

厚生労働行政推進調査事業費補助金（化学物質リスク研究事業）  
総括研究報告書

人工芝グラウンド用ゴムチップの健康リスク評価に関する研究

研究代表者 五十嵐 良明 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部長

**研究要旨**

ゴムチップを使用した人工芝グラウンド上で競技する人の健康リスクを評価することを目的に、我が国で使われている人工芝用ゴムチップで検出された化学物質のグラウンド大気中濃度の測定、ゴムチップの溶出試験、さらに各年代のサッカー競技者を想定した曝露シナリオの設定を行い、これらより推定される化学物質の曝露量をその許容値と比較した。

揮発性有機化合物（VOCs）は 53 化合物について、廃タイヤ由来ゴムチップを充填した屋外人工芝グラウンド 3 か所及び屋内 1 か所の大気中濃度を調べた。ベンゼンはグラウンドのいずれの地点においても WHO 欧州地域事務局の環境基準、及び我が国における大気環境基準値以下であった。1,3-ブタジエンは検出限界以下、ホルムアルデヒドは WHO 欧州のガイドライン値を十分に下回っていた。屋外グラウンドではフィールド内とバックグラウンドにした地点（対照地点）とで VOCs 濃度に大きな差は認められなかった。また、屋外及び屋内グラウンドいずれもフィールド内と対照地点との間でほとんどの VOCs 濃度に大きな差は認められなかった。各グラウンドから採取したゴムチップから放散されるメチルイソブチルケトンの量は、先行研究で入手したグラウンドに充填前のゴムチップからのそれより低かった。

金属類は 28 元素を対象に、前述の 4 か所の人工芝グラウンドから採取したゴムチップ中の含有量を分析した結果、20 元素がいずれかの試料で検出された。各金属類の濃度はグラウンド間でほとんど差を認めず、廃タイヤや工業用ゴム等が由来のゴムチップを分析した先行研究の中央値とほぼ同程度であった。グラウンドから採取したゴムチップ及び先行研究の充填前のゴムチップの一部について、人工胃液、人工腸液、人工唾液及び人工汗を用いた溶出試験を行った。グラウンドのゴムチップからは 15 元素が、充填前のゴムチップからは Sn を加えた 16 元素が溶出した。金属類の多くは人工胃液への溶出が多かった。含有量に対して 10%を超える溶出率を示す金属類もあったが、それらの溶出量は参考値として比較した土壤汚染対策法の土壤含有量基準や欧州の玩具の安全性規格（EN71-3:2013）の移行限度値を大きく下回った。

先行研究でゴムチップからの検出が確認されたゴム添加剤等 42 化合物、並びに多環芳香族炭化水素類（PAHs）及び類縁化合物類 32 化合物の計 74 種類の準揮発性有機化合物（SVOCs）についてグラウンドから採取したゴムチップ中の濃度を測定した。試料からはゴム添加剤等 19 化合物、PAHs 及びその類縁化合物 31 化合物が検出され、ほとんどのゴム添加剤等の濃度は、屋内グラウンドから採取した試料の方が屋外の試料よりも高かった。グラウンドから採取した試料、並びに先行研究で収集したグラウンドに充填前の 8 試料について 4 種類の人工体液を用いた溶出試験を実施した。ほとんどの化合物の溶出率はおおむね低く、多くは定量下限値以下であった。

