

› NOTITIE

Uitloogproeven: verantwoording, toepasbaarheid en aansluiting met de praktijk

TNO innovation
for life

NOTITIE
Juni 2024
060.52305-03iv

Inhoud

› Samenvatting.....	3
› Inleiding.....	4
› Uitloogproeven: een simulatie van de praktijk?.....	4
› Diffusieproef en kolomproef.....	7
› pH- afhankelijkheidsproef.....	11
› Internationale en wetenschappelijke inbedding.....	13
› Lab versus praktijk.....	14
› Resumé	18
› Referenties	20

› Samenvatting

Voor het toekomstbestendig maken van het bodembeleid is het belangrijk dat de mogelijkheden van de huidige testsystematiek voor uitloging in de Regeling Bodemkwaliteit (Rbk) optimaal worden benut. Deze notitie beoogt op toegankelijke wijze de belangrijkste aspecten uit te leggen over de verantwoording en toepasbaarheid van bestaande uitloogproeven, en de aansluiting daarvan met de praktijk. De notitie is gericht op publiek dat bekend is met de uitloogproeven die in Nederland gangbaar zijn voor bouwstoffen, grond en bagger en/of afval, maar die niet of minder goed bekend zijn met de achtergronden en het toepassingsbereik ervan.

Het uitloog- testinstrumentarium zoals we dat in Nederland kennen, bestaand uit de kolomproef NEN 7373/NEN 7383 en de diffusieproef NEN 7375, heeft een wetenschappelijke basis die gebaseerd is op decennialang onderzoek naar uitloging van stoffen uit een brede range van primaire en secundaire materialen, grond en bagger. Gebleken is dat het aantal factoren dat uitloging beïnvloedt overzichtelijk is, en vooral (maar niet alleen) bestaat uit drie “dimensies”: L/S verhouding (hoeveelheid doorstroomd water; korrelvormige materialen), tijd (diffusie; vormgegeven materialen), en de pH (die de onderliggende chemie beïnvloedt in alle materialen). Dit resultaat heeft vergaande standaardisatie en harmonisatie van uitloogproeven mogelijk gemaakt, blijkend uit het feit dat methoden internationaal (Europees en mondiaal) zijn gestandaardiseerd voor een brede range aan materialen (bouwproducten, afval, grond, bagger).

Uitloogproeven zijn geen directe simulatie van de praktijk, maar meten de uitloging onder gestandaardiseerde laboratoriumomstandigheden. Uit het proefresultaat kunnen de belangrijkste mechanismen worden afgeleid die de uitloging bepalen. Wanneer men deze mechanismen kent en de belangrijkste factoren die deze in de praktijk beïnvloeden, kan men een vertaling maken naar uiteenlopende praktijkomstandigheden. De drie proeven die voortkomen uit de belangrijkste factoren die uitloging sturen (de genoemde kolomproef en diffusieproef), aangevuld met de pH-afhankelijkheidsproef (die niet is voorgeschreven in de Rbk) bieden tezamen de aanknopingspunten om praktijkwaarnemingen te kunnen verklaren en om het uitlooggedrag van een brede range van materialen bij meerdere levenscycli vooraf in te schatten.

Aanbevolen wordt om de kennis over uitloogprocessen, waaronder de hierboven geschetste mogelijkheden die de karakteriseringsproeven bieden, optimaal te benutten bij de herziening van het bodembeleid.

› Inleiding

Voor het toekomstbestendig maken van het bodembeleid is het belangrijk dat de mogelijkheden van de huidige testsystematiek voor uitloging in de Regeling Bodemkwaliteit (Rbk) optimaal worden benut. Deze notitie beoogt op toegankelijke wijze de belangrijkste aspecten uit te leggen over de verantwoording en toepasbaarheid van bestaande uitloogproeven, en de aansluiting daarvan met de praktijk. Hiermee wordt beoogd om toe te lichten dat de proeven niet het resultaat zijn van arbitraire keuzes, maar berusten op een gedegen inzicht in uitloogprocessen, en dat zij ook internationaal goed zijn ingebed.

Hoewel er een schat aan informatie uit de huidige proeven kan worden gehaald, worden zij in Nederland vrijwel alleen gebruikt voor het keuren van producten. In deze notitie wordt de achtergrond van de verschillende proeven toegelicht, de internationale inbedding, het basale onderscheid tussen uitloogmechanismen, de daaruit voortkomende testmethoden (kolomproef, diffusieproef, pH-afhankelijkheidsproef) en aspecten die van belang zijn voor de aansluiting met de praktijk. Ook worden doorkijkjes gegeven naar hoe de testsystematiek gebruikt kan worden voor het beoordelen van verouderingsprocessen van (alkalische) materialen, en het “tweede leven” van bouwstoffen – aspecten die voor het toekomstbestendig maken van het bodembeleid van belang zijn.

De notitie is geschreven in opdracht van RIVM en is gebaseerd op decennialang uitloogonderzoek dat in Nederland door ECN (nu onderdeel van TNO) is uitgevoerd. Er wordt in deze notitie verwezen naar (al dan niet populair-) wetenschappelijke literatuur, maar de verwijzingen zijn niet uitputtend. De notitie is gericht op publiek dat bekend is met de uitloogproeven die in Nederland gangbaar zijn voor bouwstoffen, grond en bagger en/of afval, maar die niet of minder goed bekend zijn met de achtergronden en het toepassingsbereik ervan.

› Uitloogproeven: een simulatie van de praktijk?

Wat is uitloging?

Uitloging is het proces waarbij stoffen die in een vast materiaal zitten, deels of volledig in oplossing gaan in het water waarmee het materiaal in contact is. Dat kan bijvoorbeeld infiltrerend regenwater zijn of grondwater. Sommige uitgeloopte stoffen kunnen schadelijk zijn voor de mens (b.v. als stoffen in drinkwater terecht komen of via opname in gewassen) of het milieu (b.v. het waterleven, bodemdieren), hetgeen de reden is dat er eisen worden gesteld aan de hoeveelheid van schadelijke stoffen die mag uitlogen. Stoffen die van nature voorkomen (zoals zware metalen, bijvoorbeeld cadmium) kunnen bij hoge concentraties schadelijk zijn. Reststoffen, industriële bijproducten of verontreinigde grond hebben vaak verhoogde concentraties van deze

stoffen ten opzichte van natuurlijke bodems¹, waardoor zij soms milieuproblemen kunnen veroorzaken. Ook natuurlijke gesteenten kunnen soms verhoogde concentraties van schadelijke stoffen uitlogen, afhankelijk van hun geologische herkomst. Dit is de reden dat er maximale emissiewaarden voor uitloging (hierna “uitloogcriteria” genoemd) zijn opgenomen in de Rbk, die gelden voor zowel “primaire” als “secundaire” bouwstoffen (reststoffen), als grond en baggerspecie in zogenaamde grootschalige toepassingen.

Relatie tussen gehalte (samenstellingswaarde) en uitloging van stoffen

Men zou zich kunnen afvragen waarom er uitloogproeven- en criteria zijn. Waarom zo ingewikkeld, terwijl men eenvoudig het gehalte kan bepalen en daar eisen aan kan stellen? Dat zit zo: van de totale hoeveelheid van een stof die in een materiaal zit, kan meestal maar een heel beperkt deel uitlogen naar de omgeving en dus voor negatieve milieueffecten zorgen. Dat komt omdat de uitloging wordt gelimiteerd door chemische processen (bijvoorbeeld oplos- en neerslagreacties) en fysische processen (bijvoorbeeld diffusie). Het totaalgehalte van een stof in een materiaal is weliswaar een bovengrens voor wat er door uitloging in theorie uit kan komen, maar zegt heel weinig over wat er daadwerkelijk uit komt²⁻⁴. Zou men materialen op totaalgehalte beoordelen, dan is dat zeer onnauwkeurig omdat wat er werkelijk uitloogt sterk wordt bepaald door de omstandigheden waaronder het materiaal wordt gebruikt. Vaak wordt er dan een conservatieve aanname gedaan over het aandeel dat kan uitlogen (bijvoorbeeld de aanname dat 100% van het gehalte uitloogbaar is), met overbeschermende (en gebruiksbeperkende) normstelling tot gevolg. Een beoordeling op uitloging maakt mede daarom het gebruik van secundaire bouwstoffen mogelijk, die wellicht zouden “afvallen” als er op totaalgehalte zou worden beoordeeld.

Stoffen die uitlogen, zijn beschikbaar in de waterfase en kunnen daardoor worden opgenomen door organismen. Uitgeloopte stoffen kunnen zich via de waterfase verplaatsen (bijvoorbeeld via grondwater of oppervlaktewater), met verontreinigingspluimen tot gevolg die een bedreiging kunnen zijn voor bijvoorbeeld drinkwaterwinning. Beoordeling op uitloging is daarom een veel directere maat voor de milieu- impact van materialen dan beoordeling op basis van totaalgehalte.

