

## (3) 資 料

---

- 1) 食品の理化学検査結果について (2002年度) .....57
- 2) 感染症流行予測調査について (2002年度) .....58
- 3) 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2002年度) .....59
- 4) 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2002年) .....61
- 5) 食品の微生物学的検査成績について (2002年度) .....65
- 6) 九州地方において1993～2002年の過去10年間に分離された臨床  
由来A群溶血レンサ球菌の菌型推移 .....66
- 7) 大分県における雨水成分調査 (2002年度) .....72

# 食品の理化学的検査結果について (2002年度)

二宮孝代、立花敏弘、荒金真理子、岡本盛義、濱内正博

## Chemical Examination of Distribution Foods in Oita Prefecture, 2002

Takayo Ninomiya, Toshihiro Tachibana, Mariko Arakane, Moriyoshi Okamoto, Masahiro Hamauchi

Key words : 化学的検査 chemical examination、収去食品 distribution foods

### はじめに

2002年度に県下5ブロックの食品衛生監視機動班及び他の行政機関が、年間計画に基づいて収去した食品の化学的検査結果について報告する。

試料は、2001年4月から2002年3月の間に収去した食品243件延べ2512項目で、食品衛生法で定められた方法に準拠した大分県検査実施標準作業書に基づき検査を行った。

### 結 果

食品の化学検査結果を表1に示す。

県産の食肉、鶏肉、鶏卵、輸入エビ、輸入食肉併せて87検体中の合成抗菌剤（スルファジミジン他13

物質）及び県産養殖魚、県産食肉あわせて30検体中の抗生物質（テトラサイクリン、オキシテトラサイクリン、クロルテトラサイクリン）についてはすべての検体で検出されなかった。

県産天然魚10検体中の有機スズ化合物（TBT, TPT, DBT）については、1検体でトリブチルスズを0.03ppm検出した。

県産の漬物等の合成保存料（ソルビン酸、安息香酸、デヒドロ酢酸）及び合成甘味料（サッカリンナトリウム）については、40検体のうちソルビン酸1件、サッカリンナトリウム2件の表示違反があった。

残留農薬については、有機リン系30物質、含チッソ系21物質ピレスロイド系10物質のうち、基準値を超えるものはなく、県産野菜ではいずれも不検出であった。

輸入野菜・果実では7検体のうち1検体でクロルピリホスを0.02ppm検出した。

表－1 2002年度食品の化学検査結果

検体名	検査の項目	検体数	成分数	総成分数	違反数	結果の概要	
県産食肉	合成抗菌剤	10	14	140	0	すべて検出しない	
県産鶏肉		9	14	126	0		
県産鶏卵		10	14	140	0		
輸入エビ		12	14	168	0		
輸入食肉・魚介類		36	14	504	0		
県産食肉	抗生物質	10	3	30	0		
県産養殖魚		20	3	60	0		
県産天然魚	有機スズ化合物	10	3	30	1		トリブチルスズ検出 1検体 0.03ppm
県産食品・漬物	合成保存料	40	4	160	3		表示違反 ソルビン酸 1検体 サッカリンNa 2検体
	合成甘味料						
県産野菜・果実	残留農薬	10	61	572	0		
輸入野菜・果実		7	61	427	1	クロルピリホス検出 1検体 0.02ppm	
県産食肉	亜硝酸根	10	1	10			
牛乳・加工乳	成分規格	11	6	42			
魚介類・加工品	酸化防止剤	10	3	30			
輸入加工品	酸化防止剤 (TBHQ)	12	1	12			
ミネラルウォーター	成分規格	10	4	40			
天領水	PH, 硝酸	5	2	10			
塩	フェロシアン化合物, 全シアン	11	1	11			
計		243	104	2512	5		

# 感染症流行予測調査について (2002年度)

小河正雄、吉用省三、小野哲郎

## Surveillance of Vaccine-preventable Diseases, 2002

Masao Ogawa, Shozo Yoshimochi, Tetsuro Ono

Key words : 流行予測調査 surveillance of vaccine-preventable diseases、  
日本脳炎 japanese encephalitis、インフルエンザ influenza

### はじめに

2002年度の厚生省労働省委託による感染症流行予測事業として、新型インフルエンザウイルスの出現を想定した感染源調査、日本脳炎感染源調査を行ったので、その概要を報告する。

### 材料及び方法

検査材料は2002年度感染症流行予測調査実施要領により採取した。検査方法は感染症流行予測調査検査術式(平成14年6月)に従って行った。

### 結果及び考察

#### 1 新型インフルエンザウイルスの出現を想定した感染源調査

2002年7月～9月に、豚80頭から血液を採取し、

A/HongKong/9-1-1 (H5N1)、A/pa/千葉/1/97 (H9N2) 及び A/turkey/Wisconsin/66 (H9N2) を抗原に用いて、インフルエンザウイルスに対する HI 抗体保有状況を調査した。いずれの抗原に対しても、HI 抗体を保有する豚はいなかった。今回の抗原を有するインフルエンザウイルスの流行は確認されなかったが、新型ウイルスの出現に対処するため今後とも監視を続けることが重要である。

#### 2 日本脳炎感染源調査

2002年6月初旬から9月初旬まで、各旬20頭ずつ計160頭のと畜場に搬入されたブタについて、日本脳炎 HI 抗体を測定した(表1)。最初に HI 抗体保有豚が検出されたのは6月5日で例年より早い時期であった。8月13日に日本脳炎汚染地区の判定基準である HI 抗体保有率が50%を超えた。これは、例年と同時期であった。ブタの HI 抗体保有率が100%に達したのは8月28日で、例年どおりであった。日本脳炎患者の報告はなかった。

表1 日本脳炎感染源調査 (2002年)

採血月日	検査頭数	HI 抗体価								抗体陽性率 (%)	2ME 感受性抗体保有率 (%)
		<10	10	20	40	80	160	320	640≤		
6月5日	20	15					1	2	2	25.0	
6月19日	20	14					2	2	2	30.0	
7月3日	20	16					1	2	1	20.0	
7月17日	20	16			1	1			2	20.0	25
8月2日	20	14		1					5	30.0	100
8月13日	20	6		1				5	8	70.0	62
8月28日	20							4	16	100.0	0
9月11日	20						1	1	18	100.0	0

## 感染症発生動向調査からみたウイルスの流行状況 (2002年度)

小河正雄、吉用省三、小野哲郎

### Report on Isolation of Viruses in Oita Prefecture, 2002

Masao Ogawa, Shozo Yoshimochi, Tetsuro Ono

Key words : 発生動向調査 surveillance、ウイルス virus、エンテロウイルス enterovirus、  
クラミジア claudia

#### はじめに

我々は、感染症の予防および感染症の患者に対する医療に関する法律に係わる感染症発生動向調査事業に基づき、病原体の検索及びその動態などについて調査を行っている。2002年は県内の11医療機関から延べ571検体の検査依頼があり、エンテロウイルスを中心に157株のウイルス、クラミジアを分離同定した。以下、その結果について報告する。

#### 検査方法

ウイルス検索は医療機関より提出された咽頭拭い液、咽頭うがい液、糞便、尿などを対象に、HEp-2、BS-C-1、Vero、CaCo-2、MDCK の5種細胞を併用し、細胞変性効果を指標に2代まで継代培養を行った。分離ウイルスの同定にはエコーウイルス抗血清 (EP95) およびデンカ生研製エンテロウイルス抗血清並びに各単味抗血清による中和試験で行った。コクサッキー A 群ウイルスの検出には、生後12~24時間令の哺乳マウスも使用し、同定には自家製のコクサッキー A 群ウイルスに対する抗血清を用いた補体結合反応試験で行った。ロタウイルスの検出にはラビットテスト ロタ・アデノ (Orion Diagnostica 社製) を使用し、クラミジアの検出にはトリニテイバイオテック社製の検出キットと PCR 法を用いた。

#### 結果

2002年は571件の検査依頼があり、分離・同定した病原体および抗体は157株であった。

夏かぜの代表的な疾患であるヘルパンギーナは、2001年に引き続いて2002年も患者数の少ない年であった。患者からコクサッキーウイルス A 4型が3株検出された (表1)。年間を通じて患者の多い感染性胃腸炎は昨年続き大きな流行がみられたが、3月に A 群ロタウイルスが1件、12月にアデノウイルス40/41型が1株検出された。無菌性髄膜炎は1月から8月にかけてエコーウイルス13型が43株検出され、7月から12月にかけてエコーウイルス30型が9株分離された。エコーウイルス13型の流行は本県では初めての確認で、大部分の人が免疫を持っていないと推定され、比較的大きな流行となったと思われる。他の疾病から検出された数を合わせると49株分離され、2002年で最も多く分離されたウイルスであった (表2)。エコーウイルス30型は4年ぶりの流行であり、2002年まで流行が続いた。全国的にはエコーウイルス13型とエコーウイルス11型が多く分離された。インフルエンザの流行状況は、2001年の第51週頃から始まり2002年第17週にほぼ終息した。また、2002年の第50週からインフルエンザの流行が始まった。インフルエンザ患者からは A (H1) 型と A (H3) 型及び B 型が検出され、3種の混合流行は2年続きとなった。性器クラミジア感染症からは、13株の *Chlamydia trachomatis* が検出された。

ま と め

無菌性髄膜炎では、エコーウイルス13型による流行を初めて経験した。インフルエンザは、2年連続でA (H1) 型とA (H3) 型及びB型の混合流行があった。

2002年の感染症発生動向調査事業では、571検体より157株のウイルス、クラミジアを分離・検出した。

表1 診断名別ウイルス及びクラミジア分離状況 (2002年)

臨床診断名	病原体名	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	合計
インフルエンザ様疾患	Coxsackievirus B2										1			1
	Coxsackievirus B4												1	1
	Influenza virus A H1	11	4											15
	Influenza virus A H3	3	1										27	31
	Influenza virus B		3	10										13
かぜ症候群	Adenovirus 5							1						1
	Influenza virus A H3												1	1
ヘルパンギーナ 夏かぜ	Coxsackievirus A4						3							3
	Echovirus 13						1	3						4
	Echovirus 18						1							1
無菌性髄膜炎	Echovirus 13	1			1	2	13	25	1					43
	Echovirus 30							1		1	4		3	9
感染性胃腸炎	Adenovirus 40/41												1	1
	Rotavirus group A			1										1
乳児嘔吐下痢症	Poliovirus 2										1			1
	Rotavirus group A		3	1										4
腸重積症	Adenovirus 1								1					1
熱性けいれん	Echovirus 13							1						1
肺炎	Echovirus 11					1								1
性器クラミジア感染症	Chlamidia trachomatis	3		2	1	1	1	2			1	1	1	13
記載なし	Adenovirus 2			1										1
	Chlamidia trachomatis									1				1
	Coxsackievirus A4						1							1
	Echovirus 13						1							1
	Rotavirus group A		2	5										7
合 計		18	13	20	2	4	21	33	2	2	7	1	34	157

表2 ウイルス及びクラミジアの月別分離状況 (2002年)

病原体名	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	小計
Adenovirus 1								1					1
Adenovirus 2			1										1
Adenovirus 5							1						1
Adenovirus 40/41												1	1
Coxsackievirus A4						4							4
Coxsackievirus B2										1			1
Coxsackievirus B4												1	1
Echovirus 11					1								1
Echovirus 13	1			1	2	15	29	1					49
Echovirus 18						1							1
Echovirus 30							1		1	4		3	9
Poliovirus 2										1			1
Rotavirus group A		5	7										12
Influenza virus A H1	11	4											15
Influenza virus A H3	3	1										28	32
Influenza virus B		3	10										13
Chlamidia trachomatis	3		2	1	1	1	2		1	1	1	1	14
合 計	18	13	20	2	4	21	33	2	2	7	1	34	157

# 大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向 (2002年)

成松浩志、緒方喜久代、鷺見悦子、帆足喜久雄

## Trend of Bacterial Diarrhea Surveillance in Oita Prefecture, 2002

Hiroshi Narimatsu, Kikuyo Ogata, Etsuko Washimi, Kikuo Hoashi

Key words : 細菌性下痢症 bacterial diarrhea、サルモネラ *Salmonella*、大腸菌 *E. coli*

### はじめに

前回の報告<sup>1-9)</sup>に引き続き、大分県の主に小児における細菌性散発下痢症の2002年の動向を報告する。

### 材料及び方法

2002年1月から同年12月末までに、県内の医療機関において細菌性下痢症が疑われた患者便について細菌学的検索を実施した。検査方法の詳細は前報告<sup>4-9)</sup>のとおりである。また、下痢原性大腸菌(ベロ毒素産生性大腸菌、毒素原性大腸菌、腸管組織侵入性大腸菌)の検索には、スクリーニングとしてPCR法<sup>10-11)</sup>を用いた。

