

(52) 炭酸化処理した都市ごみ焼却飛灰セメント 固化体の拡散溶出試験による評価

水谷聡^{1*}・植村政也¹・山田攻男¹・貫上佳則¹

¹大阪市立大学大学院工学研究科都市系専攻 (〒558-8585 大阪市住吉区杉本3-3-138)

* E-mail: miz@urban.eng.osaka-cu.ac.jp

都市ごみ焼却飛灰セメント固化体に炭酸化処理を行い、Na, Pb, Znの溶出抑制効果を調べた。中性化は、処理時間の平方根に比例して進行した。水銀ポロシメータを用いて細孔容積を測定したところ、炭酸化処理によって細孔容積は11%ほど減少していた。また拡散溶出試験を行って、Na, Pb, Znの有効拡散係数を測定し、物理的な遅延効果と化学的な遅延効果に分けて評価した。炭酸化処理の進行に伴い、物理的な遅延効果が大きくなり、Naの拡散係数は小さくなった。Pbでは、適度に炭酸化処理を行うことで、化学的遅延効果が増加し、有効拡散係数は減少した。一方Znでは、化学的遅延効果の低下の影響が大きく、有効拡散係数は増加した。

Key Words: municipal solid waste incineration fly ash, heavy metals, carbonization, diffusion test, cement solidification

1. はじめに

日本では、年間約5000万tの一般廃棄物が発生し、その大半が焼却されて約500万tの焼却主灰と約120万tの焼却飛灰が最終処分されている。焼却飛灰の公定処理方法の一つであるセメント固化は、安価で処理が容易で物理的な安定化が期待されることから、広く行われている。セメントによる重金属類安定化の原理の一つは、セメントがアルカリ性を示すことから、重金属類が難溶性の水酸化物を形成することにある。しかし、PbやZnのような両性金属については、むしろ溶出しやすくなるという課題が指摘されている。

これに対して、セメント固化体を炭酸化処理することにより、両性金属の溶出を抑制することを目的とした研究が山田らにより報告されている¹⁾。彼らは、炭酸化処理をした都市ごみ焼却飛灰セメント固化体にオランダの拡散溶出試験であるNEN7345 (タンクリーチング試験)を行い、炭酸化処理によって、重金属類の溶出が抑制される可能性があることを示している。ただし実際の都市ごみ焼却飛灰のセメント固化体で試験を行っていることから、実験に用いた試料の大きさや形状が均一ではなく、固化体の炭酸化の程度については報告されていない。しかしPb, Znの溶解度は、pHに大きく依存するため、炭酸化の進行の度合いにより、その溶出挙動は大きく変化すると考えられ、炭酸化の進行に応じた固化体からの溶出挙動を把握する必要がある。

また、彼らは言及していないが、炭酸化処理による重金属類の溶出抑制効果には、物理的效果と化学的效果の2種類が考えられる。物理的效果とは、炭酸化により、セメント内部の細孔構造が変化し、屈曲率が変化することで、固化体中の元素の溶出経路が長くなり、溶出が抑制されるものである。一方、化学的效果とは、重金属自身の炭酸塩化や、炭酸化に伴って固化体の化学的組成が変化し、重金属類の溶解度や固化体との化学的な吸着作用の程度が変化することによる、溶出抑制効果である。この化学的遅延効果については、固化体との化学的吸着作用を無視できるNa等のアルカリ元素の溶出挙動を調べることで評価できるとされている^{2,3)}が、彼らはNaの溶出挙動について報告していない。

本研究では、まず炭酸化の進行の度合いによる重金属類の溶出挙動を把握するため、大きさや形状が同一である都市ごみ焼却飛灰のセメント固化体を作製した上で、この試料に対して炭酸化処理を行い、セメント固化体の中性化速度式を求めるとともに、試料の中性化の進行の度合いを確認した。次に物理的影響を与えるセメント内部の緻密さの変化を検討するため、炭酸化前後での固化体の細孔径分布を測定し、細孔容積の変化を調べた。最後に、炭酸化処理による固化体からのNa, Pb, Znの溶出フラックスと有効拡散係数の変化、および炭酸化処理に伴う物理的遅延効果と化学的遅延効果を把握するために、拡散溶出試験を行った。