Voor veel organische stoffen zijn er wel eisen aan het totaalgehalte (bijvoorbeeld de maximale samenstellingswaarden voor bouwstoffen). Dat komt omdat er ten tijde van het opstellen van de regelgeving nog geen consensus was over de complexere uitvoeringsaspecten van uitloogproeven voor die stofgroepen, die door commerciële milieulaboratoria moeten kunnen worden uitgevoerd. De Nederlandse regelgeving bevat bovendien niet voor alle parameters uitloogcriteria die in de praktijk soms wel relevant kunnen zijn. Te denken valt aan de pH van het water dat met sterk basische materialen in contact heeft gestaan, of de uitloging van zouten uit grond.

Is een uitloogproef een simulatie van de praktijk?

Uitloogproeven zoals NEN 7373 (kolomproef)⁵ en NEN 7375 (diffusieproef)⁶ en aanverwante proeven zijn geen directe simulatie van de praktijk en zijn ook niet als zodanig ontwikkeld. Daarvoor is de variatie van omstandigheden die uitloging

beïnvloeden in de praktijk veel te groot. Denk aan de wijze waarop een product wordt gebruikt (onder asfalt, in grondwater, op een dak), het blootgestelde oppervlak (valt er regen op, of niet), enzovoort. Eén uitloogproef die één bepaalde omstandigheid simuleert is per definitie “conditioneel”, dat wil zeggen, de uitkomsten zijn niet extrapoleerbaar naar andere proef- of praktijkomstandigheden^{7,8}. Indien men uitloogproeven wil ontwikkelen voor elk product in een zogenaamd “representatief” praktijkscenario, dan leidt dat tot een oneindig aantal testmethoden, waarvan de resultaten onderling niet vergelijkbaar zijn. Dat maakt regelgeving niet alleen ingewikkeld, maar ook oneerlijk, omdat materialen niet langs dezelfde meetlat gelegd kunnen worden. In Nederland en veel andere landen is daarom een andere systematiek ontwikkeld, gebaseerd op de belangrijkste uitloog*mechanismen*. Wanneer men die mechanismen kent en de belangrijkste factoren deze beïnvloeden, kan men daarmee een vertaling maken naar een veelheid van omstandigheden, al dan niet ondersteund met modellen en aannames. Deze getrapte benadering, die bekend staat als “impact assessment”, is onderliggend aan uitloog- regelgeving ⁷⁻⁹, waaronder die in Nederland¹⁰ en Duitsland^{11,12}.

De welbekende NEN 7373/NEN 7383 (kolomproef) en NEN 7375 (diffusieproef) zijn gebaseerd op de belangrijkste uitloog*mechanismen* (zie onder voor toelichting). Daarbij wordt de uitloging gemeten onder gestandaardiseerde omstandigheden. Dat laatste is een zeer belangrijke eigenschap van uitloogproeven: doordat de proeven zijn gestandaardiseerd voor goed gekozen en nauwkeurig omschreven laboratorium-omstandigheden, is het proefresultaat reproduceerbaar. De proeven zijn bovendien zo ontworpen, dat de mate van conditionaliteit minimaal is: kleine afwijkingen van de uitvoeringsomstandigheden zullen weinig effect hebben op de uitkomst. In standaardisatie- jargon heet dit “robust”. Bovendien zijn de proeven ontwikkeld om toepasbaar te zijn voor een zeer brede range van producten. Dat heeft als grote voordeel dat materialen onderling “eerlijk” kunnen worden vergeleken. Beide proeven kunnen worden gebruikt om een inschatting te krijgen van de uitloging die men in de praktijk kan verwachten, maar men moet zich daarbij altijd realiseren dat de praktijkomstandigheden anders zullen zijn dan die in het laboratorium.

Verschillende doelen van uitloogproeven

Uitloogproeven hebben verschillende doeleinden. In het algemeen zijn er drie soorten proeven te onderscheiden: karakteriseringsproeven, “compliance”- proeven en “verificatie” proeven⁸. De eerste proef is de meest uitgebreide, en gericht op “inzicht” in uitloogprocessen en de mogelijkheid om een relatie te leggen met verschillende praktijkomstandigheden. “Compliance”- proeven zijn van de karakteriseringsproef afgeleid, en zijn hoofdzakelijk gericht op het verkrijgen van een eindresultaat dat kan worden vergeleken met bijvoorbeeld een maximale emissiewaarde. Voor deze proeven moet er een kwantitatieve relatie te leggen zijn met de uitkomst van een karakteriseringsproef. Verificatieproeven zijn nog eenvoudiger en kunnen indicatief zijn. Bijvoorbeeld, een fabrikant kijkt alleen naar de kleur van het product als verificatieproef. Als dit verandert, veranderen de uitloogeigenschappen misschien ook en is er aanleiding om een nieuwe compliance- of karakteriseringsproef te doen, zodat vastgesteld kan worden of de uitloging nog steeds voldoet aan de maximale emissiewaarde.

NEN 7375 (diffusieproef)⁶ en NEN 7373 (kolomproef)⁵ en hun internationale evenknieën (EN 15863¹³ en EN 14405¹⁴; US-EPA Method 1315¹⁵ en US-EPA Method 1314¹⁶, ISO 21268-3¹⁷) en Europese opvolgers voor bouwstoffen (respectievelijk EN 16637-2¹⁸ en EN 16637-3¹⁹) zijn karakteriseringsproeven. In deze karakteriseringsproeven worden meerdere fracties gemeten die worden verzameld als functie van de mate van doorstroomd water (NEN 7373) of tijd (NEN 7375), waarmee het benodigde inzicht in de uitloogmechanismen kan worden verkregen (zie onder).

In Nederland wordt in de praktijk meestal alleen naar het eindresultaat van de proef gekeken, namelijk de cumulatief uitgeloopte hoeveelheid en een eventuele rekenkundige bewerking op dat resultaat. Die waarde wordt vervolgens vergeleken met maximale emissiewaarden uit de Regeling Bodemkwaliteit. Voor de kolomproef NEN 7373 bestaat er daarom een vereenvoudigde versie (NEN 7383) die met minder fracties hetzelfde eindresultaat geeft. De NEN 7383 kan daarom worden gezien als een compliance proef. Ook de proeven uit de EN 12457- serie, d.w.z. éénstaps-schudproeven voor afval, zijn voorbeelden van compliance proeven. Compliance-proeven geven echter niet de informatie die nodig is om een relatie met specifieke praktijkomstandigheden te leggen, maar zijn uiteraard wel prima te gebruiken voor keuringsdoeleinden.

› Diffusieproef en kolomproef

In Nederland kennen we (in hoofdzaak) twee uitloogproeven die leidend zijn voor de beoordeling van uitloging uit bouwstoffen, grond en afval: de NEN 7373 (kolomproef) en de verkorte versie daarvan (NEN 7383) en de NEN 7375 (diffusieproef)^a. De kolomproef is voor “niet vormgegeven” (korrelvormige) materialen bedoeld, de diffusieproef voor “vormgegeven” (monolithische) materialen.

In de Rbk is omschreven wanneer een materiaal vormgegeven is of niet-vormgegeven, aan de hand van criteria zoals “duurzame vormvastheid” en “kleinste eenheid”. Belangrijk om te begrijpen is dat deze criteria niet gebaseerd zijn op basis van hoe een materiaal eruit ziet, maar op de mate waarin diffusie bepalend wordt verondersteld voor de mate en snelheid van uitloging.

Koffie en thee

Voor monolithische (vormgegeven) materialen spelen processen zoals diffusie en initiële afspoeling vanaf het oppervlak de belangrijkste rol bij de uitloging van stoffen naar het omringende (grond)water. De consequentie van diffusiecontrole is dat uitgeloopte concentraties worden gelimiteerd door de tijds- en afstands- afhankelijke diffusie vanuit de binnenkant van het materiaal.

Voor korrelvormige (niet-vormgegeven) materialen is het in- en uitwendige contactoppervlak tussen bouwstof en water zo groot, dat de uitloging en verspreiding

^a Voor bouwstoffen zullen deze op termijn vervangen worden door de Europese equivalenten EN 16637-2 (diffusieproef) en EN 16637-3 (kolomproef).

nauwelijks of zelfs helemaal niet wordt gelimiteerd door diffusie. De uitloging wordt hier vooral gecontroleerd door de chemische factoren die de oplosbaarheid van stoffen bepalen, en door de hoeveelheid water die door de poriën en langs de korrels van het materiaal stroomt (percolatie). Voor korrelvormige materialen is de uitloging van stoffen over het algemeen veel sneller en de vracht veel groter dan in het geval van monolithische materialen.