なお、1つの検体から分離された菌について菌種及び血清型が同一の菌は「1株」と集計した。複数の菌種もしくは血清型の菌が1つの検体から分離さ

れた場合は、それぞれの菌種あるいは血清型ごとに「1株」と集計した。「検出率」とは検査検体数における菌陽性検体数(≡検出株数)の割合(%)とした。

### 結 果

#### 1 検査した患者の構成

検体数は延べ185検体で、男性99、女性86(男女比1.2:1)であった。検査した患者の年齢分布を図1に示す。

#### 2 下痢症起因菌の検出状況

185検体のうち115検体(62%)から124株の下痢症起因菌を検出した。検出菌の内訳は、サルモネラが最も多く60株(検出率32.4%)、次いで病原血清型大腸菌(EPEC)29株(15.7%)、カンピロバクター

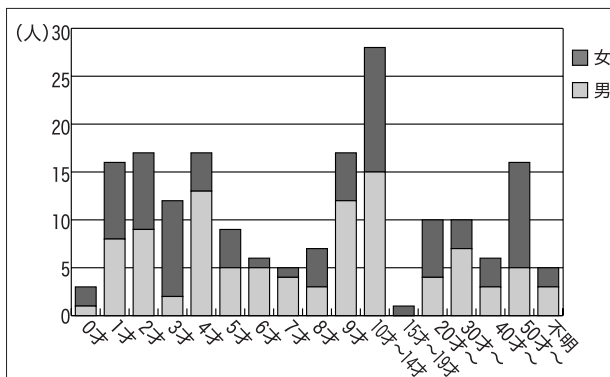


図1 患者の年齢構成 (2002年)

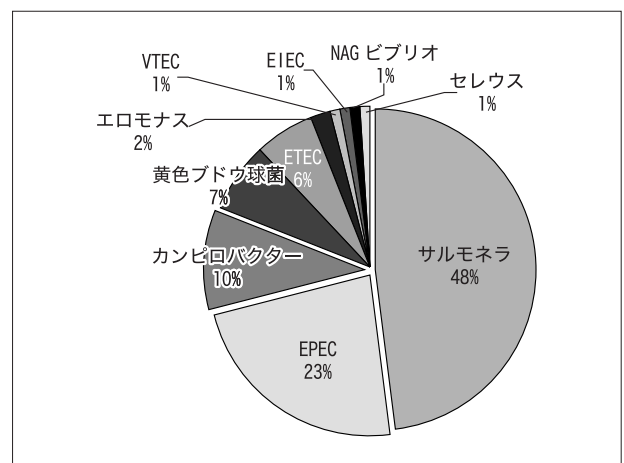


図2 検出菌の内訳

(*C. jejuni*) 13株(7%)、黄色ブドウ球菌9株(4.9%)、毒素原性大腸菌 (EPEC) 5検体 (2.7%) から7株の順であった (図 2)。他は、エロモナス 2株 (*A. caviae*)、ベロ毒素産生性大腸菌 (VTEC) O157、腸管組織侵入性大腸菌 (EIEC)、NAG ビブリオ、セレウス菌 (下痢型) が各1株であった。

黄色ブドウ球菌9株のうちコアグラゼ型は、II型が5株、III、IV、V及びVIII型が各1株であった。エンテロトキシンについては、B産生が2株、C産生が3株で、残り4株はエンテロトキシンA~D非産生であった。

複数菌検出例は6検体あった。その組合せは、カンピロバクターとEPECが2検体、カンピロバクターと黄色ブドウ球菌とエロモナス、サルモネラと黄色ブドウ球菌、EPECとエロモナスが各1検体、そして、EPECの3株同時検出例が1検体であった。

2.1 サルモネラ

サルモネラは、13種類の血清型が計60株検出された。最もよく検出された血清型は Enteritidis (SE) (32株) であった。SEは、1996年から2000年までの5年間連続でサルモネラ検出菌株数の半数以上を占め<sup>3-8)</sup>、2001年にいったん過半数を割ったものの<sup>9)</sup>、今回再びその比率が53.5%に上昇した。次いで Saintpaul 6株 (10%)、Typhimurium が5株 (8.3%)

であった。残り17株の血清型内訳は、Agona 4株、Newport 2株、Corvalis 2株、Infantis 2株、Thompson 2株、Haifa、Haddar、Anatum、Korbol、Zanzibar が各1株であった。

2.2 下痢原性大腸菌

EPEC (病原性未確認) は、8種類の血清型が計29株検出され、最も多かったのがO1で12株 (41.4%)、次いでO18が5株 (17.2%) であった。他はO119が4株、O55、O111及びO128が各2株、O86aとO126が各1株であった。

EPECは、O6 (LT及びST産生)、O25:HNM (ST産生)、O159 (ST産生) が各1株、O27 (ST産生) とO169 (ST産生) が各2株で、計7株が検出された。この内、O25、O27及びO169の3株は1検体から同時に検出された。

VTECは、血清型O157:H7 (VT1及びVT2産生) が1株検出された。

EIECは、O136:HNMが1株検出された。

3 年齢別検出状況及び男女別検出状況

年齢別の菌の検出状況を表1に示した。サルモネラはすべての年齢層から検出されている。カンピロバクターは14才以下の年齢層から検出された。EPECは0才を除くすべての年齢層から検出された。

表1 年齢層別菌検出状況 (2002年)

年 齢		0才	1~3才	4~6才	7~9才	10~14才	15才~	不明	計	
検査検体数 (患者数)		3	45	32	29	28	43	5	185	
検出菌株数計		2	34	21	21	18	26	2	124	
検出菌株内訳	サルモネラ	2	21	12	6	8	10	1	60	
	カンピロバクター		4	4	1	4			13	
	下痢原性大腸菌	EPEC		5	2	10	3	8	1	29
		ETEC					1	6		7
		VTEC				1				1
		EIEC						1		1
	黄色ブドウ球菌		4	2	2	1			9	
	エロモナス			1	1				2	
	腸炎ビブリオ								0	
	NAG ビブリオ							1	1	
エルシニア								0		
セレウス菌						1		1		

VTEC (O157:H7) は7才男性1人から検出された。患者は、粘血下痢便(10回/日)と腹痛を呈したが、発熱は微熱(37.1℃)で、HUSは起こしていない。

今回、EPECが検出された5人の内11才の女性(O159検出)を除く4人は、海外渡航(ブラジル)中から発症した29~45才の男性であった。また、EIECが検出された59才男性にも海外渡航歴(中国)があり、これらはいわゆる旅行者下痢症と考えられた。

#### 4 季節別検出状況

月別検出状況を表2に示した。前回までの報告<sup>1-9)</sup>でも示したように、全体的に夏場の検出数が多いことには変わりはない。サルモネラは、6月から10月にかけて多く検出された。EPECは、1年を通じて検出された。

表2 月別菌検出状況(2002年)

		1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	計	
検査検体数		14	11	8	4	8	20	32	25	27	21	9	6	185	
検出菌株数		7	5	6	2	6	14	22	18	13	12	7	3	115	
検出菌株内訳	サルモネラ	1	1	2		3	9	10	15	9	6	2	2	60	
	カンピロバクター	2	1	1			2	3	1	1	2			13	
	下痢原性 大腸菌	EPEC	2	2	2	2		2	9	2	3	1	3	1	29
		ETEC					1		1			5			7
		VTEC								1					1
		EIEC					1								1
	黄色ブドウ球菌	2	1	1			1		1	1		2		9	
	エロモナス								1	1				2	
	腸炎ビブリオ													0	
	NAGビブリオ								1					1	
	エルシニア													0	
セレウス菌					1								1		
検出菌株数計		7	5	6	2	6	14	24	21	15	14	7	3	124	

#### 謝 辞

検体採取に御協力頂いた医療機関の諸先生に深謝致します。

#### 参 考 文 献

- 1) 成松浩志、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(1985-1994年). 大分県衛生環境研究センター年報, 22, 27-40 (1994)
- 2) 成松浩志、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(1995年). 大分県衛生環境研究センター年報, 23, 53-56 (1995)
- 3) 成松浩志、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(1996年). 大分県衛生環境研究センター年報, 24, 73-76 (1996)
- 4) 緒方喜久代、成松浩志、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(1997年). 大分県衛生環境研究センター年報, 25, 87-88 (1997)
- 5) 阿部義昭、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベイランスの動向(1998年). 大分県衛生環境研究センター年報, 26, 79-80 (1998)
- 6) 阿部義昭、高野美千代、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サー



- ベランスの動向 (1999年). 大分県衛生環境研究センター年報, 27, 98-100 (1999)
- 7) 阿部義昭、高野美千代、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向 (2000年). 大分県衛生環境研究センター年報, 28, 86-88 (2000)
- 8) 成松浩志、阿部義昭、高野美千代、緒方喜久代、帆足喜久雄：大分県における細菌性下痢症サーベランスの動向 (2001年). 大分県衛生環境研究センター年報, 29, 67-70 (2001)
- 9) 成松浩志、緒方喜久代、淵 祐一、帆足喜久雄：大分地方における散発下痢症の細菌学的研究, 1985~1996年. 感染症学雑誌, 71, 644-651 (1997)
- 10) 伊藤文明、荻野武雄、伊藤健一郎、渡辺治雄：混合プライマーを用いたPCR法による下痢原性大腸菌の同時検出法. 日本臨床, 50, 343-347 (1992)
- 11) 伊藤文明、山岡弘二、荻野武雄、神辺眞之：下痢原性大腸菌のPCR法, 臨床病理, 43, 772-775 (1995)

# 食品の微生物学的検査成績について (2002年度)

緒方喜久代、成松浩志、鷺見悦子、小河正雄

## Microbiological Examination of Foods, 2002

Kikuyo Ogata, Hiroshi Narimatsu, Etuko Washimi, Masao Ogawa

Key words : 微生物学的検査 microbiological examination、取去食品 distribution foods

### はじめに

年間取去計画に基づいて取去した2002年度の食品の微生物学的検査成績について報告する。

められた方法により、規格基準のない食品及び抗生物質については、大分県検査実施標準作業書に基づいて検査した。

### 結 果

#### 材料および方法

2002年4月から2003年3月の間、県下5ブロックの食品衛生監視機動班が取去した食品 205 件について微生物学的検査を行った。

規格基準のある食品については、食品衛生法で定

表1に示すとおり、205検体中30検体 (14.6%) が微生物学的検査において不適合であった。

なお、分離された *V. cholerae* non 01 についてはコレラ毒素産生試験を実施したが、いずれの株もコレラ毒素は産生しなかった。また、全ての *V. cholerae* non 01 は *V. cholerae* 0139 の抗血清にも凝集は認められなかった。

表1 食品の細菌検査成績 (2002年度)

検査検体名	検体数	陽性検体数	検査項目及び検出・不適合検体数														
			S R S V	大腸菌群	大腸菌	病原大腸菌	黄色球菌	サルモネラ	カンピロバクター	ビブリオ	ジウム属	エンテロトキシン	ラ菌	エロモナ	ス属	抗生物質	
県産食肉	35	2				1 注1)		1 注2)	0								
県産鶏肉	24	14				0		6 注3)	11 注4)								
県産養殖魚	19	0															0
県産鶏卵	10	0						0									0
魚介類加工品 (刺身)	10	2								1 注5)						1 注6)	
県産食肉製品	10	0			0		0	0			0						
県産ミネラルウォーター	10	0		0										0			
牛乳・加工乳	10	0											0				
生食用肉	9	1				1 注7)		0	0							0	
輸入食肉	26	0															0
輸入エビ	12	11								11 注8)							
輸入魚介類	10	0															0
生食用二枚貝	20	0															
計	205	30	0	0	0	2	0	7	11	13	0	0	0	0	1	0	

注1 VTEC (OUT ; VT2vp1, ST I a)

注2 *Salmonella* Bareilly (07:y:1,5)

注3 *Salmonella* Infantis (07:r;1,5), *Salmonella* Manhattan (06,8:d;1,5)