2. 炭酸処理とその影響を評価するための実験

(1) 炭酸処理と中性化速度

a) 実験試料

都市ごみ焼却飛灰と早強セメントと水から直径が2.5cm、高さ4cmの円筒型の都市ごみ焼却飛灰セメント固化体(固化体A)を作成した。配合割合は、飛灰:セメント:水=10:1:2.5とし、室温20度の一定条件下において、3日間密封養生を行った。

b) 実験方法

24個の固化体を容器内に等間隔に静置し、CO₂濃度100%、500mL/minでガスを連続注入した。なお、炭酸化時に加湿は行っていない。CO₂曝露開始から1、2、3、4、5、6日後に固化体を4試料ずつ容器から取り出し、各試料の中性化状態を調べた。

具体的には、炭酸化処理後のセメント固化体の割裂面にフェノールフタレイン1%溶液(JISA 1153)を噴霧して色調変化を観察した。表面付近はCO₂により中性化された変色のない部分と、フェノールフタレインにより赤紫色に変色した、炭酸化されていない部分の面積を日本ポラデジタル株式会社画像解析ソフトmicro analyzerを用いて判断し、中性化深さを求めた¹⁾。

(2) 炭酸処理による細孔容積変化

a) 実験試料

装置上の制限の問題から固化体Aと同じ条件の混合比で、直径1cm、高さ0.5cmの円筒型の都市ごみ焼却飛灰セメント固化体を作成した。炭酸化処理の条件も同様とし、炭酸化処理を行わなかった固化体と、6日間炭酸化処理を行った固化体を2つずつ用いた。

b) 実験方法

水銀ポロシメーター(島津 オートポアⅢ 9400)を用いて細孔容積を測定した。水銀ポロシメーターは、密閉容器中に試料を静置し、圧力を加えながら試料の空隙に水銀を圧入する装置である。その時に加えた圧力と押し込まれた(細孔中へ侵入した)水銀容積の関係を測定することによって固体中の細孔の大きさや、その容積を測定するものである⁴⁾。オートポアⅢ9400は直径360μm～0.05μmの細孔の測定範囲を持ち、発生圧力228MPaである。試料を入れるためのセルは、PEN STEM, SOLID 5cc IV_38ccを用いた。

(3) 拡散溶出試験による金属類の溶出挙動の変化

a) 実験試料

固化体Aと実際にごみ処理場から排出された都市ごみ焼却飛灰セメント固化体(ストーカ式焼却炉から発生した試料をセメント添加量10%でセメント処理したもの。固化体Bとする)を対象とした。これらを実験(1)の条件で炭酸化処理し、それぞれにおいて炭酸化処理を行わなかった固化体、1日炭酸化処理を行った固化体、6日炭酸化処理を行った固化体を試料とした。

b) 実験方法

オランダの溶出試験法であるNEN7345⁹⁾を参考にした拡散溶出試験を、炭酸化処理していない固化体、1日炭酸化処理を行った固化体、6日炭酸化処理を行った固化体に対して3回ずつ行なった。以下に具体的な試験方法を示す。

