestellt (Bild 3). Bei diesem aus einem Zirkulationssystem und einer vierstufigen sequentiellen Extraktion kombinierten Verfahren kann auch der Zeitfaktor berücksichtigt werden. Durch Intensivierung der mobilisierenden Faktoren und gleichzeitige Identifikation der Verschiebung der Metallbindungsformen infolge des Zirkulationsversuches ist auch das Metallfreisetzungspotential aus den verschiedenen relevanten "Pools" über den von dem Experiment repräsentierten Zeitraum hinaus abschätzbar.



**Bild 3**

Versuchsanlage mit pH/Redox-Registrier- und Dosiereinheit sowie einem ionenaustauschersystem zur Bestimmung der Freisetzungskinetik von Metallen aus kontaminierten Feststoffen, aus: (28)

#### 4.2. Lösungs- und Ausfällungs- bzw. Sorptions- und Desorptionsverhalten

Über das Lösungs- und Ausfällungs- bzw. Sorptions- und Desorptionsverhalten von Schadstoffen an Verfestigungsmaterialien wurde bereits im Kapitel 3.2.2. berichtet und

gezeigt, daß der Test DEV S4 über die Sorptionsmechanismen in der Regel keine Aussage zuläßt. Zur Beurteilung der Schadstoffeinbindung ist die Kenntnis der Mechanismen unter verschiedenen deponierelevanten Bedingungen jedoch von großer Bedeutung. Insbesondere interessiert es, wie weit die Bindungsprozesse in Richtung höherer Stabilität verlaufen (also eine echte chemische Fixierung der Schadstoffe stattfindet), ob die Substanzen durch die physikalische Sorption reversibel gebunden werden oder ob durch die Konditionierung (z.B. pH-Einstellung) lediglich eine Ausfällung erfolgt.

Grundsätzlich werden zwei Arten der Sorption unterschieden: die Chemisorption und die physikalische Sorption, die in ihrer Bindungsenergie wesentlich differieren. Die Chemisorption ist charakterisiert durch hohe Enthalpien von 60 bis 200 kJ/mol. Als Bindungsmechanismen kommen kationische-, anionische- und koordinative Bindungen sowie Kation-Dipol-Bindungen in Betracht. Die Desorption erfordert Aktivierungsenergien, die die Sorptionsenthalpien überschreiten. Steht diese Energie nicht zur Verfügung, ist die Bindung "irreversibel"<sup>1</sup>.

Die Wasserstoffbrückenbindungen nehmen mit Bindungsenthalpien um 12 - 40 kJ/mol eine Zwischenstellung zwischen Chemisorption und physikalischer Sorption ein. Der Effekt wird durch stark elektronegative Atome wie Fluor, Sauerstoff und Stickstoff verursacht, die einen starken Elektronensog auf den gebundenen Wasserstoff ausüben. Dieser erhält einen positiven Ladungsschwerpunkt; durch seinen kleinen Radius ist er bei Dipol-Dipol-Reaktionen sterisch nicht gehindert und wird bevorzugt gebunden.

Die physikalische Sorption ist viel schwächer als die Chemisorption, die Enthalpien liegen im Bereich von 4 bis 8 kJ/mol. Sie ist das Ergebnis der Wirkung von der Waals'schen Kräfte. Diese umfassen zum einen die klassischen elektrostatischen Kräfte (Dipol-Dipol-Wechselwirkungen, Wechselwirkungen zwischen Dipol und induziertem Dipol), zum anderen wirken elektrokinetische Wechselwirkungen (fluktuierende Dipole durch oszillierende temporäre Dipol- und Quadrupolmomente auf Grund resonant schwingender Elektronenwolken).