注4 *Campylobacter jejuni*

注5 *Vibrio parahaemolyticus*, *Vibrio fluvialis*

注6 *Aeromonas hydrophila*

注7 VTEC (0146 ; VT2)

注8 *Vibrio cholerae* non 01, *Vibrio parahaemolyticus*, *Vibrio mimicus*, *Vibrio vulnificus*

## 九州地方において1993~2002年の10年間に分離された 臨床由来A群溶血レンサ球菌の菌型推移

緒方喜久代、鷺見悦子、成松浩志、増本喜美子\*<sup>1</sup>、久高 潤\*<sup>2</sup>

### T-type Distribution of Group A Hemolytic Streptococci Clinical Isolated in Kyushu 1993-2002

Kikuyo Ogata, Etsuko Washimi, Hiroshi Narimatsu,  
Kimiko Masumoto \*<sup>1</sup>, Jun Kudaka \*<sup>2</sup>

Key words : A 群溶連菌 group A Streptococci、血清型別 sero-typing、T 型 T-type

#### はじめに

1991年度以来、九州地区では地方衛生研究所のレファレンス業務の一環として、九州ブロック溶血菌感染症共同調査要領<sup>1)</sup>に基づき、共同でA群溶血レンサ球菌感染症の調査<sup>2) - 6)</sup>を行っている。今回、1993から2002年の10年間にわたるA群溶血レンサ球菌(以下A群溶レン菌)のT型別分離状況をまとめたので報告する。

#### 材料及び方法

##### 1 材料

1993-2002年に佐賀県、大分県及び沖縄県の各医療機関定点で採取された臨床材料から、各地方衛生研究所で分離または群・型別したA群溶レン菌5,008株を材料に用いた。その内訳は大分県が2,823株、佐賀県が1,256株、沖縄県が929株である。

##### 2 血清学的検査

血清学的群別及び型別は、市販の免疫血清(デンカ生研)を用いてスライド凝集反応により実施した。

#### 結果及び考察

##### 1 九州地方におけるA群溶レン菌のT型分布の年次推移

九州地方におけるA群溶レン菌のT型分布を表1

に示した。各年の分離株数は、378~702株で平均500株であった。分離株のT血清型は17種類で、分離頻度が高かった順にT12型1,191株(23.8%)、T4型876株(17.5%)、T1型734株(14.7%)であり、これら3菌型で分離株の56.0%を占めた。全国のT型別分離状況においても同様の傾向が見られた<sup>7) - 9)</sup>。以下、T28型443株(8.8%)、T2型359株(7.2%)、T3型280株(5.6%)、TB3264型269株(5.4%)、T6型193株(3.9%)、T22型168株(3.4%)、T11型111株(2.2%)の順で検出された。

次に、九州地区のT型別の年次推移を図1に示した。T型別の経年変化を見てみると、T1型は1993年、1998年および2002年、T12型は1995年、2000年および2001年流行し、4~5年間隔で数種の菌型が交代し、T4型は1993年および1994年に分離株の約40%を占める流行後、経年的に10~15%の分離頻度で推移している。T2型は1998年および1999年に、T3型は1996年に大流行が見られたが、両菌型ともその後激減し、T3型は2000年には分離されなくなった。全国的には、T1型は1992年、1997年および2001年に、T4型は1992年および1993年に、T3型は1992年から1994年にかけて大流行しており<sup>10)</sup>、九州地区における新しい流行菌型は、全国の動向と比較して1~2年遅れで分離されてくると推察される(図2)。

##### 2 大分県におけるA群溶レン菌のT型分布の年次推移

大分県におけるA群溶レン菌のT型分布を表2に、同年次推移を図3に示した。主な流行菌型はT12型

\*<sup>1</sup>佐賀県衛生薬業センター、\*<sup>2</sup>沖縄県衛生環境研究所

で797株28.2%を占め、次にT 4型534株18.9%、T 1型435株15.4%、T 2型289株10.2%であった。これら上位4菌型で全体の72.7%を占めた。T型別の経年変化を見てみると、T 1型は1993年、1998年および2000年、T2型は1995年から1997年、2000年から2002

年流行し、T 4型は1993年から1995年に分離株の約30~40%を占める流行後、経常的に10~15%の分離頻度で推移している。T 2型は1999年に、T 3型は1996年に流行が見られたが、両菌型ともその後激減し、T 3型は2000年には分離されなくなった。

表1 九州地区の推移 (1993年~2002年)

群・ T型別	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	計	%	
A 群	T-1	86	44	22	34	130	150	48	95	52	73	734	14.7
	T-2				8	34	126	135	37	15	4	359	7.2
	T-3	2	70	32	122	44	8	2				280	5.6
	T-4	141	196	90	64	59	102	73	39	39	73	876	17.5
	T-6		10	8	15	66	64	22	3	2	3	193	3.9
	T-11	10	25	20	9	14	7	8	8	6	4	111	2.2
	T-12	45	128	181	139	138	120	51	159	127	103	1191	23.8
	T-22	12	22	43	29	13	8	5	19	12	5	168	3.4
	T-28	34	48	34	62	87	57	34	34	26	27	443	8.8
	T-B3264	40	52	29	8	10	10	13	38	36	33	269	5.4
	その他のT型	4		11	14	27	36	23	46	41	26	228	4.6
	型別不能	15	13	5	3	13	14	23	19	24	27	156	3.1
	T型別の計	389	608	475	507	635	702	437	497	380	378	5008	
(%)	7.8	12.1	9.5	10.1	12.7	14.0	8.7	9.9	7.6	7.5		100.0	

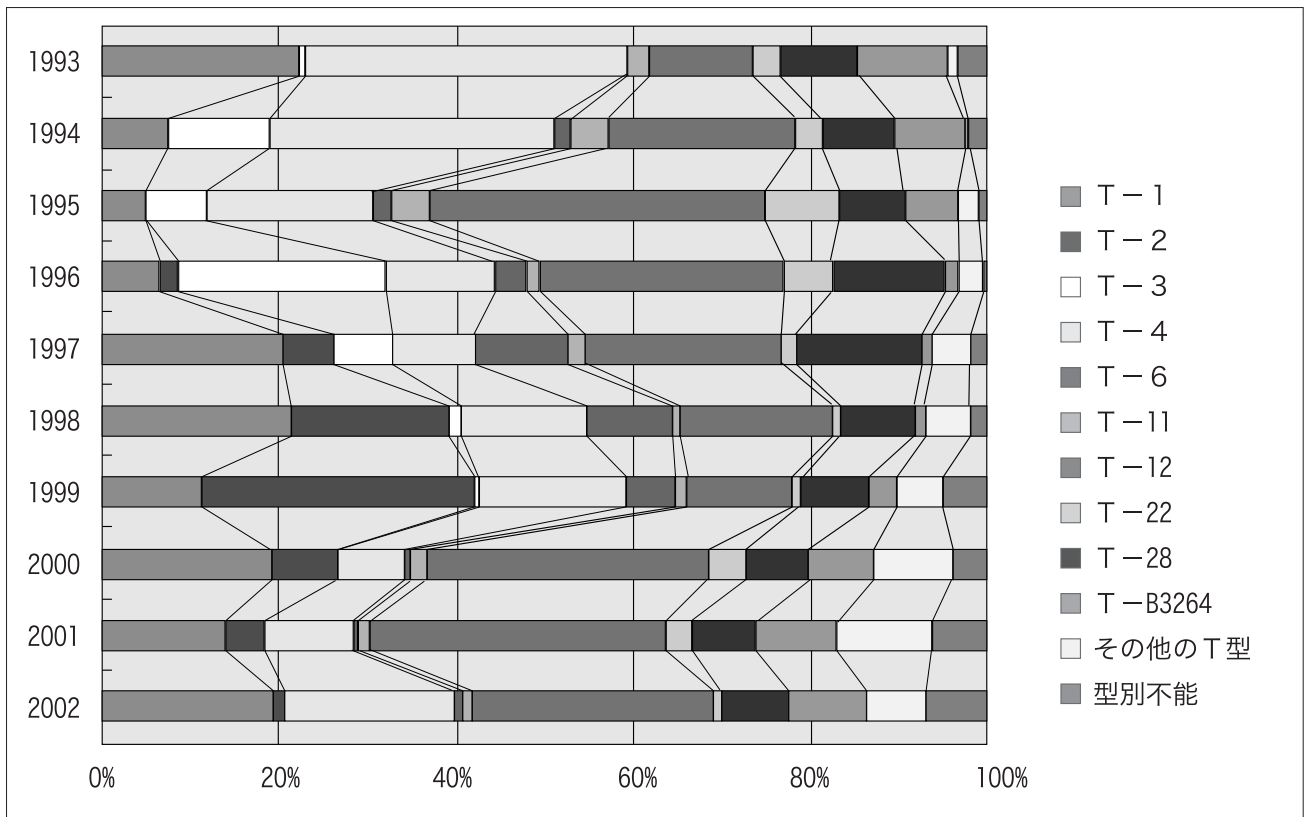


図1 九州地区の推移 (1993~2002)

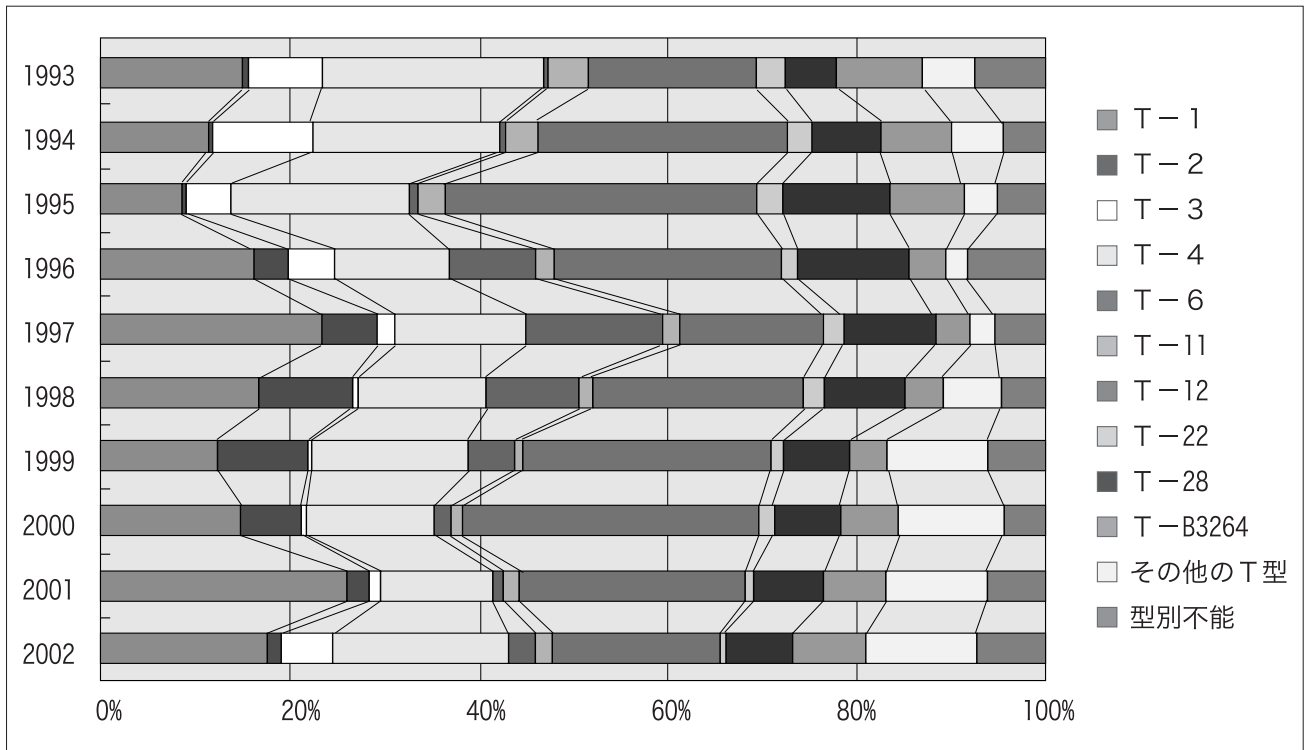


図2 全国の推移 (1993~2002)

### 3 佐賀県におけるA群溶レン菌のT型分布の年次推移

佐賀県におけるA群溶レン菌のT型分布を表3に、同年次推移を図4に示した。主な流行菌型はT12型で260株20.7%を占め、次にT4型238株18.9%、T1型186株14.8%、T28型167株13.3%であった。これら上位4菌型で全体の67.7%を占めた。T型別の経