1. 固化体Aについては各2つずつ、固化体Bについては各5つずつの固化体を用意した。
2. 蒸留水を硝酸でpH4になるように調整し、溶出溶媒を用意した。そして試料の体積の5倍量の溶媒を容器に入れ、固化体をすのこに乗せて浸漬静置した。
3. 試験開始から0.25、1、2.25、4、6.25、9、12.25、16、25、36、49、64日後に、試料を浸漬している溶出液を新しい溶媒に交換した。得られた溶出液は、濃硝酸を加えてpHを約2まで下げ、孔径0.45μmのメンブランフィルターで吸引濾過し、濾液を検液とした。
4. 溶液中のNa、Pb、Znの濃度をICP発光分析装置(SII Nano Technology製 SP6100、超音波ネブライザ使用)を用いて、イットリウム内標準法により測定した。
5. 各画分中の溶出濃度から溶出フラックス(単位表面積当たり、単位時間当たりの溶出量)を算出した。浸漬してから時間の時間に対して、この溶出フラックスを両対数グラフにプロットした。各プロットの近似曲線の傾きが-0.35～-0.65の範囲にある場合を拡散状態にあると判断し、拡散係数を算出した。具体的には、全ての複数区間のプロットに対し、近似直線を計算し、その勾配が-0.35～-0.65となる範囲内で最も期間が長くなるものを、拡散範囲とした。

3. 結果と考察

(1) 炭酸処理と中性化速度

コンクリートの分野では、CO₂によるコンクリート表面からの中性化の深さを、経過時間の関数として表した式は中性化速度式と呼ばれ、一般に中性化深さCは次式のように経過時間の平方根に比例するとされている⁹⁾。

$$C = A\sqrt{t} \quad (3a)$$

ここでC: 中性化深さ(mm)

A: 中性化速度係数(mm・s^{-1/2})

t: 時間(s)

本実験で得られたCO₂曝露時間と中性化深さの最大値・最小値・平均値(n=4)および両者の関係を表す近似曲線と近似式を図-1に示す。

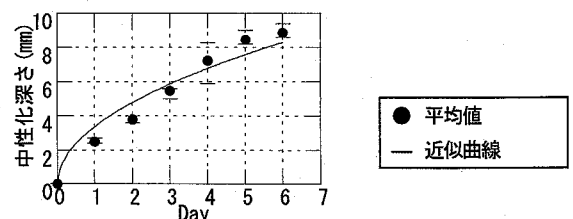


図-1 CO₂曝露時間と中性化深さ

この中性加速度定数は、 $3.39\text{mm/s}^{0.5}$ となった。これは一般的なコンクリートのそれと比較して非常に大きい、100 %の CO_2 を直接曝露したためであると考えられる。また、今回用いた直径2.5 cmの固化体では、 CO_2 を6日間曝露することにより、中性化深さが約9 mmになった。

(2) 細孔容積の変化と物理的变化

炭酸処理前後の都市ごみ焼却飛灰セメント固化体の細孔容積の分布を図-2に、表-1に試料の単位重量当たりの細孔容積の平均値($n=2$)を示す。炭酸処理を行うことにより、細孔径の分布のピークが小さい方へ移動し、また炭酸処理により都市ごみ焼却飛灰セメント固化体内の細孔容積が減少している。コンクリートを炭酸処理することで、水酸化カルシウムが炭酸カルシウムに変化して、細孔容積が小さくなったり、緻密化して強度が増すことは、佐伯ら⁷⁾、高橋ら⁸⁾、松里ら⁹⁾、鈴木ら¹⁰⁾によって報告されている。またセメントによる泥土の固化処理でも、セメントの炭酸化によりセメントが緻密化して強度が増すことが報告¹¹⁾されており、これらはいずれも今回の結果と一致した。このことから、焼却灰のセメント固化体の炭酸処理は、重金属類などの溶出を物理的に抑制する効果があることが示された。