Dit verschil is conceptueel tot op zekere hoogte te vergelijken met het zetten van koffie of thee (Figuur 1). Voor het zetten van thee is verplaatsing nodig van de organische moleculen uit het theezakje naar de oplossing toe. Dit verloopt via diffusie. Gemalen koffie is korrelvormig en alle korrels samen vertegenwoordigen een zeer groot oppervlak. Het water dat er door stroomt wordt snel opgeladen met “koffie-moleculen” die in oplossing gaan, dit gaat bijna instantaan.



Figuur 1: Het onderscheid tussen diffusie- en percolatie- gecontroleerde uitloging (respectievelijk dominant bij vormgegeven en niet-vormgegeven materialen) is te vergelijken met het zetten van koffie of thee (Figuur JD).

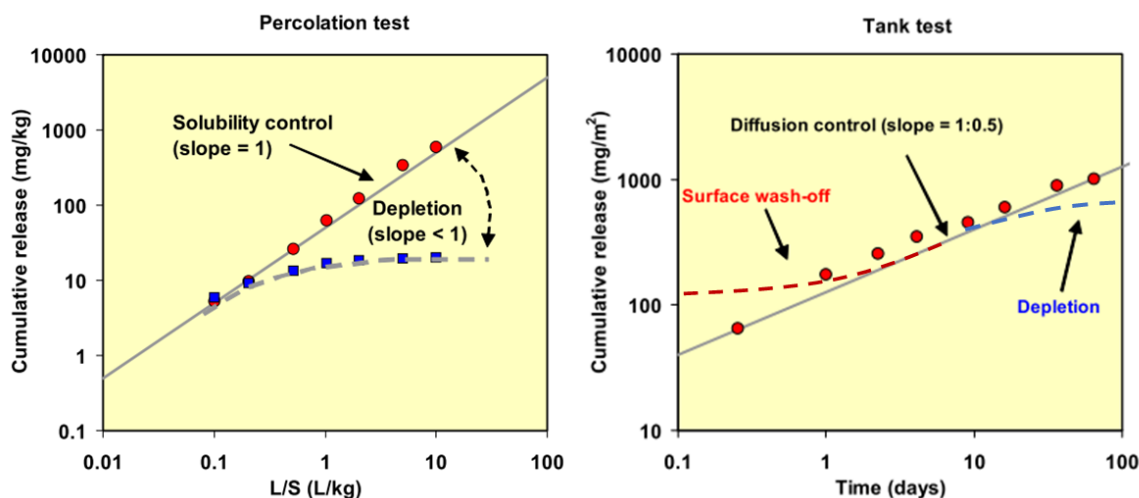
Het bovenstaande basale onderscheid is bepalend voor welke proef het meest geschikt is om uitloging te beoordelen. De criteria voor begrippen zoals “kleinste eenheid” en “duurzame vormvastheid” uit de Regeling Bodemkwaliteit zijn hierop gebaseerd en dienen om de juiste proef te selecteren. Meestal is duidelijk welke proef moet worden gebruikt, maar voor sommige materialen zijn de bovengenoemde criteria niet afdoende. Dit is bijvoorbeeld het geval bij een monolithisch materiaal dat heel poreus is en daardoor water doorlaat (en waar hoofdzakelijk een percolatie-regime heerst), of klei- achtige korrelvormige materialen die geen water doorlaten (die in de praktijk diffusiegecontroleerd uitlogen). Voor de laatste categorie bestaat een aangepaste diffusieproef^b. Welke proef van toepassing is in grensgevallen zal per geval moeten worden onderzocht.

^b NEN 7347 en Annex A van EN 16637-2.

Het aflezen van de belangrijkste uitloogmechanismen uit het proefresultaat

In de maximale emissiewaarden in de Rbk wordt impliciet al een relatie verondersteld tussen het proefresultaat en de praktijk, gebaseerd op een aantal *generieke* (voor alle bouwstoffen gelijke) aannames over uitloogmechanismen in een “standaard” toepassing¹⁰. Daardoor hoeft niet elke nieuwe toepassing afzonderlijk te worden beoordeeld. Echter, de proefresultaten bieden indien gewenst ook de informatie die nodig is voor doeleinden die verder gaan dan de reguliere keuring van producten, zoals (o.a.) het maken van vertalingen van proefresultaat naar *specifieke* (praktijk)omstandigheden, beoordelen van materialen met bijzondere eigenschappen, specifieke risicobeoordelingen, het interpreteren van meet- of monitoringsdata, de verbetering van de kwaliteit van producten, enzovoort. Voor dit type doeleinden kan uit het proefresultaat de benodigde informatie over de belangrijkste uitloogmechanismen worden gehaald^{4,7,8,18,19}.

De basale uitloogmechanismen worden meestal afgeleid door de resultaten op een bepaalde manier in een figuur te plotten (Figuur 2). Slechts ten dele zijn deze interpretaties in de tekst van de standaard van de volledige proef opgenomen, voor zover zij doorwerken in regelgeving. In de diffusieproef kunnen mechanismen worden geïdentificeerd zoals (daadwerkelijke) diffusie, initiële afspoeling en uitputting. Voor een kolomproef kunnen stoffen uitloggen volgens “oplosbaarheidscontrole”, d.w.z. constante uitgeloopte concentraties, of juist snel uitspoelen als ze zeer goed oplosbaar zijn. Het laatste (meest rechtse) meetpunt in Figuur 2 geeft de zogenaamde cumulatieve emissie, uitgedrukt in mg/kg bij L/S 10 (kolomproef), of mg/m² na 64 dagen (diffusieproef). Deze waarden kunnen worden vergeleken met regelgeving, zoals de maximale emissiewaarden uit de Regeling Bodemkwaliteit.



Figuur 2: Schematische weergave van de basale uitloogmechanismen⁷ die zijn af te leiden uit de kolomproef (zoals NEN7373; links) of een diffusieproef (zoals NEN7375, rechts). Links: oplosbaarheidscontrole (“solubility control”) betekent dat concentraties constant zijn in elke fractie; dit leidt in een cumulatieve uitloogcurve tot een helling van 1:1 met de L/S waarde (links). Snelle uitspoeling, zoals voor goed oplosbare zouten, leidt juist tot een afvlakkende helling. Rechts: diffusiecontrole leidt tot een helling van 1:0.5, afwijkende patronen kunnen komen door afspoeling vanaf het oppervlak, uitputting, of oplosbaarheidscontrole^{7,8,20}.

Oplosbaarheidscontrole in de kolomproef vindt men vaak bij reactieve metalen zoals lood, koper of cadmium. Snelle uitspoeling vindt men vaak bij inerte, goed oplosbare

stoffen zoals chloride, bromide, en (soms) sulfaat. Combinaties en tussenvormen van uitlooggedrag zijn ook mogelijk. Dit type informatie is belangrijk als men wil weten of uitlooging in de praktijk binnen korte termijn zal afnemen, of juist decennia zal aanhouden.

Het afleiden van uitloogmechanismen is alleen mogelijk wanneer men de volledige karakteriseringsproef heeft uitgevoerd. Dat wil zeggen dat men de proef uitvoert met alle in de standaard voorgeschreven fracties. Daarentegen kunnen vereenvoudigde of verkorte (compliance- of verificatie) proeven, waarbij minder fracties worden gemeten, worden gebruikt indien het doel van de proef alleen bestaat uit kwaliteitscontrole of om een product te keuren.

Het belang van (niet-)evenwicht in de kolom- en diffusieproef

Voor de kolomproef zijn de omstandigheden zodanig vastgesteld dat de proef zo dicht mogelijk “lokaal chemisch evenwicht” benadert. Onder die omstandigheden zijn de uitgeloopte concentraties niet of nauwelijks afhankelijk van factoren zoals stroomsnelheid en korrelgrootte^{8,12,21}. Dat maakt de proef “robuust” (d.w.z. niet erg gevoelig voor uitvoeringscondities) en reproduceerbaar. Bovendien zijn uitgeloopte concentraties alléén onder voorwaarde van lokaal evenwicht te begrijpen aan de hand van kennis over chemische uitloogprocessen, zoals oplos- en neerslagreacties en adsorptie (zie onder: pH afhankelijkheidsproef). Die kennis is weer van belang om vertalingen te kunnen maken naar de lange termijn emissies in de praktijk.