年変化を見てみると、T1型は1997年、2001年および2002年、T12型は1995年から1996年、2000年から2001年に流行し、T4型は1993年に分離株の約50%を占める流行後、経常的に10~15%の分離頻度で推移していたが、2001年、2002年と増加傾向にある。T28型は1996年から1997年に20%を超えるやや大きな流行が見られた。

表2 大分県の推移 (1993年~2002年)

群・T型別	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	計	%	
A群	T-1	42	38	14	20	52	106	34	83	26	20	435	15.4
	T-2				1	7	102	129	36	13	1	289	10.2
	T-3		45	21	94	35	6	1				202	7.2
	T-4	66	135	76	39	39	68	49	9	15	38	534	18.9
	T-6			8	10	21	34	17	3	1	1	95	3.4
	T-11	2	11	9	1	2				1	1	27	1.0
	T-12	21	76	92	101	116	87	29	83	104	88	797	28.2
	T-22	4	4		2	3	2					15	0.5
	T-28	9	17	15	32	40	36	17	19	11	6	202	7.2
	T-B3264	17	17	2	2	4	7	7	10	3	9	78	2.8
	その他のT型					5	16	2	19	27	15	84	3.0
	型別不能	6	5	2		9	10	2	5	10	16	65	2.3
T型別の計	167	348	239	302	333	474	287	267	211	195	2823		
(%)	5.9	12.3	8.5	10.7	11.8	16.8	10.2	9.5	7.5	6.9		100.0	

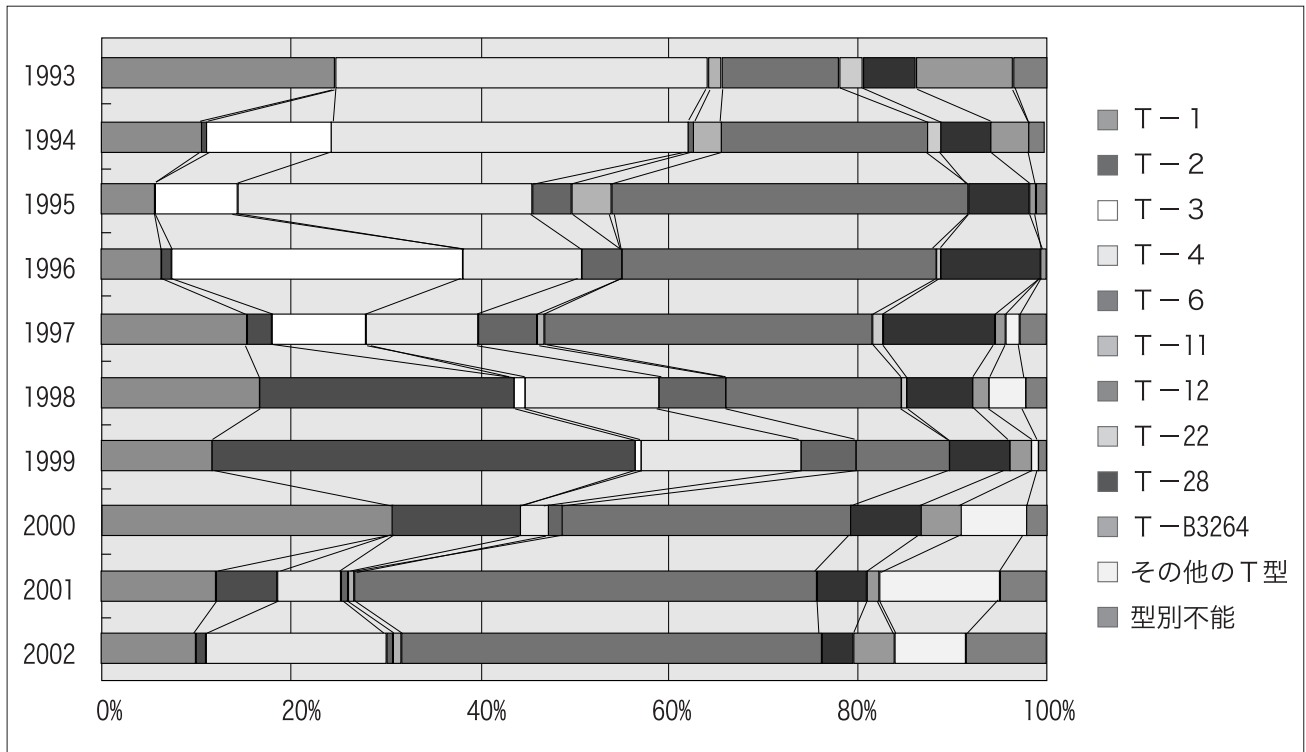


図3 大分県の推移 (1993~2002)

4 沖縄県におけるA群溶レン菌のT型分布の年次推移

沖縄県におけるA群溶レン菌のT型分布を表4に、同年次推移を図5に示した。主な流行菌型はT12型で134株14.4%を占め、次にT22型131株14.1%、T1型112株12.1%、T B3264型111株11.9%、T4型103株11.1%であった。これら上位5菌型で全体の63.6%

を占めた。T型別の経年変化を見てみると、T1型は1993年、1997年から1998年および2002年、T12型は1995年、1998年に流行し、T22型は1995年に分離株の約30%を占める流行後、経常的に10~15%の分離頻度で推移している。T3型は1996年に流行が見られたが、その後激減し、1999年には分離されなくなった。T B3264型は1994年に小流行が見られた以降は数%の分離頻度で推移していたが、2000年から2002年にか

表3 佐賀県の推移 (1993年~2002年)

群・T型別	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	計	%	
A群	T-1	21	4	6	6	55	30	9	5	16	34	186	14.8
	T-2					19	20	6	1	1		47	3.7
	T-3		22	8	5	4	1	1				41	3.3
	T-4	65	59	7	7	12	27	11	2	16	32	238	18.9
	T-6		10		3	19	26	4			2	64	5.1
	T-11	3	13	2	2	3	4	2			2	31	2.5
	T-12	8	45	56	19	13	13	16	64	18	8	260	20.7
	T-22	6	13				1	1	2			23	1.8
	T-28	15	26	3	20	41	21	17	6	5	13	167	13.3
	T-B3264	13	28	18	4	4	2	3	1	3	4	80	6.4
	その他のT型	1		1	2	19	20	18	15	5	7	88	7.0
	型別不能	2	4			1	2	3	4	7	8	31	2.5
T型別の計	134	224	101	68	190	167	91	100	71	110	1256		
(%)	10.7	17.8	8.0	5.4	15.1	13.3	7.2	8.0	5.7	8.8		100.0	

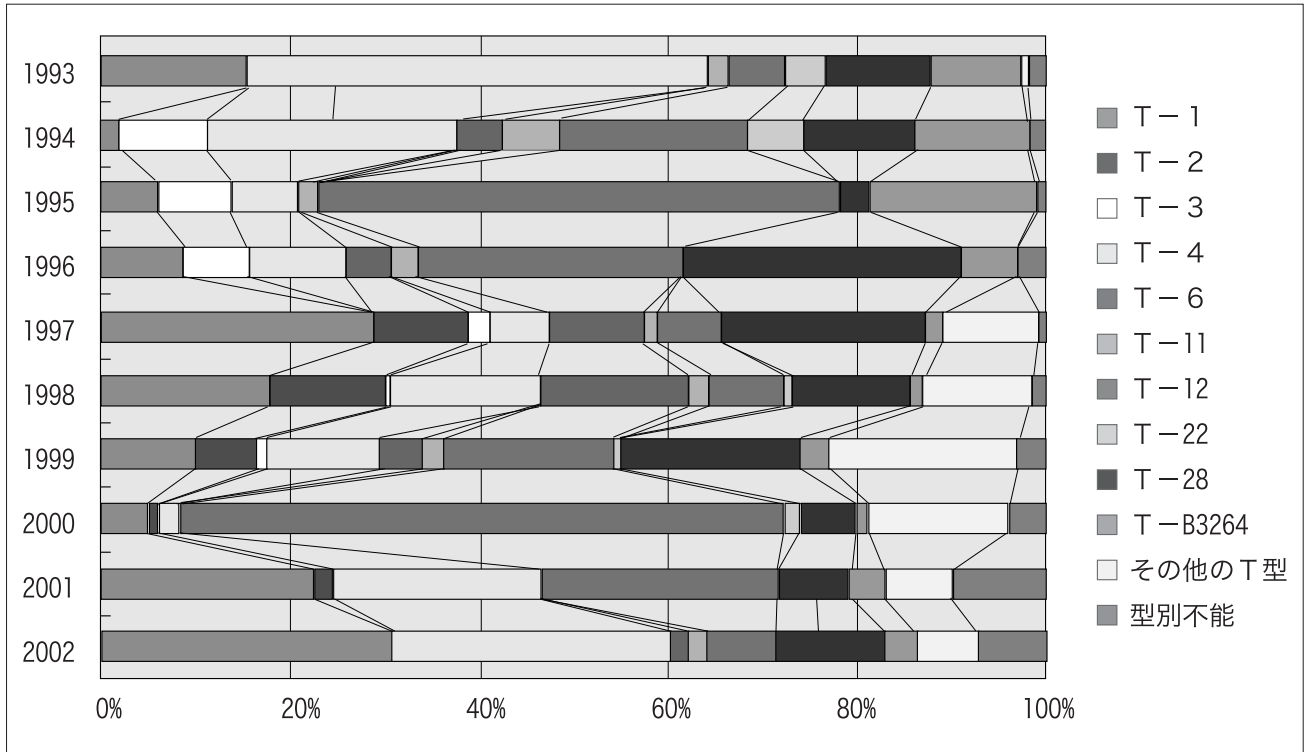


図4 佐賀県の推移 (1993~2002)

けて増加傾向にある。大分県、佐賀県が全国の推移とほぼ類似した流行動向を示したのに対し、沖縄県では、T22型や T B3264型の流行に見られるように、他とは異なる様相を呈した。

謝 辞

検体採取に御協力頂きました1993-2002年の結核・感染症サーベイランス定点等医療機関の先生方、並びに検査関係者の皆様に深く感謝いたします。

表4 沖縄県の推移 (1993年~2002年)

群・T型別	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	計	%	
A 群	T-1	19	9	7	5	14	23	8	2	2	23	112	12.1
	T-2	3	1			4	8	7				23	2.5
	T-3					1	5	23	3	3	2	37	4.0
	T-4	3	8	27	13	7	8	18	7	2	10	103	11.1
	T-6		1	1	1	4	26	2				35	3.8
	T-11	1	5	8	6	3	9	6	9	1	5	53	5.7
	T-12	7	5	12	6	20	9	19	33	7	16	134	14.4
	T-22	5	13	17	4	5	10	27	43	5	2	131	14.1
	T-28	8	11	10			6	10	16	5	10	76	8.2
	T-B3264	20	30	27	3	1	2	2	9	7	10	111	11.9
	その他のT型	4	8	9	3		3	12	10		3	52	5.6
	型別不能	3	7	12	18	2	3	3	3	4	7	62	6.7
T型別の計	73	98	130	59	61	112	137	135	36	88	929		
(%)	7.9	10.5	14.0	6.4	6.6	12.1	14.7	14.5	3.9	9.5		100.0	