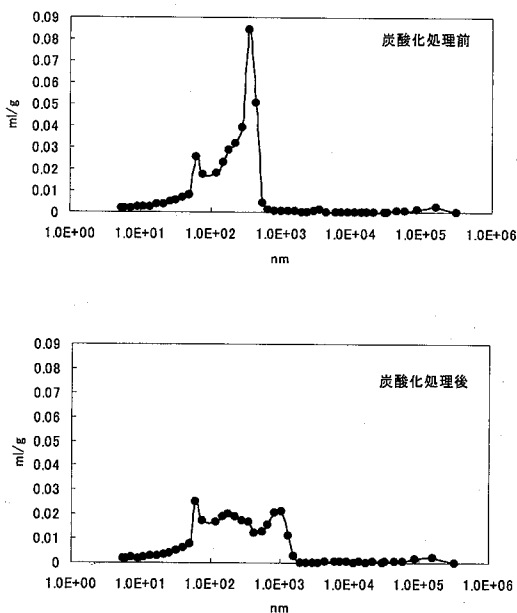


図-2 炭酸処理前後による細孔容積分布

表-1 炭酸処理前後による細孔容積の変化

	細孔容積 (mL/g-試料)
炭酸処理前	0.35
炭酸処理6日後	0.31

(3) 炭酸処理に伴う金属類の溶出挙動の変化

各溶媒交換時における溶出液のpH変化の平均値と拡散溶出試験の結果から求めた各重金属の溶出フラックス(平均値)と時間の関係を図-3に示す。ここで溶出フラックスの勾配が $-0.35 \sim -0.65$ の範囲内にある、拡散律速と判断された範囲⁹⁾も併せて図示した。また各固化体からの各元素の有効拡散係数を算出し、表-2に示した。

Naは、固化体Aの炭酸処理前の固化体では6.25~36日で、1日炭酸処理した固化体では6.25~36日で、6日炭酸処理した固化体では9~16日でそれぞれ拡散状態を示した。拡散状態における溶出フラックスは炭酸処理の進行とともに減少した。また固化体Bにおいては、炭酸処理前の固化体では6.25~16日で、1日炭酸処理した固化体では6.25~12.25日で、6日炭酸処理した固化体では6.25~12.25日でそれぞれ拡散状態を示し、拡散状態における溶出フラックスは炭酸処理することで減少した。図では対数軸となっているためやや確認しがたいが、炭酸処理を行うことで、溶出フラックスは19~48%減少している。溶解度のpH依存性や固化体との化学吸着性がほとんどないNaの溶出フラックスおよび有効拡散係数が炭酸処理に伴って低下したことは興味深く、細孔容積の減少と併せて考えても、炭酸処理がセメント固化体からの金属類の溶出抑制手法として有意義であることを示していると考えられる。

Pbは、固化体Aの炭酸処理前の固化体では2.25~16日で、1日炭酸処理した場合には4~25日で、6日炭酸処理した場合には6.25~12.25日でそれぞれ拡散状態を示した。拡散状態での溶出フラックスは、1日炭酸処理した場合には大きく減少したが、6日炭酸処理した場合には溶出フラックスの変化はほとんど確認できなかった。また固化体Bにおいては、炭酸処理前の固化体では4~12.25日で、1日中性化した固化体では4~16日で、6日中性化した固化体では9~16日でそれぞれ拡散状態を示し、ややばらつきがあるものの拡散状態における溶出フラックスは炭酸処理をすることで減少した。対数軸であるため確認しがたいが、炭酸処理を行うことで、溶出フラックスは30~33%減少した。固化体Bは、実際の廃棄物処理施設から発生したセメント固化体であり、試料の形状や大きさが不均一であったことが溶出結果に影響を与えた可能性も考えられる。

Znは、固化体Aの炭酸処理前の試料、1日炭酸処理した試料ではともに4~16日で拡散状態を示したが、6日炭酸処理した試料では拡散状態が確認できなかった。拡散状態における溶出フラックスは、炭酸処理することで増加していた。