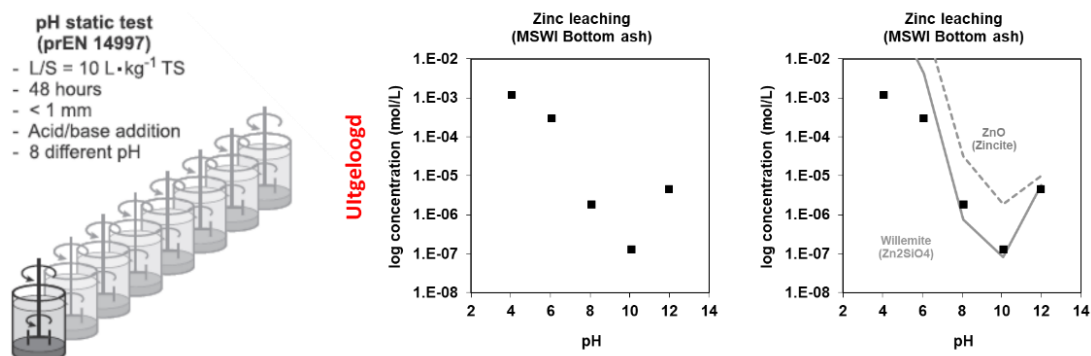
Over de keuzes van korrelgrootte en stroomsnelheid is gedurende meer dan een decennium veel discussie geweest bij het ontwikkelen van de Europese kolomproef (EN16637-3) die de NEN7373/7383 zal vervangen. De discussie ging met name over het belang van lokaal chemisch evenwicht^{22,23} versus het willen doen van een “simulatieproef”. Uit het bovenstaande is duidelijk waarom lokaal chemisch evenwicht belangrijk is.

Voor de diffusieproef NEN7375 (en de bovengenoemde internationale evenknieën) is de proefopzet juist zodanig gekozen, dat men *zo v r mogelijk verwijderd* is van chemisch evenwicht. In deze proef wil men het diffusieproces immers onbelemmerd zijn werk laten doen, zonder dat dit beperkt wordt door te hoog oplopende concentraties in het eluaat (d.w.z. het wegvallen van de concentratiegradi nt) of zelfs neerslagreacties als concentraties te hoog worden. Deze situatie wordt bereikt door een voorgeschreven verhouding tussen het blootgestelde oppervlak van het proefstuk, en door het eluaat op specifieke voorgeschreven tijden te verversen. De proef is zo robuust, dat een iets anders gekozen verversingsschema nauwelijks leidt tot een ander proefresultaat²⁰. Indien er sprake is van diffusie, dan geeft dit een duidelijk signaal zoals afgebeeld in Figuur 2. In bijzondere gevallen zijn de verschillende processen in de diffusieproef echter moeilijk uit elkaar te houden²⁰.

› pH- afhankelijkheidsproef

Het gebruik van de kolom- en diffusieproef beschouwt de uitloging als een resultante van hoofdzakelijk fysische processen. De onderliggende chemische processen zijn echter net zo belangrijk en vaak zelfs doorslaggevend voor de concentraties die in de uitgeloopte oplossing gemeten worden. De belangrijkste chemische factor die de uitloging beïnvloedt is de pH-waarde waarbij de uitloging plaatsvindt. Sterker nog, de uitloging van stoffen zoals gemeten met de kolomproef en diffusieproef, maar ook de uitloging in de praktijk, valt in veel gevallen niet procesmatig te begrijpen zonder ook te kijken naar de pH-afhankelijkheid. In de praktijk kunnen materialen met een pH die afwijkt van natuurlijke materialen (dat zijn met name alkalische reststoffen) bovendien pH-veranderingen ondergaan als gevolg van veroudering en reactie met CO₂ uit de lucht. Door die geleidelijke pH verandering kan ook de uitloging sterk veranderen. Het gevolg daarvan is dat de uitloging heel anders wordt dan met een kolom- of diffusieproef voor het “verse” materiaal is gemeten.

Het bovenstaande is de reden dat er nog een derde karakteriseringsproef een plek heeft gekregen naast de kolomproef en de diffusieproef: de pH afhankelijkheidsproef²⁴. Deze proef is niet in de Nederlandse regelgeving opgenomen, maar wordt in de internationale wetenschappelijke wereld breed omarmd (zie ook “internationale inbedding”)²⁵⁻³¹. De proef bestaat uit een serie parallelle schudproeven die worden uitgevoerd bij een opgelegde, constante pH waarde in een breed pH bereik, doorgaans tussen pH 2 en 12. Na 48 uur worden de suspensies gefiltreerd en de uitgeloopte hoeveelheden gemeten. Figuur 3 bevat een voorbeeld voor zink uit AEC-Bodemas³².



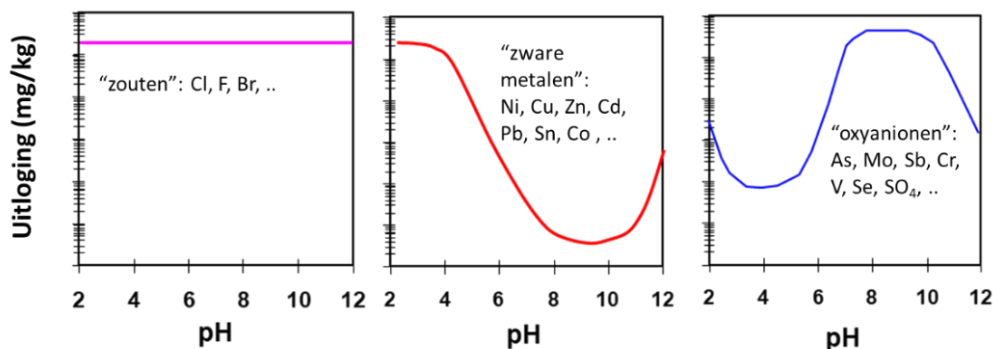
Figuur 3: De pH afhankelijkheidsproef is een serie parallelle schudproeven op korrelvormig of gebroken monolithisch materiaal uitgevoerd bij verschillende pH-waarden (links). Het voorbeeld betreft een Nederlandse AEC- Bodemas voor zink (uitgeloopte concentratie in mol/l, midden), net als voor veel andere stoffen varieert de uitloging van zink vele orden van grootte als functie van pH (let op de logaritmische schaal). Modellijnen geven aan dat de uitloging wordt veroorzaakt door oplossen en neerslag van zinkverbindingen (grijze en stippellijn)³².

Uit het voorbeeld in Figuur 3 blijkt hoezeer de pH van invloed is op de gemeten uitloging (let op: vaak een factor 10 tot 100 voor 1 pH eenheid verandering!). Daarom wordt de uitloging altijd logaritmisch op de Y- as weergegeven. Voor de duidelijkheid: het extreme pH bereik in de proef dient niet om een extreme situatie te “simuleren”, maar om de context te bieden die nodig is om de processen die uitloging veroorzaken te kunnen identificeren. Juist door het brede pH domein (breder dan in de praktijk voorkomt) kan in dit voorbeeld worden afgeleid dat de uitloging van zink wordt

veroorzaakt door oplos- en neerslag van zinkverbindingen (Figuur 3 rechts). De oplosbaarheid van die verbindingen heeft een sterke pH afhankelijkheid. Daardoor is de uitloging van zink in het voorbeeld van Figuur 3 bijzonder gevoelig voor relatief kleine veranderingen van de pH. Dat geldt voor veel meer stoffen dan alleen zink zoals hieronder wordt toegelicht.

pH afhankelijkheid van verschillende stofgroepen

Het pH afhankelijke uitlooggedrag wordt veroorzaakt door chemische processen zoals oplos- en neerslagreacties en adsorptie. Deze processen vinden plaats in alle materialen, maar de intensiteit waarmee ze zich voordoen verschilt per stof en per materiaal. Deze processen vormen grotendeels de verklaring waarom er voor veel stoffen geen (of slechts een zwakke) relatie bestaat tussen het totaalgehalte in het materiaal en de uitloogbare fractie daarvan (zie “relatie tussen samenstelling en uitloging”). Uit decennialang onderzoek blijkt dat verschillende stofgroepen een opvallend onderscheidend pH-afhankelijk gedrag vertonen (Figuur 4)⁸:



Figuur 4. Onderscheidende trends van het pH-afhankelijke uitlooggedrag voor verschillende stofgroepen⁸ zoals dat voor een brede range van verschillende materialen wordt waargenomen: “zouten”, “zware metalen” en “oxyanionen”.

- Stoffen die horen bij goed oplosbare zouten, zoals natrium (Na), chloride (Cl) en bromide (Br): deze stoffen zijn zeer goed oplosbaar en logen vrijwel geheel uit, onafhankelijk van de pH-waarde.
- Stoffen die vaak worden aangeduid met de term “zware metalen” vertonen een minimale uitloging rondom een pH-waarde van 8. Bij lagere pH-waarden neemt de uitloging sterk toe. Ook bij pH waarden tussen pH 8 en 12 neemt de uitloging enigszins toe. Stoffen die dit gedrag vertonen zijn onder andere nikkel (Ni), koper (Cu), zink (Zn), cadmium (Cd), lood (Pb), tin (Sn) en kobalt (Co).
- Stoffen die vaak worden aangeduid als “oxyanionen” vertonen als het ware omgekeerd gedrag als de bovengenoemde groep metalen. Deze groep vertoont minimale uitloging globaal tussen pH 3-6, en een toenemende uitloging naarmate de pH-waarde hoger wordt. Bij veel van deze stoffen ligt de maximale uitloging tussen een pH-waarde van 8 tot 10, waarna de uitloging tussen een pH-waarde van 10 en 12 weer lager wordt. Stoffen die veelal dit gedrag vertonen zijn onder andere antimoon (Sb), molybdeen (Mo), chroom (Cr, als

chrom- VI), arseen (As), vanadium (V), seleen (Se) en (soms) sulfaat (SO_4).