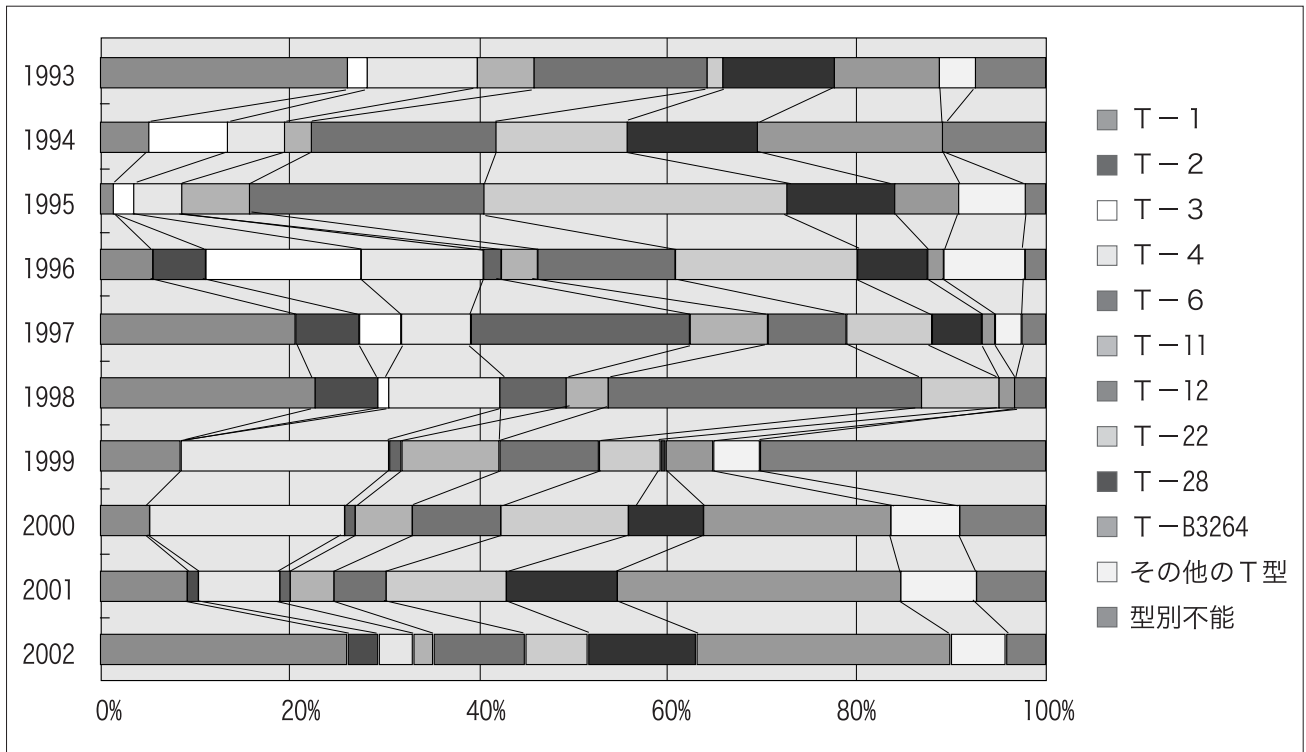


図4 沖縄県の推移 (1993~2002)

参 考 文 献

- 1) 帆足喜久雄：第17回九州衛生公害技術協議会講演要旨集, p120(1991)
- 2) 瀧 祐一、出 美規子、中曾根民男、古賀由恵、帆足喜久雄：九州地方におけるA群溶血レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について(1991~1992年),大分県衛生環境研究センター年報,20,74-80(1992)
- 3) 瀧 祐一、角 典子、久高 潤、古賀由恵、加野成明、帆足喜久雄：九州地方におけるA群溶血レンサ球菌の血清型と薬剤感受性について(第2報)(1993~1994年),大分県衛生環境研究センター年報,22,41-46(1994)
- 4) 瀧 祐一、角 典子、久高 潤、加野成明、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型別について(1995年)(第3報),大分県衛生環境研究センター年報,23,50-52(1995)
- 5) 瀧 祐一、諸石早苗、久高 潤、加野成明、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型別について(1996-1997年)(第4報),大分県衛生環境研究センター年報,25,81-86(1997)
- 6) 阿部義昭、諸石早苗、久高 潤、加野成明、高野美千代、緒方喜久代、瀧 祐一、帆足喜久雄：九州地方における臨床由来溶血レンサ球菌の血清型別について(1998-1999年)(第5報),大分県衛生環境研究センター年報,27,93-97(1999)
- 7) 勝川千尋、原田七寛、中曾根知恵：1967年から1987年の21年間に大阪府下で分離されたA群溶血レンサ球菌について 第I編 流行菌型の推移,感染症学雑誌,61,1257-1264(1989)
- 8) 村井貞子、石井恵子、徳丸 実：松山市内の一小児科クリニックにおける溶血菌感染症の長期観察,第33回レンサ球菌感染症研究会学術講演会抄録集,2000
- 9) 滝沢慶彦、坂本裕美子、オリベラ恵、高橋俊司：札幌市におけるβ溶血レンサ球菌臨床分離株の菌型分布に関する長期的観察 I. A群溶血レンサ球菌T型分布の31年間の推移,感染症学雑誌,75,167-173(2001)
- 10) 衛生微生物技術協議会第24回研究会レファレンスセンター関連会議資料(2002年7月,福岡市)



# 大分県における雨水成分調査 (2002年度)

仲摩 聡、山下佳史

## Ion Components of Rainwater in Oita Prefecture, 2002

Satoshi Nakama, Yoshifumi Yamashita

Key words : 雨水 rainwater、酸性降下物 acid deposition、水素イオン濃度 pH

### はじめに

当センターでは、雨水の化学的性状を把握し酸性雨発生機構解明の基礎資料を得るため、1985年度から継続して雨水成分調査を行っている。今回は、県内の3箇所で行っているろ過式採取法による調査について、2002年度のpH、雨水成分及び成分沈着量の状況とそれらの推移などを報告する。

### 調査方法

#### 1 調査地点

- ①大分市：大分市芳河原台2-51  
大分県衛生環境研究センター  
北緯 33° 13′ 東経 131° 35′  
標高約20m

大分市は、約43万9千人の人口を抱える県下随一の都市である。北部には臨海工業地帯（当センターから北北東に約14km）があり、鉄鋼や石油化学等の工場が立地している。

当センターは市の中心から南南西約10kmに位置している。周囲は閑静な住宅地域で、南方約1kmに交通量の多い国道10号線が通っている。（※当センターは2003年2月に大分市高江西2-8に移転したが、2002年度は同一地点で調査を継続した。）

- ②日田市：日田市大字有田字佐寺原  
大分県林業試験場  
北緯 33° 20′ 東経 130° 57′  
標高約159m

日田市は、周囲を標高1,000m級の山々に囲まれ

た盆地に開けた都市である。市の北西約50kmに福岡市があり、東北東約50kmには阿蘇山が座している。

当試験場は、市の中心から2kmほど離れた山間部に位置している。周囲は山林に囲まれ、特に大きなばい煙の発生源はない。

- ③久住町：直入郡久住町大字久住字拓木  
国設大分久住酸性雨測定所  
北緯 33° 02′ 東経 131° 15′  
標高約560m

久住町は、九州のほぼ中央部に広がる高原の町である。久住山の北西斜面には硫黄山があり、少量の硫黄性ガスを噴出している。

当測定所は阿蘇くじゅう国立公園内にあり、九州本土最高峰の久住山中岳の南面の麓に位置している。周囲には牧草地帯が広がり、キャンプ場などの保養施設がある。約30m南方に国道442号が通っているが、交通量はあまり多くない。

#### 2 試料採取方法及び分析方法

試料の採取は、ろ過式採取装置により月曜日の9時を基準として1週間ごとの雨水を採取する方法を用いた（ただし、久住町では2週間ごとに採取した。）。試料の分析は、環境省地球環境局環境保全対策課及び（財）酸性雨研究センターが作成した湿性沈着モニタリング手引き書に準じて、以下のとおり行った。

測定項目のうち、pH及び電気伝導率（EC）は、原則として採取した日にpH計及び電気伝導率計を用いて測定した。その他の項目（雨水中のCl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、K<sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>濃度）については、試料を約4℃で冷蔵保存した後にイオンクロマトグラフ法により分析を行った。

## 調査結果

## 1 2002年度の状況 (短期的評価)

## 1.1 降雨量について

2002年度の降雨量は、表1のとおりである。大分市1,144mm、日田市1,159mm、久住町1,647mmであり、各地点ともに前年度よりも降雨量が少なかった。

## 1.2 pHについて

pHの降雨量加重年平均値(以下「年平均値」という。)を表1に示す。2002年度の年平均値は、大分市4.60、日田市4.61、久住町4.67であった。

1週間降雨(久住町は2週間)の測定値によるpHの分布状況は、図1のとおりである。大分市ではpHが4.8~5.0の範囲の降雨が最も多かった。大部分が4.2~5.0の範囲にあったが、一部ではpHが4.0未満や6.0以上の降雨も見られた。日田市ではpHが4.2~

表1 雨水pHの経年変化

地 点	年度	雨水pH			試料数	降雨量 mm	備考
		平均値	最大値	最小値			
大分市	1989	4.50	6.17	3.94	31	1543	11、12月採取不可
	1990	4.57	6.56	4.08	38	1505	
	1991	4.42	6.31	3.92	42	2096	
	1992	4.57	6.42	3.80	38	1208	
	1993	4.75	5.81	3.94	41	2842	
	1994	4.47	6.20	3.68	34	1152	
	1995	4.68	7.59	4.15	33	1251	
	1996	4.59	6.11	3.84	37	1217	
	1997	4.81	6.81	4.16	43	1807	
	1998	4.64	6.84	4.01	37	1451	
	1999	4.72	6.98	3.44	38	1833	
	2000	4.60	7.10	4.11	37	1313	
	2001	4.55	6.91	4.00	40	1404	
2002	4.60	6.16	3.90	33	1144		
日田市	1989	4.45	4.98	3.90	41	1131	5月から開始  2、3月採取不可
	1990	4.55	6.01	3.75	45	1156	
	1991	4.59	7.04	4.00	44	1881	
	1992	4.51	5.99	3.95	39	1170	
	1993	5.06	6.84	3.69	42	2400	
	1994	4.76	7.06	4.03	34	900	
	1995	4.76	8.24	3.97	39	1805	
	1996	4.59	5.75	4.33	42	1512	
	1997	4.90	6.70	4.01	33	1906	
	1998	4.68	6.28	4.10	41	1461	
	1999	4.81	6.58	3.96	37	1813	
	2000	4.82	7.08	4.00	43	1875	
	2001	4.67	7.30	3.53	44	1822	
2002	4.61	5.89	4.04	34	1159		
久住町	1994	4.51	5.61	3.91	18	664	5月から開始
	1995	4.73	6.24	4.15	24	2000	
	1996	4.83	6.93	4.33	25	1799	
	1997	5.00	7.63	4.05	26	2518	
	1998	4.85	6.27	4.10	23	1632	
	1999	4.81	7.21	3.93	25	2032	
	2000	4.77	7.16	4.29	23	1852	
	2001	4.70	6.58	4.07	26	1818	
2002	4.67	6.71	4.19	25	1647		

注) 平均値とは、降雨量加重年平均値のことを指す。

5.6までの間に幅広く分布していた。久住町では、年平均値付近の4.4~4.8の範囲の降雨が多かったが、pHが6付近の降雨も見られた。

### 1.3 成分沈着について

2001年度と比較すると各地点ともに降雨量が減少したにもかかわらず、総沈着量が増加した。これに伴い、各地点とも雨水の電気伝導率が上昇した。

大分市では、 $\text{NO}_3^-$ の沈着量が多かった。これは、産業活動が活発であることや自動車の交通量が多いことと関連があると思われる。また、 $\text{Na}^+$ や $\text{Cl}^-$ の沈着量が多く、海塩由来の成分の沈着が多いことが伺われる。日田市では、 $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{K}^+$ の沈着量が多かったが、

理由は不明である。久住町では、他地点と比べて特に沈着量が多い成分はなかった。

(表2, 表3, 図2, 図3, 図4参照)

### 1.4 酸性化成分及び中和成分と pH の関係

降水の酸性化に寄与する成分は、主に $\text{HNO}_3$ と $\text{H}_2\text{SO}_4$ であり、中和に寄与する成分は主にカルシウム(塩)及びアンモニアであると考えられている。降水中では、強酸である $\text{HNO}_3$ 及び $\text{H}_2\text{SO}_4$ は完全電離していると考えられるので、 $\text{HNO}_3$ 及び $\text{H}_2\text{SO}_4$ によって供給される $\text{H}^+$ の量(eq)は、 $\text{NO}_3^-$ の量(eq)と $\text{SO}_4^{2-}$ の量(eq)の和に等しいとみなせる。また、降水のpHが酸性側に偏っていることを考えると、降水中ではカ