また固化体Bにおいては、炭酸処理前の試料では4~12.25日で、1日炭酸処理した試料では6.25~16日で、6

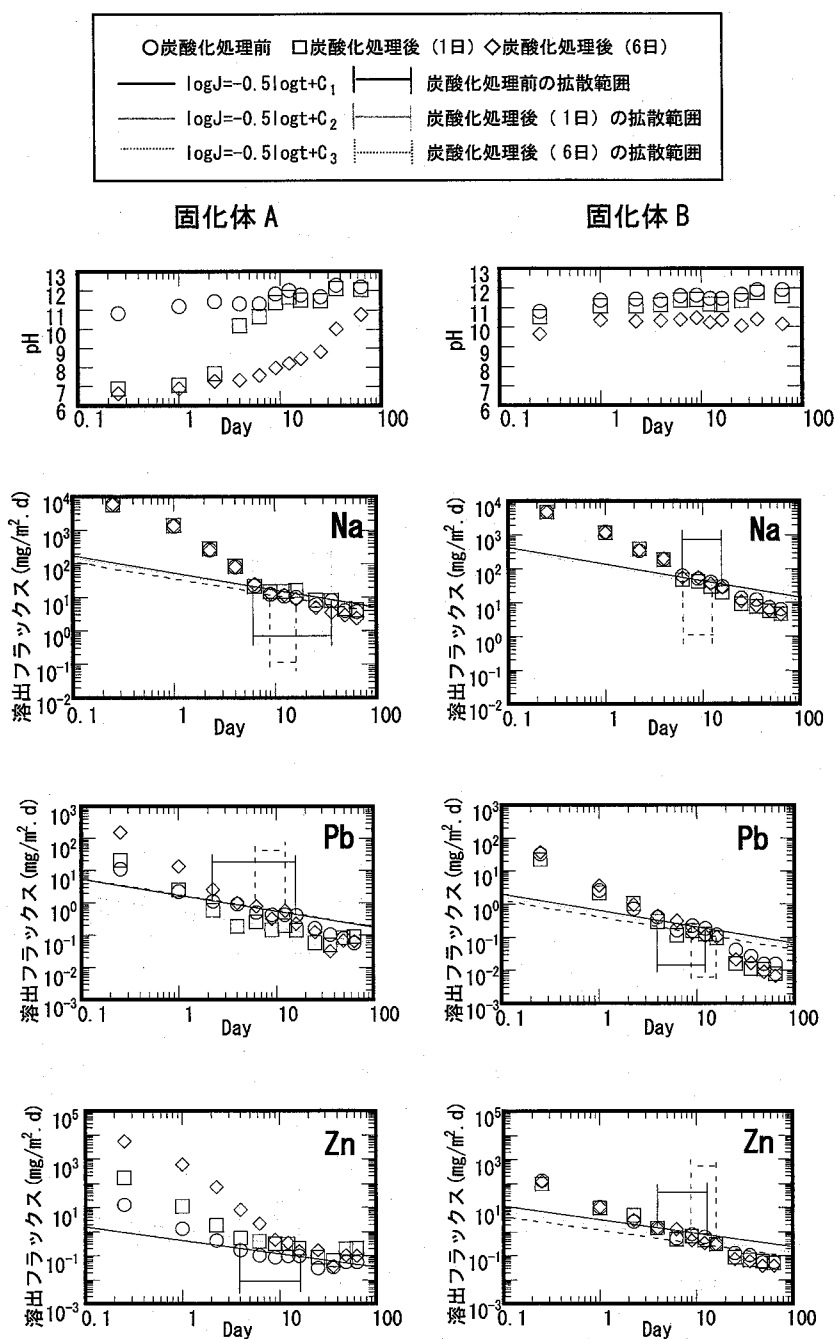


図-3 溶媒交換時の溶液中の pH 変化と炭酸化処理前後の Na, Pb, Zn の溶出フラックス

表-2 拡散状態における各重金属類の拡散係数

拡散係数 De (m²/s)	固化体 A			固化体 B		
	炭酸化無し	1 日炭酸化	6 日炭酸化	炭酸化無し	1 日炭酸化	6 日炭酸化
Na	$10^{-7.35}$	$10^{-7.53}$	$10^{-7.63}$	$10^{-6.68}$	$10^{-7.24}$	$10^{-7.06}$
Pb	$10^{-10.57}$	$10^{-11.77}$	$10^{-10.59}$	$10^{-8.79}$	$10^{-9.00}$	$10^{-9.18}$
Zn	$10^{-13.32}$	$10^{-12.29}$	—	$10^{-10.97}$	$10^{-11.04}$	$10^{-11.17}$