Binnen een stofgroep kan het pH-afhankelijke concentratieverloop per stof en per materiaal enigszins verschillen. De absolute uitgelooide hoeveelheden kunnen vanzelfsprekend per materiaal verschillend zijn.

De pH afhankelijkheidsproef kan een belangrijke proef zijn indien men een verschil tussen de waargenomen uitloging in de praktijk en laboratoriumproeven echt wil begrijpen. Ook organische microverontreinigingen, zoals bijvoorbeeld PFAS, kunnen pH afhankelijk uitlooggedrag vertonen³³.

› Internationale en wetenschappelijke inbedding

Nederland was het eerste land dat een brede beoordeling van zowel bouwproducten, grond en afval (grotendeels) op basis van uitloging in wetgeving heeft verankerd^c en heeft al sinds de jaren '80 geijverd voor het internationaal standaardiseren en harmoniseren van uitloogproeven. Dé belangrijke wetenschappelijke mijlpaal die dit mogelijk heeft gemaakt, was de brede erkenning dat allerlei verschillende soorten uitloog- en extractiemethoden terug te voeren waren op een overzichtelijk aantal sturende factoren, zoals pH, L/S en tijd^{3,24}. Dit opende de mogelijkheid tot vergaande harmonisatie (tussen de verschillende velden van grond, afval, bouwproducten) en standaardisatie van uitloog- testmethoden³⁴. Een interessant gegeven is dat de Nederlandse diffusieproef en kolomproef model hebben gestaan voor (onder andere) de Europese varianten voor bouwproducten (EN 16637-2¹⁸ en EN 16637-3¹⁹), afval (EN 15863¹³ en EN 14405¹⁴), de Amerikaanse equivalenten (US-EPA Method 1314 en 1315)^{15,16}, en de mondiale kolomproef voor grond (ISO 21268-3³⁵). Aan deze brede internationale standaardisatie is decennialange, intensieve inspanning door Nederland vooraf gegaan.

Zowel in de wetenschappelijke wereld als in de verschillende internationale standaardisatiewerkgroepen is breed erkend dat een volledige set van karakteriseringsproeven zich richt op *drie* belangrijke “dimensies” waarop uitloging beschouwd moet worden, namelijk L/S (kolomproef of seriële batchproef), tijd (diffusieproef) en pH (pH-afhankelijkheidsproef). Ook de pH afhankelijkheidsproef is daarom internationaal breed gestandaardiseerd, resulterend in (onder andere) de Europese proeven voor afval (EN 14429³⁶ en EN 14997³⁷), de ISO- standaard voor grond (ISO 21268-4) en de Amerikaanse US-EPA Method 1313³⁸. De set karakteriseringsproeven, bestaand uit de kolom- diffusie- en pH-afhankelijkheidsproef (en enkele aanverwante proeven), wordt door de US-Environmental protection Agency^d aangeduid als het Leaching Environmental Assessment Framework (“LEAF”) test protocol ^{30,31}. Grootschalig internationaal onderzoek heeft uitgewezen dat de

^c Bouwstoffenbesluit, 1995.

^d <https://www.epa.gov/hw-sw846/leaching-environmental-assessment-framework-leaf-methods-and-guidance>

bovengenoemde internationale standaarden, hoewel uitvoeringstechnisch soms iets verschillend, voor wat betreft het resultaat en de mogelijkheden voor het gebruik ervan zeer vergelijkbaar zijn²⁹.

Aan de verschillende werkvelden waarin de proeven in Europa zijn gestandaardiseerd, is te zien dat volledige harmonisatie (nog) niet tot stand is gekomen. Het feit dat in de standaardisatiecommissies experts vertegenwoordigd zijn van industrie, wetenschap en regelgevers uit verschillende lidstaten laat zien dat de generieke methodiek om uitloging te beoordelen, en de standaarden waarmee dit kan worden uitgevoerd, breed gedragen wordt.

Belangrijk is om te vermelden dat voor bouwproducten op Europees niveau vooralsnog geen pH afhankelijkheidsproef is gestandaardiseerd (dit is wel het geval voor “afval”, EN14429 en EN14497). De Europese bouwproductenrichtlijn verlangt voor bouwstoffen uitsluitend een verklaring over de prestaties op het gebied van uitloogeigenschappen zoals gemeten met de kolom- of diffusieproef (EN16637-2 of 16637-3). Met betrekking tot de regelgeving zijn dit de enige relevante uitloog-testmethoden voor CE- markering van bouwproducten op de Europese en Nederlandse markt.

› Lab versus praktijk

In een kolomproef (zoals NEN 7373) is de L/S waarde om te rekenen naar “tijd” voor een toepassingsscenario in de praktijk, met gebruikmaking van de dichtheid van het materiaal, de hoogte van de toepassing en de verwachte netto infiltratie van water^{5,8,19}. Doordat in de volledige proef de uitloging bij verschillende L/S waarden wordt gemeten, kan men inschatten wat men in de praktijk aan uitgeloopte concentraties kan verwachten als functie van de tijd. Hetzelfde geldt voor een diffusieproef (zoals NEN 7375), waarbij de uitloging van het materiaal kan worden berekend op basis van een geconstateerde diffusie- gecontroleerde uitloging (zie Figuur 2) of bijvoorbeeld alleen een kortstondig effect van initiële afspoeling^{8,18}. Belangrijk hierbij is het “herkennen” van mechanismen zoals getoond in Figuur 2.

De bovenstaande extrapolaties naar de lange termijn veronderstellen dat het uitlooggedrag in de praktijk op de lange termijn zich net zo manifesteert als in de proef. In de praktijk zijn er echter zeer veel factoren die kunnen afwijken van standaard laboratoriumomstandigheden. Praktijkgegevens, zoals monitoringsgegevens van grondwater, oppervlaktewater of drainagewater, zijn daardoor vaak moeilijk rechtstreeks te interpreteren, zeker als men slechts beschikt over gegevens van een enkele (compliance-) uitloogproef. Voor specifieke situaties, zoals veroudering of afwijkende korrelgrootte zijn technische aanpassingen van de kolom- en diffusieproef voorgesteld^{39,40} en in sommige gevallen ook standaarden ontwikkeld, bijvoorbeeld een anaerobe kolomproef⁴¹.

Wanneer men echter over volledige karakteriseringsproeven beschikt, is het mogelijk om praktijkwaarnemingen in hoge mate te kunnen verklaren, zoals blijkt uit een

veelomvattende studie²⁹. De onderzochte materialen en toepassingen varieerden van o.a. kolenvliegias, rookgasreinigingsresidue, AEC bodemas, betongranulaat; de onderzochte toepassingen van stortplaatsen tot wegfunderingen in de USA, Zweden, Denemarken en Nederland²⁹. De US-EPA heeft recentelijk in twee publicaties laten zien hoe op generieke wijze gebruik gemaakt kan worden van de karakteriseringsproeven uit de LEAF- benadering (kolomproef, diffusieproef en pH afhankelijkheidsproef) om vooraf een inschatting te krijgen van wat er in veldsituaties verwacht mag worden, inclusief bijvoorbeeld het vaak belangrijke effect van pH- veranderingen door veroudering van materialen^{30,31}.

Doorkijkjes naar hoe uitloogproeven optimaal kunnen worden benut

Hieronder worden twee “doorkijkjes” gegeven hoe men het bestaande uitlooginstrumentarium ten volle zou kunnen benutten om praktijkgegevens te kunnen verklaren of om praktijkgedrag vooraf nog beter te kunnen inschatten. Vermeld moet worden dat dit type evaluaties verder gaat dan wat de Nationale en Europese regelgeving, inclusief de Europese bouwproductenrichtlijn, op dit moment verlangt met betrekking tot de uitloogeigenschappen van bouwstoffen. Onderstaande “doorkijkjes” zijn dus vooral bedoeld om te laten zien hoe het testinstrumentarium kan worden gebruikt op een verkennende en/of verklarende wijze.

Het eerste “doorkijkje” betreft het geleidelijk verouderen van materialen, waardoor de pH en de daaraan gekoppelde uitloging verandert. Het tweede “doorkijkje” heeft de verschillende levenscycli van materialen als onderwerp, hetgeen relateert aan het beperken van mogelijke risico's die het circulair (her)gebruiken van bouwstoffen met zich meebrengt met betrekking tot uitloging van stoffen.