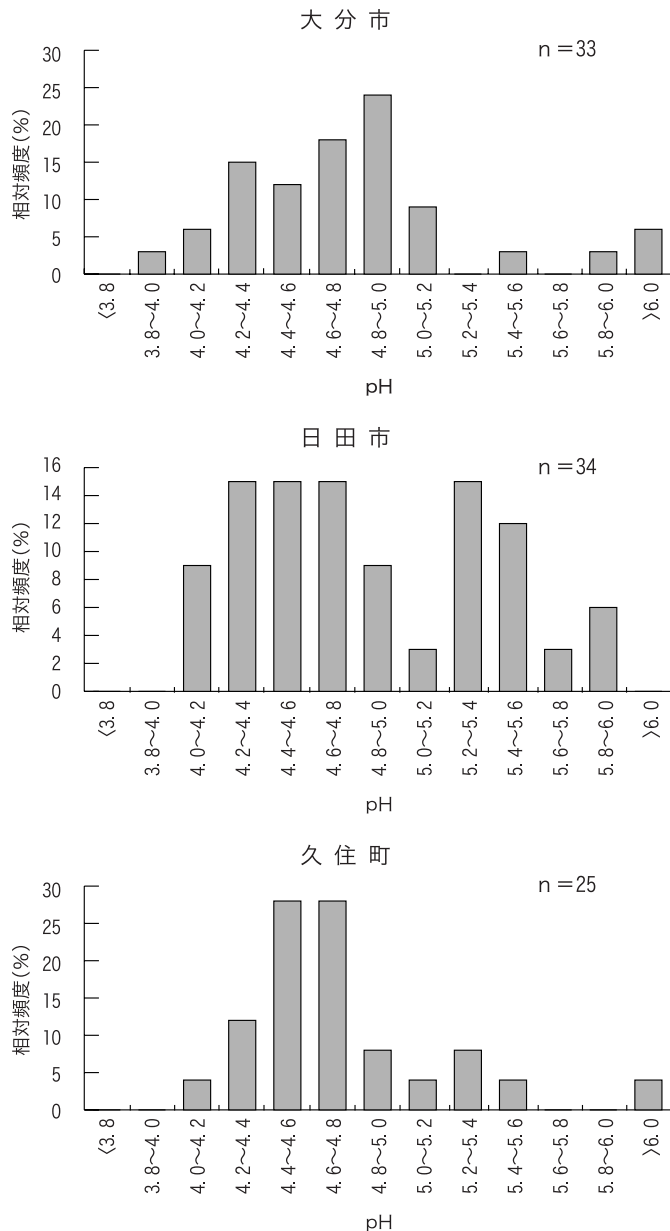


図1 2002年度 雨水の pH 分布

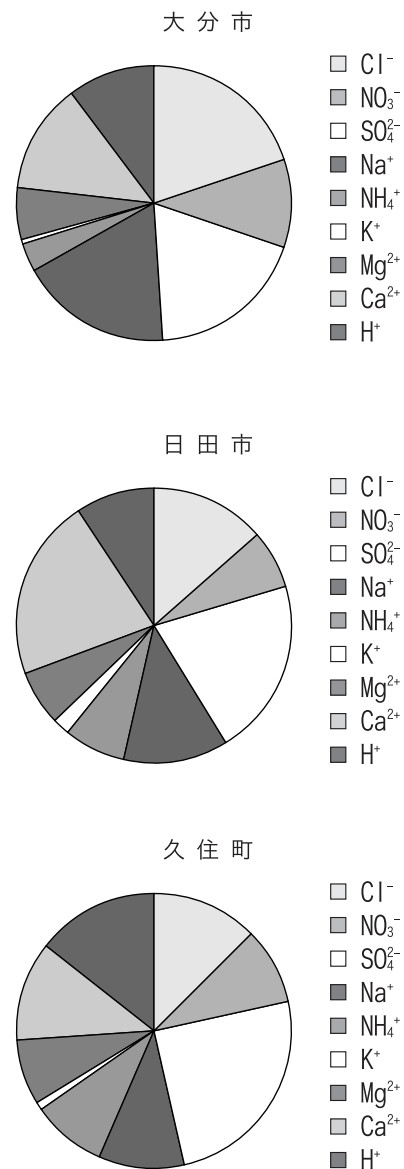


図2 2002年度 沈着量の等量比

ルシウム (塩) 及びアンモニアは、主に  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{NH}_4^+$  という形態で存在していると考えられる。従って、カルシウム (塩) 及びアンモニアによって消費される  $\text{H}^+$  の量 (eq) は、 $\text{Ca}^{2+}$  の量 (eq) と  $\text{NH}_4^+$  の量 (eq) の和に等しいとみなせる。ここで、鶴田らの提唱に従って、酸性化ポテンシャル AP, 中和ポテンシャル NP を以下のように定義する<sup>1)</sup>。

$$\text{AP} = [\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$$

$$\text{NP} = [\text{nss-Ca}^{2+} + \text{NH}_4^+] \quad (\text{注1, 注2, 注3})$$

pH は、 $\text{pH} = -\log [\text{a}_{\text{H}^+}]$  で定義される量であり、近似的には、 $\text{pH} \approx -\log [\text{H}^+] = -\log [\text{H}_3\text{O}^+]$  であると考えられる。 $[\text{H}^+]$  は酸と塩基の濃度のバランスによって決まるので、pH の値を降水中の AP 及び NP と関連づけることが可能である。

$$\text{ここで、} \quad A_i = \text{AP} = [\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$$

$$\text{p}A_i = -\log [A_i]$$

$$D_i = [\text{AP} - \text{NP}]$$

$$\text{p}D_i = -\log [D_i]$$

と定義すると、 $\text{p}A_i$  は、降水中に中和成分がないと仮定したときの pH (酸性化が最も進んだときの pH, 潜在的な pH)、 $D_i$  は実際の  $[\text{H}^+]$ ,  $\text{p}D_i$  は実際の pH に対応する指標であると考えられる<sup>1)</sup>。ここでは、 $\text{p}A_i$  及び  $\text{p}D_i$  を算出して、2002年度における大分市と久住町の pH についての検討を試みた。

大分市の  $\text{p}A_i$  は4.18、 $\text{p}D_i$  は4.55であった。また、 $[\text{H}^+ \text{計算値}] / [\text{H}^+ \text{実測値}] = [D_i] / [\text{H}^+]$  は1.12 であり、 $\text{p}D_i$  は実測の pH よりもやや低くなった。2002年度における大分市の測定値では  $[\text{nss-Mg}^{2+}]$  がやや高かった (計算上、 $[\text{nss-Mg}^{2+}]$  の沈着量は、5.7meq/m<sup>2</sup>であった。) ことや33試料中22試料で  $[D_i] / [\text{H}^+]$  の値が1より大きかったことから、実際の降水では土壌成分などに由来する  $\text{nss-Mg}^{2+}$  による中和が行われている可能性が考えられる。一方、久住町の  $\text{p}A_i$  は4.31、 $\text{p}D_i$  は4.73であった。また、 $[D_i] / [\text{H}^+]$  は0.87 であり、 $\text{p}D_i$  は実測の pH よりもやや高くなった。これは、久住町の降水が  $\text{NO}_3^-$  と  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  以外の酸性化成分

の影響を受けている可能性を示唆していると思われるが、今後の検討課題としたい (注4)。

**(注1) [X] の表記について**

[X]は物質Xの当量濃度eq/Lを示すものとする。

**(注2) 酸と塩基について**

ここではブレンステッド-ローリーの定義に従い、 $\text{H}^+$  を与える物質を酸、 $\text{H}^+$  を受け取る物質を塩基とした。

**(注3) 海塩由来の成分と非海塩由来の成分**

海水の pH は8程度であり、降水中の pH の値には影響を与えないと考えられている。このため、降水の酸性化について考える際には、海塩由来の成分を除外して考えることが多い (ただし、 $\text{NO}_3^-$  と  $\text{NH}_4^+$  については、非海塩成分が大部分を占めると考えられている。) 。なお、nss- は non-sea salt (非海塩由来の) の略である。

**(注4) 久住町における [nss-Cl<sup>-</sup>] について**

$\text{nss-Cl}^-$  の評価は容易ではないが、 $\text{Na}^+$  の供給源が海塩以外にもあることや大気中での反応により  $\text{Cl}^-$  が  $\text{HCl}$  ガスなどに変化することなどにより、雨水中の  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  比は海水中よりも小さくなることが多い。そのため、海塩中の  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  比を基にして算出した  $[\text{nss-Cl}^-]$  は計算上0 (以下) であることが多い (例えば2002年度の大分市の年平均値では、 $[\text{nss-Cl}^-]$  は0である。)

しかし、2002年度の久住町では、 $[\text{nss-Cl}^-]$  の年平均値が正の値である (計算上、 $[\text{nss-Cl}^-]$  の沈着量は1.9meq/m<sup>2</sup>であった。)。このことから、火山性の  $\text{HCl}$  ガスが雨水中に溶解込み、降水の酸性化に寄与している可能性も考えられる。なお、 $[\text{nss-Cl}^-]$  の年平均値の算出は、 $[\text{Na}^+]$  の年平均値と  $[\text{Cl}^-]$  の年平均値を用いて行っている。

**2 pH の変化及び降水の質的比較 (長期的評価)**

**2.1 pH について**

大分市では、1997年度に極大値を記録するまで、緩やかな上昇傾向が見られたが、1999年度以降は緩

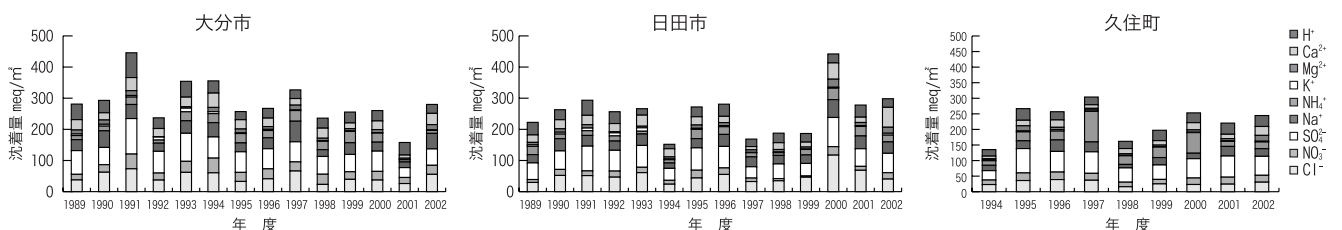


図3 雨水成分沈着量の経年変化 (地点別)

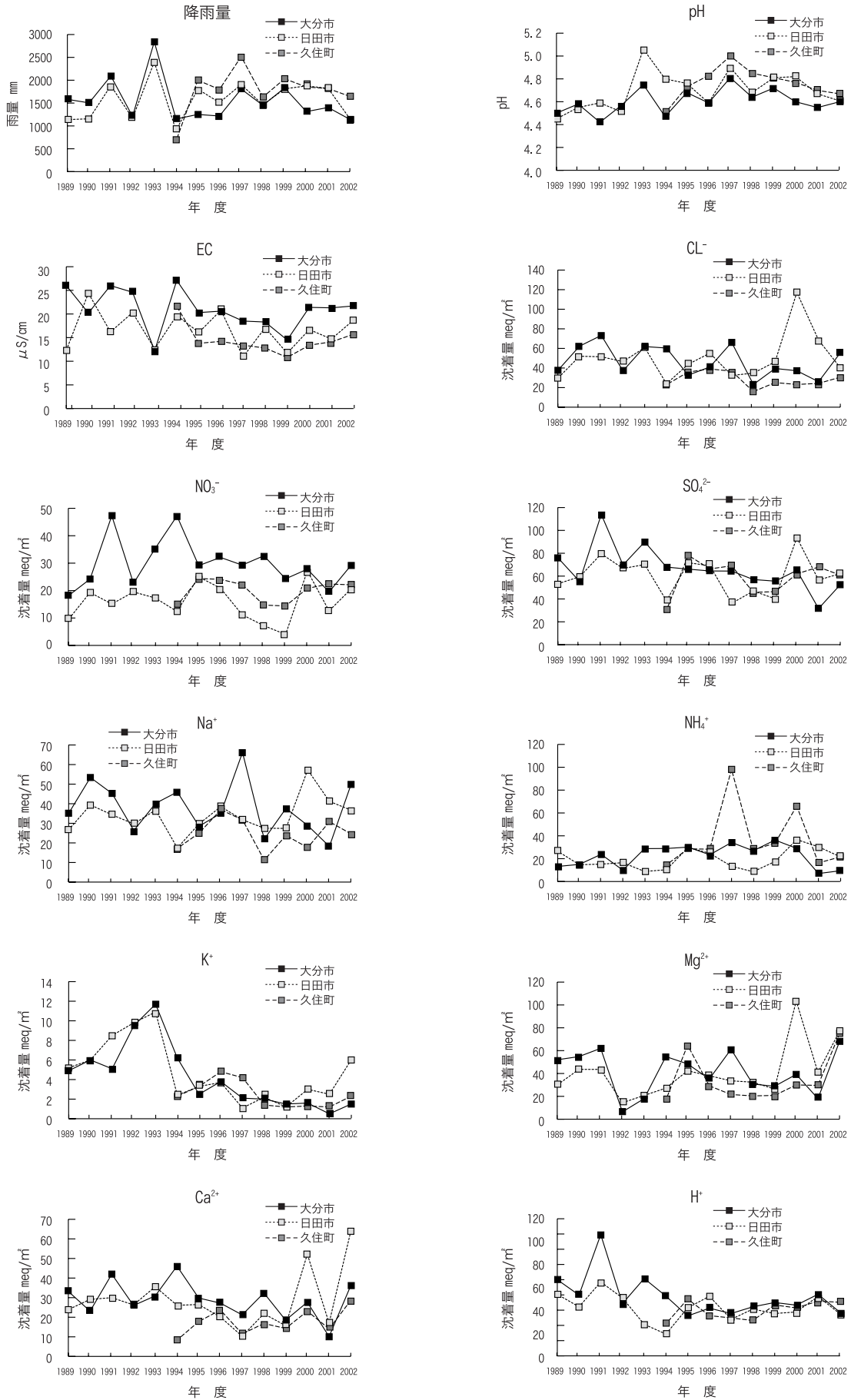


図4 雨水成分沈着量の経年変化 (成分別)