—：拡散状態を確認できず

日炭酸化处理した試料では9～16日でそれぞれ拡散状態を示し、拡散状態における溶出フラックスは炭酸化处理することで減少した。

炭酸化处理により、拡散状態におけるZnの溶出フラックスは固化体Aでは増加し、固化体Bでは減少したが、これは中性化の進行速度と、それに伴う試料のpHが大きく関係していると考えられる。図-3に示すように、固化体AとBの初期溶媒交換時における溶媒pHは、炭酸化处理前では大きな違いはなかったが、炭酸化处理後は、固化体Aと固化体Bで大きな違いがみられた。今回の拡散溶出試験では、溶出溶媒にpH4の硝酸溶液を用いているが、その影響を受けて、炭酸化が進んだ固化体（固化体A、炭酸化处理6日）では、溶出液のpHが7以下に低下した。拡散現象に支配された溶出現象を把握するためには、溶出液のpHが常に同一条件に保たれていることが望ましい。今回の結果は、中性化が速やかに進んだ固化体Aに対しては、金属類が拡散以外の因子によって溶出しやすい条件になり、特にpHの影響を受けやすいPbとZnの溶出が促進されたものと考えられる。このことは図-3に示したフラックスを見ても確認できる。固化体AからのZnとPbの溶出フラックスは他と比べても、初期状態で非常に高い。これはこの固化体からの溶出が、pHの低下により、拡散よりも表面溶解などの別の因子に支配されたことを表しているものと考えられる。またこのことから、炭酸化处理においては、pH制御が重要であることが分かるとともに、溶出現象を評価する拡散溶出試験の溶媒についても、今後は検討して行くべきであると考えられる。また、固化体AからのZnの拡散係数が大きくなった原因については、次節で詳しく検討する。

(4) 炭酸化处理の物理的遅延効果と化学的遅延効果

拡散溶出試験で得られる拡散係数（見かけの拡散係数）は、有効拡散係数（ D_e ）と呼ばれる。一般に、水中の分子拡散係数 D_0 に対し、固化体からの有効拡散係数は、固化体による遅延係数 F を用いて、

$$D_e = \frac{D_0}{F} \quad (3b)$$

と表現できる。さらに固化体による遅延効果としては、物理的遅延効果と化学的遅延効果があり、物理的遅延係数 T と化学的遅延係数 R を用いて、

$$D_e = \frac{D_0}{T \cdot R} \quad (3c)$$

と表現できる²³⁾。

またここで、Naは一般に、炭酸化物との化学的吸着作用を示さないと考えられることから、固化体との化学的遅延効果は無視することができ²³⁾、 T については、

$$T = \frac{D_{0Na}}{D_{eNa}} \quad (3d)$$

が成立するとされる。

固化体Aについて、拡散溶出試験で得られたNaの有効拡散係数から固化体の物理的遅延定数である T を求めた。またその T と有効拡散係数の値を用いて、PbとZnの化学的遅延係数 R および T と R の積である、固化体の遅延係数 F をそれぞれ求めた。その結果を表-3(a)～(c)に示す。

Naの拡散係数で表される物理的遅延係数は炭酸化の進行に伴って大きくなった。これは炭酸化处理の進行とともに、セメント固化体の細孔容積が減少した事実とも一致する。またNaは化学的な吸着作用がほとんど無視できることから、その化学的遅延係数 R_{Na} は、 $1 (=10^0)$ と考えることができ、その積である固化体の遅延係数 $F (=T \cdot R)$ は結果として、 T と同じ値を示す。