Als Testverfahren für das Sorptionsverhalten organischer Schadstoffe an Verfestigungsmatrizes kommt z.B. eine sinngemäße Anwendung der OECD-Norm "Adsorption" für Agrochemikalien an Böden in Frage. Bei diesen Sorptionsuntersuchungen wird so vorgegangen, daß bekannte Mengen von Feststoffen mit wäßrigen Lösungen der interessierenden Stoffe ins Gleichgewicht gebracht (equilibriert) werden. Jeweils der Anteil, der an den Feststoffen sorbiert vorliegt, und derjenige, der sich in Lösung befindet, wird unter den Gleichgewichtsbedingungen bestimmt. Die Darstellung der

---

\* Der Begriff "irreversibel" wird - obwohl chemisch nicht korrekt - in der Literatur über Sorption an geogenen und umweltrelevanten Feststoffphasen in dem Sinne verwandt, daß die Bindungsgleichgewichte unter Umweltbedingungen (hier: unter Ablagerungsbedingungen) auf der Seite des Feststoffgebundenen Anteils liegen.

Beziehung dieser beiden Fraktionen wird als Sorptionsisotherme bezeichnet. Die Gesetzmäßigkeiten der Sorption lassen sich durch Variation der Schadstoffkonzentration, des Lösungs/Feststoff-Verhältnisses, der relevanten chemischen Randbedingungen (bei Schwermetallen wären als "Meistervariable" der pH für Sorptions/Desorptionsversuche zu verändern) sowie durch aufeinander folgende Desorptionsversuche ermitteln. Durch Variation der Temperatur lassen sich Bindungsenthalpien bestimmen. Ausführliche Untersuchungen zur Sorption von Schadstoffen an Verfestigungsmaterialien finden sich bei (7).

#### **4. Anforderungen und notwendiger Untersuchungsaufwand für Verfestigungsverfahren**

Die Erfahrungen mit der Abfallbeseitigungspraxis der Vergangenheit haben zur Forderung der TA Sonderabfall geführt, nur solche Behandlungsverfahren zuzulassen, die sich nach dem Stand der Technik richten. Wir sind der Überzeugung, daß eine Verfestigung von Abfällen in Hinblick auf eine Reduzierung des Schadstoffaustrags als eindeutige Verbesserung der Abfallbeseitigung anzusehen ist, wenn jeweils spezifische, auf die besonderen Abfälle angepaßte und in ihrer Wirksamkeit überprüfte Verfahren angewandt werden. Der Begriff "Stand der Technik" bezieht sich allerdings in allen uns bekannten Fällen bisher nur auf die Maßnahme, nicht auf das Prüfverfahren.

In komplexen, schwer durchschaubaren Systemen (und sicher gilt das auch für Langzeitentwicklungen bei verfestigten Abfällen) sind Konzepte wie das Vorsorgeprinzip eingeführt worden. Insofern ist das restriktive Herangehen der TA Sonderabfall an die Verfestigung verständlich (nach einer Übergangszeit ist die Verfestigung von solchen Abfällen ausgeschlossen, die im unverfestigten Zustand die übrigen Zuordnungskriterien nach Anhang D nicht einhalten, s.o.). Wir sind jedoch der Meinung, daß diese Restriktionen nicht erforderlich sind; dies setzt aber die volle Nutzung des Standes von Wissenschaft und Forschung auch bei der Anwendung der Testverfahren voraus. Hier enttäuscht jedoch die TA Sonderabfall, wie oben dargelegt, durch z.T. falsche, z.T. unzureichende Prüfverfahren.

An dieser Stelle erhebt sich die Frage nach dem nötigen Aufwand für Eignungsuntersuchungen bei Verfestigungsverfahren. Nach unserem Verständnis ist zu trennen von den Eingangsuntersuchungen auf der Deponie; hier ist evtl. der Aufwand selbst für den S4-Test noch zu hoch. Bei Nachuntersuchungen dürfte dagegen der S4 Test ein gutes Instrument sein, um vergleichbares Verhalten des fraglichen Materials mit dem aus der Eignungsuntersuchung nachzuweisen. Die Eignungsuntersuchungen selbst aber müssen sich dagegen an dem nötigen Aufwand für Sanierungen nach vorangegangenen Fehleinschätzungen messen lassen. Sie erfordern Aussagen - ermittelt nach dem Stand

von Wissenschaft und Technik - über das Langzeitverhalten der Schadstoffe aus dem Abfall. DEV S4 als alleiniger Elutionstest entspricht aber in keiner Weise diesem Stand.