やかな低下傾向にあると見られる。ただし、2002年度は降雨量が前年よりも少ないにもかかわらず、やや上昇した。

日田市では、変動がやや大きいのが、1993年以降、緩やかに低下してきていると思われる。

久住町では、測定を開始した1994年度から1997年度にかけて5付近まで上昇したが、その後は下降している（図4参照）。

## 2.2 成分沈着量について

成分沈着量の変化を図3、図4に示す。

## 2.3 酸性化成分及び中和成分と pH の関係

1.4で定義した AP, NP, pA<sub>i</sub>, pD<sub>i</sub> の値及び AP, NP に対応する沈着量の経年変化から、大分市と久住町における湿性沈着の評価及び比較を試みた。

### 2.3.1 大分市の湿性沈着について

#### ① AP 中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の割合が高い。

これは、降水の酸性化に寄与する成分として NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の寄与が比較的大きいことを示している。NO<sub>x</sub> の移送距離は比較的短く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の沈着量は測定地点周辺の NO<sub>x</sub> 発生源の影響を受けやすいと考えられていることから、前述のとおり大分市における NO<sub>x</sub> 発生源の多さを反映しているものと思われる。また、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の沈着量も多く、大分市の都市化指標は九州地区内でもかなり高い値で推移している<sup>2)</sup>（注5）。

#### （注5） 都市化指標について

降水中の [NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] / [nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] 当量比は、都市化指標として用いられることが多く、値が高いほど都市型大気汚染が進んでいることを示すと考えられている。大分市における2002年度の [NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] / [nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] 当量比は0.62であり、久住町における値は0.38であった。

#### ② nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の沈着量が、少しずつ減少している。

1990年～2002年にかけて、大分市の大気中の SO<sub>2</sub> 濃度が横這いあるいはわずかに減少傾向にあるが、これを反映した可能性が考えられる。

#### ③ pD<sub>i</sub> の値が、pH の値より小さいことが多い。

実際の降雨では、nss-Mg<sup>2+</sup> や nss-K<sup>+</sup> による中和が行われている可能性が考えられる。

### 2.3.2 久住町の湿性沈着について

①大分市と比べると AP 中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> が低く、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の沈着量も少ない。

これは、久住町における NO<sub>x</sub> 発生源の少なさを反映しているものと思われる。

#### ② NP 中の NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の割合が高い。

これは、降水の中和に寄与する成分として比較的 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の寄与が大きいことを示している。NH<sub>4</sub><sup>+</sup> の供給源としては、畜産及び施肥が考えられる。ただし、一部の試料については、ろ過式採取装置における虫の混入による汚染や、試料採取から分析時まで試料が空気中のアンモニアのとけ込みによる汚染を受けた可能性も考えられる。

#### ③ AP 中の nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の割合が高い。

これは、降水の酸性化に寄与する成分として nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の寄与が大きいことを示している。nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の供給源としては、測定地の北西に位置する硫黄山から噴出される硫黄性ガスが考えられる。ただし、SO<sub>x</sub> は比較的移送距離が長く、nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の沈着量自体は九州地区の中でも多い方ではないことから、供給源は必ずしも明確ではない。なお、1995年～1996年における nss-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の沈着量の増加は、九重硫黄山噴火の影響を受けているものと思われる<sup>3)</sup>（表5、図5、図6参照）。

## おわりに

本調査の実施に当たり、試料採取及び EC、pH の測定にご協力をいただきました大分県林業試験場の皆さまに深く感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 藤田慎一：「東アジアの酸性雨—広域観測データによる降水化学の総合評価」, 大気環境学会誌, 37, 1-22 (2002)
- 2) 山崎誠、白井暁子、重岡昌代：「九州地区の酸性雨」, 第28回九州衛生環境技術協議会, p. 23-24 (2002)
- 3) 加藤洋一、森崎澄江、野上文史：「九重硫黄山噴火に伴う大気環境影響について」, 大分県衛生環境研究センター年報, 23, 72-74 (1995)
- 4) 酸性雨問題周知啓発企画検討委員会編集：「環境保全活動のための酸性雨ハンドブック」 (1999), (財)日本環境衛生センター 酸性雨研究センター発行

表2 2002年度月平均当量濃度

大分市

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分濃度											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
						μS/cm	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	%	μeq/l
4月	4月1日	4月30日	29	102	4.8	18.7	24.1	28.3	46.1	20.8	23.3	4.6	16.9	37.6	14.4	43.6	95	36.7	98
5月	4月30日	6月3日	34	169	4.6	18.7	13.3	16.4	32.7	11.6	1.3	0.0	7.9	11.6	26.8	31.3	96	11.1	96
6月	6月3日	7月1日	28	176	4.7	13.8	13.5	15.2	32.3	8.2	0.0	0.1	5.9	28.3	20.4	31.3	97	27.9	99
7月	7月1日	7月29日	28	221	4.8	14.1	34.5	5.1	11.8	35.4	0.0	0.1	3.5	7.1	16.6	7.5	64	5.6	78
8月	7月29日	9月2日	35	63	5.0	39.7	231.5	20.4	68.7	223.5	1.4	2.1	37.9	42.1	10.9	41.9	61	32.4	77
9月	9月2日	9月30日	28	49	4.5	23.1	36.2	31.7	43.2	32.1	0.0	0.0	24.0	27.4	30.1	39.3	91	26.0	95
10月	9月30日	10月28日	28	55	4.3	38.0	52.3	48.9	61.4	45.5	7.2	0.0	24.9	30.1	51.9	55.9	91	28.1	93
11月	10月28日	11月25日	28	51	4.5	15.3	18.5	19.3	24.0	11.0	0.0	0.0	9.4	9.0	35.5	22.7	94	8.5	95
12月	11月25日	12月24日	29	143	4.4	23.9	50.2	29.7	59.6	37.0	3.8	0.2	17.8	23.4	39.0	55.2	93	21.8	93
1月	12月24日	1月27日	34	26	5.1	23.9	50.5	23.3	39.2	48.2	25.7	4.0	20.2	18.8	7.8	33.4	85	16.7	89
2月	1月27日	3月3日	35	42	4.4	43.0	218.2	157.2	251.9	205.5	97.9	12.1	61.8	283.4	42.6	227.2	90	274.4	97
3月	3月3日	3月31日	28	47	4.5	39.8	80.9	41.9	72.2	74.9	23.8	5.2	28.9	51.6	28.6	63.2	88	48.3	94
年間値	4月1日	3月31日	364	1,144	4.6	21.7	49.0	25.6	46.3	44.1	8.3	1.3	15.1	31.9	25.3	41.0	89	30.0	94

日田市

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分濃度											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
						μS/cm	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	%	μeq/l
4月	4月1日	4月30日	29	112	4.3	25.2	29.8	15.3	60.3	29.6	10.2	7.6	22.0	97.3	51.7	56.7	94	96.0	99
5月	4月30日	6月3日	34	34	5.5	5.8	11.4	6.2	29.7	7.6	0.8	1.8	6.2	26.3	3.5	28.7	97	26.0	99
6月	6月3日	7月1日	28	171	5.7	9.8	20.0	9.3	51.3	15.6	5.8	6.1	10.5	178.3	2.1	49.5	96	177.6	100
7月	7月1日	7月29日	28	153	4.9	12.0	13.8	15.3	46.7	15.3	20.1	3.7	17.0	32.1	13.7	44.9	96	31.4	98
8月	7月29日	9月2日	35	111	4.5	16.6	18.1	14.9	62.4	15.3	15.1	2.7	16.5	31.6	33.0	60.6	97	31.0	98
9月	9月2日	9月30日	28	24	4.9	10.7	24.8	15.0	55.2	41.3	0.0	6.4	25.7	62.5	13.2	50.2	91	60.7	97
10月	9月30日	10月28日	28	52	4.2	18.3	14.0	20.7	49.1	21.2	0.0	3.6	16.6	35.1	63.3	46.6	95	34.1	97
11月	10月28日	11月25日	28	76	4.5	22.8	77.3	22.3	49.6	80.8	0.3	2.7	32.0	23.8	34.2	39.9	80	20.3	85
12月	11月25日	12月24日	29	119	4.9	15.3	23.7	14.7	29.9	21.8	1.1	5.7	9.1	14.4	13.2	27.3	91	13.5	93
1月	12月24日	1月30日	37	65	4.5	44.8	185.6	36.8	98.7	127.3	45.6	6.3	32.6	19.7	31.8	83.4	84	14.2	72
2月	1月30日	2月24日	25	68	4.3	37.6	66.7	45.9	114.3	54.9	57.5	8.0	18.5	24.7	53.4	107.7	94	22.3	90
3月	2月24日	4月6日	41	173	4.8	17.5	22.1	18.2	44.6	28.0	46.8	6.6	15.3	24.6	15.7	41.3	92	23.4	95
年間値	4月1日	4月6日	370	1,159	4.6	18.7	35.7	18.2	55.1	32.5	19.2	5.4	17.1	56.5	24.5	51.2	93	55.1	97

久住町

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分濃度											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		Ca <sup>2+</sup>	
						μS/cm	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	μeq/l	%	μeq/l
4月	4月1日	4月30日	29	160	5.0	11.2	10.1	12.5	26.7	4.0	30.6	1.6	8.9	14.8	9.1	26.2	98	14.6	99
5月	4月30日	5月27日	27	253	5.1	9.8	7.6	3.8	11.0	5.3	0.0	0.0	6.0	4.7	8.8	10.3	94	4.5	95
6月	5月27日	6月24日	28	122	4.7	16.5	12.0	17.8	43.0	4.2	13.6	0.6	4.6	23.9	18.3	42.5	99	23.7	99
7月	6月24日	8月5日	42	406	4.7	11.1	10.7	5.7	25.9	6.1	6.4	0.3	3.4	4.3	18.4	25.1	97	4.0	94
8月	8月5日	9月2日	28	145	4.3	28.8	41.5	16.7	68.4	37.8	15.6	2.4	15.3	17.1	47.2	63.9	93	15.4	90
9月	9月2日	9月30日	28	63	4.4	23.0	12.4	19.5	47.2	9.9	21.9	0.1	8.5	9.6	42.9	46.1	97	9.2	96
10月	9月30日	10月28日	28	33	4.5	17.7	18.0	30.1	32.5	14.2	8.4	1.1	13.1	25.2	32.0	30.7	95	24.6	98
11月	10月28日	11月25日	28	86	4.5	22.5	48.7	19.9	45.2	48.9	0.0	1.9	17.9	22.2	29.3	39.3	87	20.0	90
12月	11月25日	12月24日	29	122	4.5	19.1	21.7	17.6	42.9	17.1	4.1	1.4	12.2	18.0	32.6	40.8	95	17.2	96
1月	12月24日	2月3日	41	47	4.4	22.6	33.9	24.8	40.4	34.8	20.5	3.5	17.1	17.6	37.0	36.2	90	16.1	91
2月	2月3日	3月3日	28	116	4.7	20.7	36.8	31.6	82.4	35.9	48.6	5.5	25.2	61.1	22.2	78.1	95	59.6	97
3月	3月3日	3月31日	28	94	5.3	12.7	13.0	14.7	38.8	11.0	14.8	3.6	42.7	47.6	4.7	37.5	97	47.1	99
年間値	4月1日	3月31日	364	1,647	4.7	15.7	18.6	13.5	37.0	15.0	13.1	1.4	11.4	17.4	21.4	35.2	95	16.7	96