続いて、PbとZnの化学的遅延係数について考える。Pbの化学的遅延係数は、炭酸化处理を1日行うことで増加し、6日行うことで減少した。しかし、物理的遅延係数を併せて考慮すると、固化体全体での遅延係数 F は炭酸化处理を行うことで増加した。このことから、Pbの溶出を抑制するという目的に対し、炭酸化处理は有効であることが示された。

一方Znについては、炭酸化6日の有効拡散係数が得られなかったために不透明な部分もあるが、炭酸化处理1日後の化学的遅延係数がかなり大きく減少しており、結果と

表-3(a) 炭酸化处理とNaの遅延係数

	T	R	$T \cdot R$
炭酸化無し	$10^{-1.53}$	10^0	$10^{-1.53}$
炭酸化处理(1日)	$10^{-1.35}$	10^0	$10^{-1.35}$
炭酸化处理(6日)	$10^{-1.25}$	10^0	$10^{-1.25}$

* Naの拡散係数を $D_{Na}=10^{-8.88}$ とし³⁾で、計算

表-3(b) 炭酸化处理とPbの遅延係数

	T	R	$T \cdot R$
炭酸化無し	$10^{-1.53}$	$10^{2.91}$	$10^{1.37}$
炭酸化处理(1日)	$10^{-1.35}$	$10^{3.92}$	$10^{2.57}$
炭酸化处理(6日)	$10^{-1.25}$	$10^{2.64}$	$10^{1.39}$

* 文献12)を参考にして、Pbの拡散係数を $D_{Pb}=10^{-9.20}$ と仮定して計算

表-3(c) 炭酸化处理とZnの遅延係数

	T	R	$T \cdot R$
炭酸化無し	$10^{-1.53}$	$10^{5.7}$	$10^{4.16}$
炭酸化处理(1日)	$10^{-1.35}$	$10^{4.49}$	$10^{3.13}$
炭酸化处理(6日)	$10^{-1.25}$	—	—

* Znの拡散係数を $D_{Zn}=10^{-9.16}$ とし³⁾で、計算

—: 拡散状態を確認できず

して固化体の遅延係数 F も小さくなっている。したがって、Znは、炭酸化处理によって溶出が促進される可能性が高いと考えられる。このことから、溶出挙動がpHに大きく依存する元素では、化学的效果に十分に配慮して炭酸化处理を行うべきだと思われる。

4. 結論

本研究では、都市ごみ焼却飛灰をセメント固化した固化体を生成し、炭酸化处理を行うことで、中性化の進行速度と細孔容積について検討した。また、炭酸化处理した焼却飛灰セメント固化体に対して拡散溶出試験を行い、金属類の溶出特性について検討した。以下に本研究で得られた結論を示す。

- (1) 都市ごみ焼却飛灰セメント固化体に炭酸化处理を行うことで、中性化が進行することが確認できた。また炭酸化は、中性加速度式にしたがった。
- (2) 水銀ポロシメーターを用いた分析により、都市ごみ焼却飛灰セメント固化体を炭酸化处理することで、固化体内の細孔容積が減少することが確認できた。これは炭酸カルシウムが生成し、固化体が緻密になったためであると考えられる。
- (3) Na, Pb, Znのすべてにおいて、炭酸化の進行の度合いにより、その溶出挙動は大きく変化した。
- (4) Naの物理的遅延係数は、炭酸化处理の進行とともに増加した。これは炭酸化处理による固化体内の細孔容積の減少からも裏付けられた。また、その結果、有効拡散係数は減少した。
- (5) Pbの化学的遅延係数は、炭酸化处理を1日行うことで増加し、6日行うことで減少した。しかし、物理的遅延係数を併せて考慮した有効拡散係数は6日間処理した場合でも減少し、炭酸化处理を行うことでPbの溶出が抑制されることが確認できた。ただし、化学的遅延係数は、炭酸化处理日数に依存するため、化学的效果を的確に捉える必要がある。
- (6) Znの化学的遅延係数は、炭酸化处理を行うことで減少した。その程度は物理的遅延係数の増加の程度よりも大きく、有効拡散係数は増加した。