Für die Übergangsregelung wäre es wünschenswert, wenn die gleichen mechanischen Anforderungen an Verfestigungsprodukte, wie nach Anhang D, gelten würden. Als Auslaugtest sollte der DEV S4 (mit Zerkleinerung des Materials) als konventionelles Verfahren mit eingesetzt werden. Er sollte durch das äußerst gründlich evaluierte amerikanische Auslaugverfahren (Diffusionstest an integren Probekörpern) ANS-16.1 ergänzt werden. Der vorgeschlagene Säulenauslaugtest in der Triaxialzelle sollte als interessante Variante gründlich weiter untersucht werden, in dieser Phase jedoch nicht vorgeschrieben werden.

Nach einer Übergangsfrist sollte ein Zulassungsverfahren - unter Verzicht auf die Restriktion in der TA Sonderabfall - entwickelt werden, daß von den oben abgehandelten oder weiteren Untersuchungsverfahren jeweils schadstoff- und verfahrensspezifisch angepaßte Prüfungen auswählt und besonderes Gewicht auf die Ermittlung des Langzeitverhaltens legt. In den Zulassungsgutachten müßte dargestellt werden, daß nicht nur das Verfahren, sondern auch die Prüfungen dem fortgeschriebenen Stand von Wissenschaft und Technik entsprechen. Letzterer wäre in Zusammenarbeit und Übereinstimmung zwischen Wissenschaft und Genehmigungsinstitution zu ermitteln. Eine solche relativ offene Regelung - jedoch mit strengen Prüfanforderungen - könnte die TA Abfall bezüglich der Verfestigungstechnik zum Motor einer Weiterentwicklung werden lassen, anstatt, wie zu befürchten, die Entwicklung zu hemmen.

## 5. Literatur

- (1) TA Sonderabfall; Entwurf der dritten allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Abfallgesetz. - Technische Anleitung zur Lagerung, chemisch-physikalischen Behandlung, Verbrennung und Ablagerung von Sonderabfällen, Stand 28.6.1989
- (2) Endell, U., Loos, W., Breth, H.: Zusammenhang zwischen kolloidchemischen sowie bodenphysikalischen Kennziffern bindiger Böden und Frostwirkung. Forschungsarbeiten aus dem Straßenwesen, Berlin 1939
- (3) US EPA: Handbook for stabilization/solidification of hazardous waste, EPA/540/2-86/001, Cincinnati 1986
- (4) Loll, U.: Messung der Laborflügelscherfestigkeit als EG-Standard oder Referenzmethode zur Bestimmung der Deponiefähigkeit entwässerter Schlämme. In: Loll, U. (Hrsg.): Recycling von Klärschlamm, Berlin 1989, 185-192