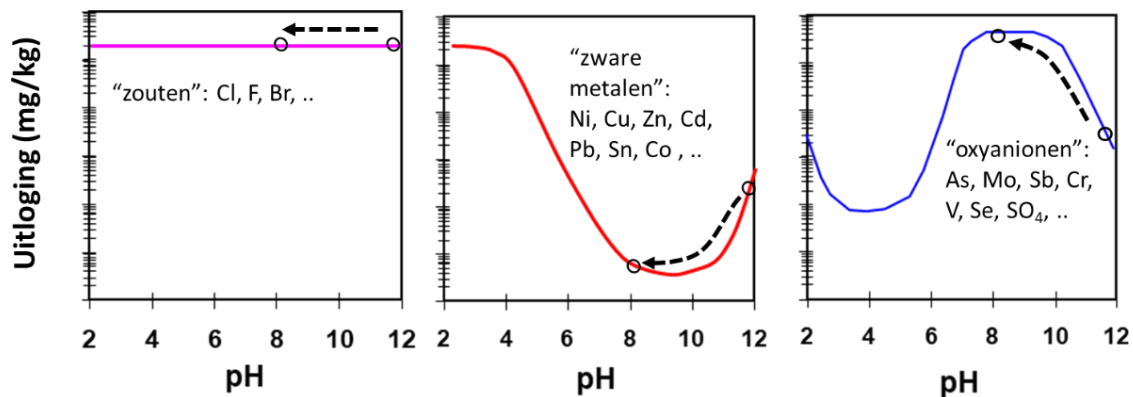
Doorkijkje 1: Effect van veroudering en carbonatatie op uitloging

Een situatie die veel voorkomt in de praktijk is het “verouderen” van materialen waardoor er een pH- effect optreedt. Door die pH verandering kan potentieel een forse discrepantie ontstaan tussen het keuringsresultaat (uitgevoerd op vers materiaal) en wat er in de praktijk bij monitoring of monsternamen achteraf gemeten wordt. In de praktijk is dit vooral aan de orde bij materialen die een hoge-temperatuurproces hebben ondergaan, zoals metallurgische slakken, cementhoudende materialen, AEC-bodemassen¹ maar ook thermisch gereinigde grond⁴². Deze groep secundaire materialen hebben door de aanwezigheid van alkalische bestanddelen (zoals calcium(hydr)oxides) initieel een pH tussen de 10-13. Door reactie met CO₂, waarvoor zowel vocht als lucht nodig is, daalt de pH spontaan naar een uiteindelijke eindwaarde van rond pH 8, het natuurlijke eindpunt van die reactie. Dit proces wordt “carbonatatie” genoemd¹, waarbij calcium(hydr)oxides reageren tot calciumcarbonaat (kalk).

Voor verschillende stofgroepen leidt carbonatatie tot verschillende veranderingen van de uitloging, zoals schematisch is weergegeven in Figuur 5. Hierin is aangegeven welke trend men verwacht wanneer een materiaal verandert van de oorspronkelijke pH van ongeveer 12 naar pH 8, waarop de carbonatatie compleet is.

Voor vrijwel inerte, goed oplosbare zouten heeft carbonatatie geen effect; voor de groep

“zware metalen” meestal een afname, maar voor de groep “oxyanionen” kan men een toename verwachten (Figuur 5). Met betrekking tot die laatste groep kan men denken aan de in de praktijk geconstateerde toename van de uitloging van antimoon en sulfaat uit AEC bodemas^{43,44} of vanadium uit staalslak^{45,46} na veroudering en carbonatatie. Het is belangrijk om te benoemen dat Figuur 5 alleen de algemene trends voor oorspronkelijk alkalische materialen illustreert; het gedrag van specifieke materialen en stoffen kan hier in de praktijk van afwijken.



Figuur 5: Illustratie hoe de uitloging van stoffen uit verschillende stofgroepen kan veranderen als de pH verandert van ongeveer pH 12 naar pH 8 (weergegeven met een onderbroken pijl).

Een voor de praktijk belangrijke vraag kan zijn hoe men het testinstrumentarium kan inzetten om vooraf een indruk te krijgen van hoe een materiaal zich na veroudering / carbonatatie qua uitloging gedraagt. Daarvoor zijn grofweg twee opties denkbaar:

1. Men doet een kolomproef op zowel nieuw als (kunstmatig) gecarbonateerd^e materiaal.
2. Een kolomproef en een pH afhankelijkheidsproef op vers materiaal.

Optie 1 is een elegante werkwijze waarmee een materiaal zoals AEC Bodemas of staalslak kunstmatig versneld wordt verouderd, voorafgaand aan de standaard kolomproef, om het effect van veroudering en CO₂- opname direct en kwantitatief in het proefresultaat zichtbaar te maken³⁹. Men weet dan zowel het “beginpunt” als het “eindpunt” van de uitloogeigenschappen die in de praktijk kunnen optreden^{39,40}. Een nadeel van optie 1 kan zijn dat men twee proefresultaten krijgt die van elkaar verschillen (vers en verouderd), zonder te kunnen begrijpen *waarom* ze van elkaar verschillen. Om dat laatste te kunnen, is de context van een pH afhankelijkheidsproef nodig (optie 2). Bovendien laat het resultaat van de kolomproef zich behoorlijk goed vergelijken met dat van de pH-afhankelijkheidsproef wanneer beide resultaten worden uitgedrukt in mg/kg bij L/S 10, waarbij het dan wel een vereiste is dat de pH in de kolomproef wordt gemeten²⁴. Hoewel de pH-afhankelijkheidsproef qua concept anders is dan een kolomproef en de uitkomst van beide proeven daardoor niet *exact* overeenkomen, heeft men wel een zeer goede, (semi-) kwantitatieve indruk van welk

^e Dit kan door monstermateriaal gedurende enkele weken intensief bloot te stellen aan waterverzadigde lucht met een verhoogde CO₂- spanning, zie ook ANVM (2003)⁴⁰. Een stabiele pH waarde rondom 8 van het monster in een suspensie van L/S= 10 l/kg is indicatief voor volledige carbonatatie.

gedrag men in de praktijk op termijn mag verwachten²⁹. Op deze wijze worden de mogelijkheden van de karakteriseringsproeven ten volle benut.

Bij beide opties moet men zich realiseren dat de mate en de snelheid van carbonatatie in de praktijk sterk kunnen verschillen^{1,47}. Om de reactie te laten verlopen is zowel vocht nodig als lucht (voor de toevoer van CO₂). Praktijkvoorbeelden kunnen dit illustreren¹: Staalslak dat is toegepast onder droge omstandigheden onder een wegdek had na tien jaar nog weinig sporen van carbonatatie en dientengevolge nog steeds een hoge pH⁴⁸. Echter, de buitenste laag van een berg AEC-bodemas, buiten opgeslagen en blootgesteld aan de natuurlijke weersinvloeden, had binnen anderhalf jaar een pH-waarde van ongeveer 8.5 bereikt⁴⁹. Bovendien geldt dat hoe groter het volume van de toepassing is, hoe langer het zal duren voordat natuurlijke carbonatatie niet alleen aan de buitenkant van de toepassing heeft plaatsgevonden (d.w.z. in direct contact met water en lucht), maar ook aan de binnenkant. Hoewel het effect van carbonatatie op uitloging vaak heel groot is, valt het dus niet mee om vooraf precies in te schatten of en hoe snel dit proces verloopt omdat dit van veel factoren afhankelijk is.

Doorkijkje 2: "tweede leven" toepassing van bouwstoffen

De levensfasen van een oorspronkelijk vormgegeven materiaal kunnen bijvoorbeeld bestaan uit:

- 1) vormgegeven toepassing (bijvoorbeeld als betonnen fietspad);
- 2) vervolgens als gebroken puin, ongebonden (niet- vormgegeven) toegepast onder wegen;
- 3) daarna eventueel opnieuw hergebruik in ongebonden vorm, of in een nieuw vormgegeven materiaal als aggregaat.

De Rbk voorziet alleen in het beoordelen van het materiaal als het op de markt komt. In het voorbeeld is dat in alle levensfasen afzonderlijk en opnieuw. Voor het beoordelen van meerdere levensfasen kan het echter van belang zijn om de levensfasen voor zover mogelijk integraal te beoordelen zodat reeds bij de eerste productie/toepassing al duidelijk wordt hoe het materiaal zich in latere levensfasen zal gedragen. Dat geldt met name indien men producten gaat maken die een combinatie zijn van een *secundaire* grondstof waarvan bekend is dat dit kritisch kan zijn ten aanzien van uitloging (zoals bijvoorbeeld AEC bodemas) en een materiaal dat hoofdzakelijk uit *primaire* grondstoffen is opgebouwd (zoals bijvoorbeeld beton). Hoewel van enkele bekende combinaties zulke integrale beoordelingen zijn gedaan, bijvoorbeeld poederkoolvlieg as in beton (zie onder), kan het voor nieuw te ontwikkelen combinaties verstandig zijn om vooraf een inschatting te krijgen van het uitlooggedrag in meerdere levenscycli zoals blijkt uit onderstaand voorbeeld.