謝辞

本研究は、文部科学省の科学技術総合研究委託費による成果であることを付記し、関係者に深謝致します。

参考文献

- 1) 山田攻男, 貫上佳則, 雑賀弘晃, ムケディス・アブドゥリシト, 小野芳朗: 二酸化炭素を用いた中性化处理による都市ごみ焼却飛灰セメント固化体からの重金属溶出量の変化, 土木学会環境工学研究論文集, Vol.43, pp.263-269, 2006
- 2) IAWG (A.J.Chandler, T.T.Eighmy, J.Hartlen, O.Hjelmar, D.S.Kosson, S.E.Sawell, H.A.van.der.Sloot, J.Vehlow): Municipal Solid Waste Incinerator Residues, Chapter 20, Studies in Environmental Science 67, Elsevier
- 3) 肴倉宏史, 水谷聡, 田崎智宏, 貴田晶子, 大迫政浩, 酒井伸一: 利用形状に応じた拡散溶出試験による廃棄物溶融スラグの長期溶出量評価, 廃棄物学会論文誌, Vol.14, No.4, pp.200-209, 2003
- 4) ユアサアイオニクス株式会社のホームページ
<http://www.yuasa-ionics.co.jp/index.html>
- 5) NEN7345: Leaching Characteristics of Soil and Story Building and Waste Materials-Leaching Test-determination of the Leaching of Inorganic Components from Building and Monolithic Waste Materials with the Diffusion Test, 1995
- 6) 河野清, 田澤栄一, 門司唱著: 新しいコンクリート工学—訂正版—, 朝倉書店
- 7) 佐伯竜彦, 大賀宏行, 長滝重義: 中性化によるコンクリートの微細組織の変化, 土木学会論文集, No.420, Page.33-42, 1990
- 8) 高橋修平, LUKUAN Q, 高木言芳: 中性化によるコンクリートの物性について、セメント技術大会講演要旨, Vol.51 pp.306-307, 1997
- 9) 松里広昭, 船戸己知雄, 山崎之典: 炭酸化したセメント硬化体の強度と微細構造, 第46回セメント技術大会講演集, pp.630-635, 1992
- 10) 鈴木康弘, 金井謙介, 五十畑達也: 炭酸化反応によるセメント硬化体の物性の向上, 第47回セメント技術大会講演集, pp.56-61, 1993
- 11) 西元央: セメントを用いた泥土固化粒状物の道路材料としての利用に関する研究, 大阪市立大学学位論文, 2005
- 12) 独立行政法人 原子力安全基盤機構: 放射性廃棄物処分安全解析コード改良整備 一次元安全解析コード及び多次元詳細現象 解析コードの改良整備に関する報告書 付録I-2 2005

(2007.5.25受付)

Evaluation of Carbonation Treatment of Cement-solidified Municipal Solid Waste Incineration Fly Ash by Diffusion Test

Satoshi MIZUTANI¹, Masaya UEMURA¹, Takao YAMADA¹ and Yoshinori KANJO¹

¹Dept. of Urban Engineering, Osaka City University

Cement solidified municipal solid waste incineration fly ash are carbonated and the leaching behavior of Na, Pb and Zn are studied. The carbonation proceeded in proportion to the carbonated time. Carbonation reduced about 10 % of the void of the material. Diffusion test are performed and diffusive coefficient of Na, Pb and Zn are determined. Based on the differences of diffusion coefficient of each element, influences of physical retention factors and chemical retention factors are discussed. Carbonation raises the physical retention factor. On the other hand, the treatment lowers the chemical retention factor for Pb and Zn. The overall diffusion coefficients of Pb decrease because the physical retention is bigger than chemical retention. However, diffusion coefficients of Zn increase because of the decrease of chemical retention effects.