表3 2002年度月降下量

大分市

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分沈着量											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>		
						μS/cm	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	%	meq/m <sup>3</sup>
4月	4月1日	4月30日	29	102	4.8	18.7	2.5	2.9	4.7	2.1	2.4	0.5	1.7	3.8	1.5	4.4	95	3.7	98
5月	4月30日	6月3日	34	169	4.6	18.7	2.2	2.8	5.5	1.9	0.2	0.0	1.3	1.9	4.5	5.2	96	1.9	96
6月	6月3日	7月1日	28	176	4.7	13.8	2.4	2.7	5.7	1.4	0.0	0.0	1.0	5.0	3.6	5.5	97	4.9	99
7月	7月1日	7月29日	28	221	4.8	14.1	7.6	1.1	2.6	7.8	0.0	0.0	0.8	1.6	3.7	1.7	64	1.2	78
8月	7月29日	9月2日	35	63	5.0	39.7	14.2	1.3	4.2	13.7	0.1	0.1	2.3	2.6	0.7	2.6	61	2.0	77
9月	9月2日	9月30日	28	49	4.5	23.1	1.8	1.5	2.1	1.6	0.0	0.0	1.2	1.3	1.5	1.9	91	1.3	95
10月	9月30日	10月28日	28	55	4.3	38.0	2.8	2.7	3.3	2.5	0.4	0.0	1.4	1.6	2.8	3.0	91	1.5	93
11月	10月28日	11月25日	28	51	4.5	15.3	0.9	0.9	1.1	0.5	0.0	0.0	0.5	0.4	1.7	1.1	94	0.4	95
12月	11月25日	12月24日	29	143	4.4	23.9	7.2	4.3	8.6	5.3	0.5	0.0	2.6	3.4	5.6	7.9	93	3.1	93
1月	12月24日	1月27日	34	26	5.1	23.9	1.2	0.6	1.0	1.2	0.6	0.1	0.5	0.5	0.2	0.8	85	0.4	89
2月	1月27日	3月3日	35	42	4.4	43.0	9.0	6.5	10.4	8.5	4.0	0.5	2.6	11.7	1.8	9.4	90	11.3	97
3月	3月3日	3月31日	28	47	4.5	39.8	3.7	1.9	3.3	3.5	1.1	0.2	1.3	2.4	1.3	2.9	88	2.2	94
年間値	4月1日	3月31日	364	1,144	4.6	21.7	55.5	29.1	52.5	50.0	9.4	1.5	17.1	36.2	28.7	46.5	89	34.0	94

日田市

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分沈着量											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>		
						μS/cm	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	%	meq/m <sup>3</sup>
4月	4月1日	4月30日	29	112	4.3	25.2	3.4	1.7	6.8	3.3	1.1	0.9	2.5	10.9	5.8	6.4	94	10.8	99
5月	4月30日	6月3日	34	34	5.5	5.8	0.3	0.2	0.9	0.2	0.0	0.1	0.2	0.8	0.1	0.8	97	0.8	99
6月	6月3日	7月1日	28	171	5.7	9.8	3.4	1.6	8.8	2.7	1.0	1.0	1.8	30.4	0.4	8.4	96	30.3	100
7月	7月1日	7月29日	28	153	4.9	12.0	2.0	2.2	6.7	2.2	2.9	0.5	2.5	4.6	2.0	6.5	96	4.5	98
8月	7月29日	9月2日	35	111	4.5	16.6	2.0	1.6	6.8	1.7	1.6	0.3	1.8	3.4	3.6	6.6	97	3.4	98
9月	9月2日	9月30日	28	24	4.9	10.7	0.5	0.3	1.2	0.9	0.0	0.1	0.5	1.3	0.3	1.1	91	1.3	97
10月	9月30日	10月28日	28	52	4.2	18.3	0.7	1.1	2.6	1.1	0.0	0.2	0.9	1.8	3.3	2.4	95	1.8	97
11月	10月28日	11月25日	28	76	4.5	22.8	5.5	1.6	3.5	5.7	0.0	0.2	2.3	1.7	2.4	2.8	80	1.4	85
12月	11月25日	12月24日	29	119	4.9	15.3	2.8	1.7	3.5	2.6	0.1	0.7	1.1	1.7	1.6	3.2	91	1.6	93
1月	12月24日	1月30日	37	65	4.5	44.8	11.4	2.3	6.0	7.8	2.8	0.4	2.0	1.2	1.9	5.1	84	0.9	72
2月	1月30日	2月24日	25	68	4.3	37.6	4.5	3.1	7.7	3.7	3.9	0.5	1.3	1.7	3.6	7.3	94	1.5	90
3月	2月24日	4月6日	41	173	4.8	17.5	3.8	3.1	7.7	4.9	8.1	1.1	2.7	4.3	2.7	7.2	92	4.1	95
年間値	4月1日	4月6日	370	1,159	4.6	18.7	40.3	20.5	62.2	36.7	21.7	6.0	19.3	63.9	27.7	57.8	93	62.3	97

久住町

	測定期間		測定 日数	降雨量 mm	成分沈着量											非海塩成分量			
	開始	終了			pH	EC	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	H <sup>+</sup>	nss-SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	nss-Ca <sup>2+</sup>		
						μS/cm	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	meq/m <sup>3</sup>	%	meq/m <sup>3</sup>
4月	4月1日	4月30日	29	160	5.0	11.2	1.6	2.0	4.3	0.6	4.9	0.3	1.4	2.4	1.5	4.2	98	2.3	99
5月	4月30日	5月27日	27	253	5.1	9.8	1.9	1.0	2.8	1.3	0.0	0.0	1.5	1.2	2.2	2.6	94	1.1	95
6月	5月27日	6月24日	28	122	4.7	16.5	1.5	2.2	5.3	0.5	1.7	0.1	0.6	2.9	2.2	5.2	99	2.9	99
7月	6月24日	8月5日	42	406	4.7	11.1	4.3	2.3	10.5	2.5	2.6	0.1	1.4	1.7	7.5	10.2	97	1.6	94
8月	8月5日	9月2日	28	145	4.3	28.8	6.0	2.4	9.9	5.5	2.3	0.4	2.2	2.5	6.9	9.3	93	2.2	90
9月	9月2日	9月30日	28	63	4.4	23.0	0.8	1.2	3.0	0.6	1.4	0.0	0.5	0.6	2.7	2.9	97	0.6	96
10月	9月30日	10月28日	28	33	4.5	17.7	0.6	1.0	1.1	0.5	0.3	0.0	0.4	0.8	1.1	1.0	95	0.8	98
11月	10月28日	11月25日	28	86	4.5	22.5	4.2	1.7	3.9	4.2	0.0	0.2	1.5	1.9	2.5	3.4	87	1.7	90
12月	11月25日	12月24日	29	122	4.5	19.1	2.7	2.2	5.2	2.1	0.5	0.2	1.5	2.2	4.0	5.0	95	2.1	96
1月	12月24日	2月3日	41	47	4.4	22.6	1.5	1.1	1.8	1.6	0.9	0.2	0.8	0.8	1.7	1.6	90	0.7	91
2月	2月3日	3月3日	28	116	4.7	20.7	4.3	3.7	9.6	4.2	5.6	0.6	2.9	7.1	2.6	9.1	95	6.9	97
3月	3月3日	3月31日	28	94	5.3	12.7	1.2	1.4	3.6	1.0	1.4	0.3	4.0	4.5	0.4	3.5	97	4.4	99
年間値	4月1日	3月31日	364	1,647	4.7	15.7	30.6	22.1	60.9	24.6	21.5	2.3	18.8	28.6	35.2	58.0	95	27.5	96



表4 雨水 pH と pAi, pDi の経年変化

地点	年度	pH	pAi	pDi	[Ai] / [H+]	[Di] / [H+]
大分市	1990	4.58	4.22	4.50	2.3	1.2
	1991	4.42	4.13	4.33	2.0	1.2
	1992	4.55	4.13	4.35	2.6	1.6
	1993	4.75	4.37	4.66	2.4	1.2
	1994	4.46	4.04	4.38	2.6	1.2
	1995	4.68	4.13	4.58	3.5	1.3
	1996	4.59	4.12	4.45	3.0	1.4
	1997	4.81	4.32	4.74	3.1	1.2
	1998	4.60	4.17	4.65	2.7	0.89
	1999	4.71	4.38	4.91	2.2	0.63
	2000	4.60	-	-	-	-
	2001	4.55	-	-	-	-
2002	4.60	4.18	4.55	2.6	1.1	
久住町	1994	4.50	4.13	4.48	2.3	1.0
	1995	4.73	4.30	4.56	2.7	1.5
	1996	4.83	4.32	4.70	3.3	1.3
	1997	5.00	4.46	-	3.5	-
	1998	4.85	4.44	5.03	2.5	0.65
	1999	4.80	4.56	5.27	1.7	0.33
	2000	4.76	-	-	-	-
	2001	4.70	4.32	4.50	2.4	1.6
2002	4.67	4.31	4.72	2.3	0.88	

注) pH の値は、pH、EC、各種イオン濃度の測定値データが全て揃っているものについて再計算したものである。

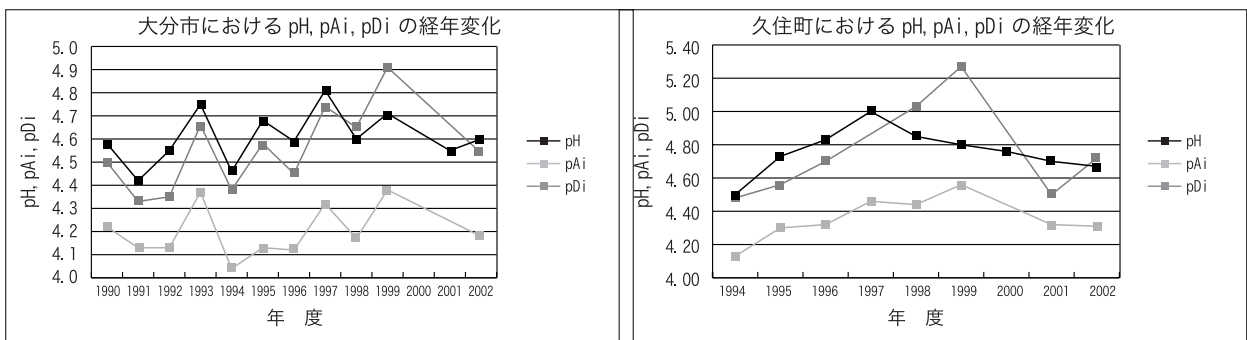


図5 pH, pAi, pDi の経年変化

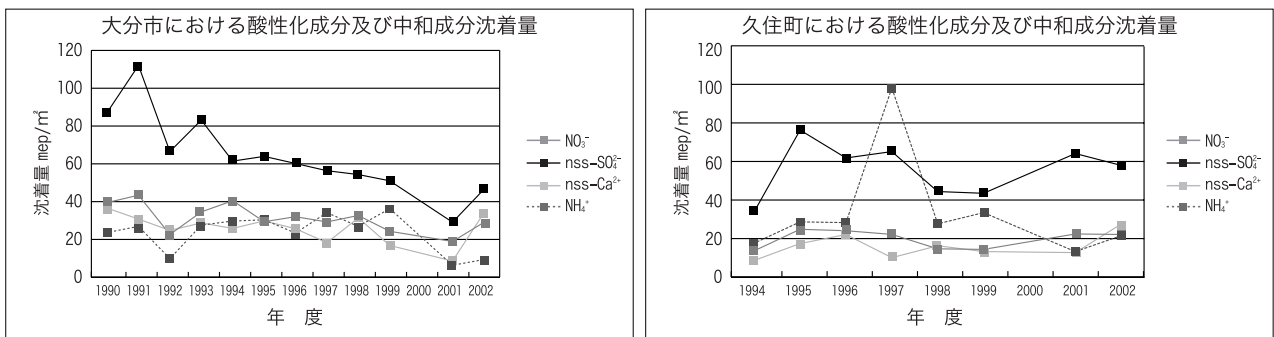


図6 酸性化成分及び中和成分沈着量の経年変化