- (5) Wienberg, R.: Zum Einfluß organischer Schadstoffe auf Deponietone. - Teil 1: Unspezifische Interaktionen. *Abfallwirtschaftsjournal*, 2 (4), im Druck (1990)
- (6) Acar, Y.B., Seals, R.K.: Clay barrier technology for shallow land waste disposal facilities. *Hazardous Waste* 1,(1984), p. 167-181
- (7) Wienberg, R., Khorasani, R., Schweer, C., Förstner, U.: Verfestigung, Stabilisierung und Einbindung organischer Schadstoffe aus Deponien. In: Thomé-Kozmiensky (Hrsg.): *Altlasten* 3, Berlin 1989, 227-259
- (8) LAGA-Richtlinie EW/77: Richtlinie für das Vorgehen bei physikalischen und chemischen Untersuchungen im Zusammenhang mit der Beseitigung von Abfällen.- Bestimmung der Eluierbarkeit von festen und schlammigen Abfällen mit Wasser, 2 S. (1977)
- (9) Gerschler, L.: Neue Entwicklungen bei der Verfestigung von Sonderabfällen. *Müll Abfall*, 7/88, 307-319
- (10) McLellan, J.E. & Cote, D.L.: Guide for the selection of leaching tests; Abstract presented before the Division of Environmental Chemistry, American Chemical Society, Dallas,Texas, 4-9 April 1989, 168-171.
- (11) Francis, C.W., Maskarinec, M.P., Lee, D.W.: Physical and chemical Methods for the Characterization of Hazardous Waste. In: Baccini, P.(Hrsg.): *The Landfill*, Springer Verlag, Heidelberg 1988, 371-398
- (12) Ham, R., Andeson, M.A., Stegmann, R., Stanforth, R.: Back- ground Study on the Development of a Standard Leaching Test. EPA 600/2-79-109 (1979).
- (13) U.S. Environmental Protection Agency (USEPA): Identifi-cation and listing of hazardous waste. In: *Environmental Protection Agency Hazardous Waste Management System*, 40 CFR 261.24,(1980).
- (14) Farni, H.P.: Methodical guidelines in federal ordinances to assign wastes to treatment and final storage. In: Baccini, P.(Hrsg.): *The Landfill*, Springer Verlag, Heidelberg, 363-369 (1988).
- (15) van der Sloot, H.A., Piepers, O., Kok, A.: A standard leaching test for combustion residues. *Studie-groep Ontwikkeling Standaard Uitloogtesten Verbrandingsresiduen, Petten, Niederlande, BEOP-25*, 50 S. (Holländisch; englische Übersetzung durch Shell Laboratorien) Amsterdam 1984
- (16) Hespe, E.D.: Leach testing of immobilized radioactive waste solids, a proposal for a standard method; *Atomic Energy Rev.* 9 (1), 1971, p. 195-207
- (17) American Nuclear Society (ANS): Measurement of the leachability of solidified low level radioactive wastes, ANSI/ANS-16.1 (1984)
- (18) Cote, P.L., Isabel, D.: Application of a dynamic leaching test to solidified hazardous wastes. In: *ASTM Special Tech- niques Publication (STP) 851*, 1984, p. 48-60
- (19) US EPA: Physical properties and leach testing of solidified/stabilized industrial waste; EPA- 600/2-82-099
- (20) Materials Characterization Center (MCC): MCC-1P static leach test method, MRB0326 (1983).

- (21) van der Sloot, H.A., de Groot, G.J., Wijkstra, J.: Leaching characteristics of construction materials and stabilization products containing waste materials. 4th Int. Hazardous Waste Symposium on Environmental Aspects of Stabilization/ Solidification of Hazardous and Radioactive Wastes, Atlanta(U.S.A.), May 1987
- (22) van der Sloot, H.A., de Groot, G.J.: Mobility of trace elements derived from combustion residues and products containing these residues in soil and groundwater; Report for the period 1.7.1986 to 31.12.1987, Commission of the European Communities, Directorate-General for Science, Research and Development XII/E-6, Contract Nr. EN3F- 0032(NL) (1988)
- (23) van der Sloot, H.A., Wijkstra, J.: Short and long term effects in the leaching of trace elements from stabilized waste products. Proc. 5th Int. Ocean Disposal Symposium, Corvallis, Oregon (U.S.A.), 10.-14.Sept. 1984
- (24) van der Sloot, H.A., de Groot, G.J., Eggenkamp, H.G.M., Tielen, J.A.L.W., Wijkstra, J.: Versatile method for the measurement of the trace element mobilities in waste materials, soils and bottom-sediments. Stichting Energie- onderzoek Centrum, Petten, Nederlande, ECN-87-085 (1987).
- (25) van der Sloot, H.A., Wijkstra, J., de Groot, G.J.: Schad- stoffdiffusion in Sedimenten, Böden und Abfällen. In: Wolf, K., van den Brink, W.J., Colon, F.J.(Hrsg.): Altlastensanierung 88, Kluwer Academic Publ., Dordrecht 1980, S. 69-73
- (26) Förstner, U.: Chemical forms and reactivities of Metals in Sediments. In: Leschber, R., et al. (Hrsg.): Chemical methods for assessing bio-available metals in sludges and soil,, London 1985, p. 49-66
- (27) Tessier, A., Campbell, P.G.C., Bisson, M.: Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. Anal. Chem. 51, (1979), p. 844-851
- (28) Schoer, J., Förstner, U.: Abschätzung der Langzeitbelastung von Grundwasser durch die Ablagerung metallhaltiger Fest- stoffe. Vom Wasser 69: (1987), S. 23-32