Stel men verwerkt een secundaire grondstof in beton, en dit eindproduct voldoet aan de normstelling voor *vormgegeven* materiaal. In levensfase 2 is het materiaal getransformeerd in een *niet-vormgegeven* materiaal, dat opnieuw moet worden beproefd. De diffusieproef die is uitgevoerd op het oorspronkelijke vormgegeven

materiaal biedt op voorhand echter geen enkele garantie dat het in deze tweede levensfase aan de normstelling voor niet-vormgegeven materialen voldoet. Levenscyclus- bestendig beoordelen betekent dat men deze informatie liefst van tevoren heeft. Dit is te ondervangen door de volgende combinatie van proeven:

- Men doet een diffusieproef op het vormgegeven materiaal (levensfase 1) en een kolomproef op het verkleinde (niet-vormgegeven) materiaal (levensfase 2).

Het uitlooggedrag van het betreffende niet-vormgegeven materiaal kan tijdens de tweede levensfase mogelijk sterk veranderen door veroudering en carbonatatie (zie vorige doorkijkje). Indien het om grote hoeveelheden gaat afkomstig uit levensfase 1, kan dat op termijn een milieuprobleem vormen wanneer het niet (meer) voldoet aan de maximale emissiewaarden voor niet-vormgegeven materialen. Om een indruk te krijgen van het effect van veroudering kan men de volgende strategieën hanteren (andere combinaties zijn ook mogelijk):

- Men doet een diffusieproef op het vormgegeven materiaal (levensfase 1), en een kolomproef op zowel het vers verkleinde (levensfase 2) als het (kunstmatig) gecarbonateerde verkleinde materiaal (levensfase 2 en 3);
- Men doet een diffusieproef op het vormgegeven materiaal en een pH afhankelijkheidsproef op het materiaal na verkleinen ter beoordeling van de uitloging als niet-vormgegeven materiaal bij pH 12 (vers; levensfase 2) en pH 8 (verouderd, levensfase 2 en 3);

De laatstgenoemde strategie is succesvol gebleken om levenscycli te beoordelen voor cement waarin o.a. hoogovenslak en poederkoolvliegias in is verwerkt⁵⁰, AEC bodemas als grindvervanger in beton⁵¹, vliegias/slak in alkali-geactiveerd beton⁵² en biomassa-vliegias in cement⁵³. Voor kolenvliegias in beton is in de USA een vergelijkbare analyse gedaan⁵⁴. De van nature vaak hoge uitloging van oxyanionen uit de genoemde secundaire grondstoffen wordt door cement-chemische reacties en diffusie-limitaties in de betonmatrix sterk geremd^{54,55}. Uit deze studies is gebleken dat de milieuveiligheid kan worden gewaarborgd voor meerdere levensfasen tot bepaalde vervangingspercentages (d.w.z., vervangen van primair door secundair materiaal). Een dergelijke levenscyclus- bestendige wijze van beoordelen wordt in de markt echter slechts sporadisch gedaan. Vanwege de hogere risico's op uitloging die secundaire grondstoffen kunnen hebben, is levenscyclusbestendig beoordelen met name aan te bevelen voor het (her)gebruik van secundaire grondstoffen in materialen die uit voornamelijk primaire natuurlijke grondstoffen bestaan, zoals die van beton.

› Resumé

Het uitloog- testinstrumentarium zoals we dat in Nederland kennen, bestaand uit de kolomproef NEN7373/NEN7383 en de diffusieproef NEN7375, heeft een wetenschappelijke basis die gebaseerd is op decennialang onderzoek naar uitloging van stoffen uit een brede range van primaire en secundaire materialen, grond en

bagger. Gebleken is dat het aantal factoren dat uitloging beïnvloedt overzichtelijk is, en vooral bestaat uit drie “dimensies”: L/S verhouding (hoeveelheid doorstroomd water), tijd (diffusie), en de pH (die de onderliggende chemie beïnvloedt). Dit resultaat heeft vergaande standaardisatie en harmonisatie van uitloogproeven mogelijk gemaakt, blijkend uit het feit dat (overeenkomstige) methoden internationaal (Europees en mondiaal) zijn gestandaardiseerd voor een brede range aan materialen (bouwproducten, afval, grond, bagger).

Uitloogproeven zijn geen directe simulatie van de praktijk, maar geven wel de informatie die nodig is om een adequate indruk te krijgen van de uitloging onder uiteenlopende praktijkomstandigheden. De drie proeven die voortkomen uit de belangrijkste factoren die uitloging sturen (kolomproef, diffusieproef en pH-afhankelijkheidsproef) bieden tezamen de aanknopingspunten om praktijkwaarnemingen te kunnen verklaren en om het uitlooggedrag van een brede range van materialen bij meerdere levenscycli vooraf in te schatten.

Aanbevolen wordt om de kennis over uitloogprocessen, waaronder de hierboven geschetste mogelijkheden die de karakteriseringsproeven bieden, optimaal te benutten bij de herziening van het bodembeleid.

Referenties

1. Dijkstra, J. J., Comans, R. N. J., Schokker, J. & Van der Meulen, M. J. The geological significance of novel anthropogenic materials : Deposits of industrial waste and by-products. *Anthropocene* **28**, 100229, (2019).
2. Dijkstra, J. J. Development of a consistent geochemical modelling approach for leaching and reactive transport processes in contaminated materials. (PhD Thesis, Wageningen University and Research Centre, Department of Soil Quality, 2007).
3. Van der Sloot, H. A., Comans, R. N. J. & Hjelmar, O. Similarities in the leaching behaviour of trace contaminants from waste, stabilized waste, construction materials and soils. *Sci. Total Environ.* **178**, 111–126 (1996).
4. Kosson, D. S., Van der Sloot, H. A., Sanchez, F. & Garrabrants, A. C. An integrated framework for evaluating leaching in waste management and utilization of secondary materials. *Environ. Eng. Sci.* **19**, 159–204 (2002).
5. NEN (Nederlands Normalisatie Instituut). *NEN 7373: Leaching characteristics - Determination of the leaching of inorganic components from granular materials with a column test- Solid earthy and stony materials*. **NEN 7373:2**, (2003).
6. NEN (Nederlands Normalisatie Instituut). *NEN 7375: Leaching characteristics - Determination of the leaching of inorganic components from moulded or monolithic materials with a diffusion test - Solid earthy and stony materials*. **NEN 7375:2**, (2003).
7. Van der Sloot, H. A. *et al.* *Evaluation of a horizontal approach to assess the possible release of dangerous substances from construction products in support of the requirements of the construction products directive*. (Energy Research Centre of the Netherlands (ECN), Petten, The Netherlands, 2008).
8. Van der Sloot, H. A. & Dijkstra, J. J. *Development of horizontally standardized leaching tests for construction materials: a material based or released based approach?* (Energy Research Centre of the Netherlands (ECN), 2004).
9. CEN/TC351. *EN 16637-1: Construction products - Assessment of release of dangerous substances - Part 1: Guidance for the determination of leaching tests and additional testing steps*. (2023).
10. Verschoor, A. J. *et al.* Kritische emissiewaarden voor bouwstoffen: Milieuhygiënische onderbouwing en consequenties voor bouwmaterialen. RIVM rapport 711701043. (2006).
11. Susset, B. & Grathwohl, P. Leaching standards for mineral recycling materials - A harmonized regulatory concept for the upcoming German Recycling Decree. *Waste Manag.* **31**, 201–214 (2011).
12. Dijkstra, J. J., Van Zomeren, A. & Susset, B. *Technical principles underlying limit values for release of substances for the percolation test: comparison Germany and The Netherlands*. (ECN, The Netherlands, and Consulting Office SiWap Bernd Susset, Germany, 2013).

13. CEN/TC292. *EN 15863 - Characterisation of waste - Leaching behaviour test for basic characterisation - Dynamic Monolithic Leaching Test with periodic leachant renewal, under fixed test conditions*. (2008).
14. CEN/TC292. *EN 14405: Characterization of waste - Leaching behaviour tests - Up-flow percolation test (under specified conditions)*. (2004).
15. US-EPA. *Method 1315: Mass Transfer Rates in Monolithic and Compacted Granular Materials Using a Semi-dynamic Tank Leaching Procedure*. (2012).
16. US-EPA. *Method 1314: Liquid-Solid Partitioning (LSP) as a Function of Liquid-to-Solid Ratio Using an Up-Flow Percolation Column Procedure*. (2012).
17. ISO/TC190. *ISO 21268-3: Soil quality -- Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials - Part 3: Up-flow percolation test*. (2007).
18. CEN/TC351. *EN 16637-2: Construction products - Assessment of release of dangerous substances - Part 2: Horizontal dynamic surface leaching test*. (2023).
19. CEN/TC351. *EN 16637-3: Construction products - Assessment of release of dangerous substances - Part 3: Horizontal up-flow percolation test*. (2023).
20. Dijkstra, J. J. & Van Zomeren, A. *Considerations on the discrimination of 'solubility' versus 'diffusion' control in renewal time schedules of the tank test (TS2)*. (Energy research Centre of the Netherlands (ECN), 2013).
21. Dijkstra, J. J., Meeussen, J. C. L., Van der Sloot, H. A. & Comans, R. N. J. Local equilibrium makes column test protocol TS14405 suitable for model predictions. in (eds. Illic, M., Goumans, J. J. J. M., Miletic, S., Heynen, J. J. M. & Senden, G. J.) 345–348 (WASCON 2006, 2006).
22. Hjelm, O. *et al. Robustness validation of TS-2 and TS-3 developed by CEN/TC351/WG1 to assess release from products to soil, surface water and groundwater*. (DHI, ECN, BAM, 2013).
23. Hjelm, O. *et al. Additional Robustness Testing on TS-3 (CEN/TC 351/WG1) -Final Report*. (DHI, Denmark, 2014).
24. Van der Sloot, H. A., Heasman, L. & Quevauviller, P. *Harmonisation of leaching /extraction tests*. (Elsevier Science B.V., 1997).
25. Cappuyns, V. & Swennen, R. The application of pHstat leaching tests to assess the pH-dependent release of trace metals from soils, sediments and waste materials. *J. Hazard. Mater.* **158**, 185–195 (2008).
26. Król, A., Mizerna, K. & Bożym, M. An assessment of pH-dependent release and mobility of heavy metals from metallurgical slag. *J. Hazard. Mater.* **384**, (2020).
27. Vitkova, M. *et al.* The pH-dependent leaching of inorganic contaminants from secondary lead smelter fly ash. *J. Hazard. Mater.* **167**, 427–433 (2009).
28. Cornelis, G., Johnson, C. A., Gerven, T. Van & Vandecasteele, C. Leaching mechanisms of oxyanionic metalloid and metal species in alkaline solid wastes: A review. *Appl. Geochemistry* **23**, 955–976 (2008).

29. Kosson, D. S., van der Sloot, H. A., Garrabrants, A. C. & Seignette, P. *Leaching Test Relationships, Laboratory-to-Field Comparisons and Recommendations for Leaching Evaluation using the Leaching Environmental Assessment Framework (LEAF)*. (US-EPA, report EPA-600/R-14/061, 2014).
30. Garrabrants, A. C. *et al.* Demonstration of the use of test results from the Leaching Environmental Assessment Framework (LEAF) to develop screening-level leaching assessments. *Waste Manag.* **121**, 226–236 (2021).
31. Garrabrants, A. C. *et al.* Methodology for scenario-based assessments and demonstration of treatment effectiveness using the Leaching Environmental Assessment Framework (LEAF). *J. Hazard. Mater.* **406**, 124635 (2021).
32. Dijkstra, J. J., Van der Sloot, H. A. & Comans, R. N. J. The leaching of major and trace elements from MSWI bottom ash as a function of pH and time. *Appl. Geochemistry* **21**, 335–351 (2006).
33. Campos-pereira, H. *et al.* Effect of pH, surface charge and soil properties on the solid – solution partitioning of perfluoroalkyl substances (PFASs) in a wide range of temperate soils. *Chemosphere* **321**, 138133 (2023).
34. Eikelboom, R. T., Van der Sloot, H. A. & Dijkstra, J. J. Horizontale meetmethoden voor uitloging van bouwmaterialen naar grond- en oppervlaktewater. *H2O* **25/26**, 35–38 (2004).
35. ISO/TC190. *ISO 21268-4: Soil Quality - Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil materials - Part 4 :Influence of pH on leaching with initial acid/base addition*. (2011).
36. CEN/TC292. *EN 14429: Characterization of waste - Leaching behaviour tests - Influence of pH on leaching with initial acid/base addition*. (2015).
37. CEN/TC292. *EN 14997: Characterization of waste - Leaching behaviour tests - Influence of pH on leaching with continuous pH-control*. (2015).
38. US-EPA. *Method 1313: Liquid-Solid Partitioning (LSP) as a Function of Eluate pH Using a Parallel Batch Extraction Procedure*. 1–30 (USA Environmental Protection Agency, 2012).
39. Van der Sloot, H. A., Rietra, R. P. J. J., Mulder, E., Hage, J. L. T. & Brouwer, J. P. *Mogelijkheden tot verbetering van de voorspellende waarde van laboratorium uitloogproeven voor de praktijk (ANVM 228)*. (ECN, 2001).
40. Van der Sloot, H. A., Meeussen, J. C. L., Mulder, E., Brouwer, J. P. & Keijzer, J. *Mogelijkheden tot verbetering van de voorspellende waarde van laboratorium uitloogproeven voor de praktijk - Fase 2: experimenteel werk en evaluatie ten aanzien van de differentiatie van standaarden (ANVM 228)*. (ECN, 2003).
41. NEN (Nederlands Normalisatie Instituut). *NVN 7384: Leaching characteristics - Determination of the cumulative leaching of inorganic components from granular materials at anearobic conditions with a simplified procedure of the column test - Solid earthy and stoney materials*. (2006).
42. Brand, E. *et al.* *Toepassing van thermisch gereinigde grond. Een evaluatie en opties voor een toepassingskader. RIVM-briefrapport 2021-0168*. (RIVM, 2021).

43. Steketee, J. J. & Langevoort, M. Production of a Stable Building Material by Treatment of MSWI Bottom Ash with the Tauw EquiAsh® Process. *Waste and Biomass Valorization* (2020). doi:10.1007/s12649-020-01059-5
44. Meima, J. A. & Comans, R. N. J. Reducing Sb-leaching from municipal solid waste incinerator bottom ash by addition of sorbent minerals. *J. Geochemical Explor.* **62**, 299–304 (1998).
45. Huijgen, W. J. J. & Comans, R. N. J. Carbonation of steel slag for CO₂ sequestration: Leaching of products and reaction mechanisms. *Environ. Sci. Technol.* **40**, 2790–2796 (2006).
46. Van Zomeren, A. *et al.* Changes in mineralogical and leaching properties of converter steel slag resulting from accelerated carbonation at low CO₂ pressure. *Waste Manag.* **31**, 2236–2244 (2011).
47. Van der Sloot, H. A., Van Zomeren, A., de Nie, D. S. & Meeussen, J. C. L. *pH en redox effecten van bouwmaterialen.* (2007).
48. Arm, M., Suer, P., Arvidsson, H. & Lindqvist, J. E. Technical and environmental long-term properties of industrial residues - Summary of field and laboratory investigations. *Waste Manag.* **31**, 101–107 (2011).
49. Meima, J. A. & Comans, R. N. J. Geochemical modelling of weathering reactions in MSWI bottom ash. *Environ. Sci. Technol.* **31**, 1269–1276 (1997).
50. Van der Sloot, H. A. *et al.* *Environmental Criteria for Cement Based Products ECRICEM. Phase I: Ordinary Portland Cement. Phase II: Blended Cements and methodology for impact assessment.* (2011).
51. Keulen, A. *et al.* High performance of treated and washed MSWI bottom ash granulates as natural aggregate replacement within earth-moist concrete. *Waste Manag.* **49**, 83–95 (2016).
52. Keulen, A., Van Zomeren, A. & Dijkstra, J. J. Leaching of monolithic and granular alkali activated slag-fly ash materials, as a function of the mixture design. *Waste Manag.* **78**, 497–508 (2018).
53. Tosti, L., van Zomeren, A., Pels, J. R., Dijkstra, J. J. & Comans, R. N. J. Assessment of biomass ash applications in soil and cement mortars. *Chemosphere* **223**, 425–437 (2019).
54. Kosson, D. S., Garrabrants, A. C., Delapp, R. & van der Sloot, H. A. pH-dependent leaching of constituents of potential concern from concrete materials containing coal combustion fly ash. *Chemosphere* **103**, 140–147 (2014).
55. Garrabrants, A. C., Kosson, D. S., Delapp, R. & van der Sloot, H. A. Effect of coal combustion fly ash use in concrete on the mass transport release of constituents of potential concern. *Chemosphere* **103**, 131–139 (2014).

Ondertekening

Dr. Ir. Joris J. Dijkstra
Auteur

Dr. André van Zomeren
Tweede lezer

MSc. Y.A. Schavemaker
Research Manager Hydrology and Reservoir Engineering

CONTACT

Dr. Ir. Joris J. Dijkstra
Senior Scientist Milieugeochemie

TNO, Geologische Dienst Nederland
joris.dijkstra@tno.nl

Utrecht – Princetonlaan 6