リスク評価の対象とした物質の許容値は、米国有害物質疾病登録局、米国内産衛生専門家会議、米国環境保護庁、日本産業衛生学会の公表情報を中心に調査した。各年代のサッカー競技者の体重、皮膚面積、呼吸量、活動日数及び時間、ゴムチップの皮膚付着量及び経口摂取量、ゴムチップ由来 PM<sub>10</sub>濃度のデータ、さらにゴムチップの溶出試験や大気中 VOCs 濃度の測定結果をもとに曝露シナリオを設定し、各物質の曝露量を求めた。経口、経皮、吸入経路ごとに平均一日摂取量あるいは曝露濃度を求め、許容値で除してハザード比を求めた。許容値を得ることができなかった対象物質は、評価対象外とした。今回、人工芝グラウンドのゴムチップに関連する測定値、及び先行研究で用いたゴムチップ製品の測定値を用いた解析では、許容値を得られたほぼ全ての物質は、いずれの曝露シナリオにおいてもハザード比は 1 未満であった。また、一部の曝露シナリオでハザード比が 1 を超えた物質についても、より現実的なシナリオによる評価あるいは毒性機序等に基づく検討の結果、これらの化学物質が日本人サッカー競技者に対し健康影響を及ぼす可能性は低いと判断した。

以上、評価対象とした化学物質のうち、許容値を得ることができた人工芝ゴムチップ由来化学物質については、日本人サッカー競技者に対し、発がん性や刺激

性を含む健康リスクに関する懸念は十分低いことが確認できた。米国では同様の健康リスクに関する調査研究が終了しておらず、新たな知見が公表された場合には、我が国においても必要に応じて再検討することが望ましい。

#### 研究分担者

- 河上強志 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部室長
- 久保田領志 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部主任研究官
- 酒井信夫 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部室長
- 井上 薫 国立医薬品食品衛生研究所安全性予測評価部室長

#### 研究協力者

- 広瀬明彦 国立医薬品食品衛生研究所安全性予測評価部部長
- 吉田喜久雄 国立医薬品食品衛生研究所安全性予測評価部
- 田原麻衣子 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部
- 小濱とも子 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部
- 西 以和貴 神奈川県衛生研究所 理化学部主任研究員

#### A. 研究目的

廃タイヤを破砕したゴムチップは弾性充填材として、スポーツ競技場の人工芝やトラック、公園等の遊歩道舗装に利用されている。米国ではゴムチップを使用する人工芝グラウンドで競技しているサッカー選手に血液性のがんの発症が多いとの報道がされ、2016 年 2 月に米国環境保護庁 (USEPA) 等は、人工芝グラウンドに使われる廃タイヤ由来のゴムチップの安全性について調査を開始すると発表、12 月に調査の進行状況や文献レビューの結果等が報告された。USEPA はその中で、フィールド調査を実施した後、2017 年末までに健康リスクに関するまとめの報告をする予定としていたが、2019 年 3 月現在まだ報告書は示されていない。欧州化学品庁 (ECHA) 及びオランダ国立公衆衛生研究所 (RIVM) は文献レビュー及び実態調査からゴム関連の幾つかの物質を抽出して評価した。その結果、現状では人工芝用ゴムチップを使用したグラウンド上で競技することによる健康リスクは小さいと報告した。

ゴムチップを使用した人工芝グラウンドは我が国でも増加しており、その健康影響を早急に評

価することが求められている。我々は、平成 28 年度厚生労働科学特別研究事業で「人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析及びその発がん性等に関する研究」を実施し、人工芝施工業者から入手した国内で使用されるゴムチップに含有される化学物質の種類と濃度等を分析した。ECHA や RIVM の報告書やその他既存文献に比べてより数多くの物質がゴムチップ中に存在することを明らかにした。また、ゴムチップに関連した物質の発がん性を主とした毒性の懸念性を分類し、優先的に健康リスクの評価をすべき物質を示した。しかしながら、それら化学物質の存在に健康リスクがあるかどうかを評価するには、各物質の曝露量を推定するとともに、有害性のほか、許容濃度や参照用量及び実質安全量等（以下、許容値）などの情報が必要となる。そこで本研究は、ゴムチップ中の化学物質の健康リスクを評価することを目的として、先行研究の成果をもとに人工芝用ゴムチップに含まれる物質について曝露量を求め、それらの有害性及び許容値に関する情報と比較することにした。

本年度は、ゴムチップ由来化学物質の曝露量評価に資するデータの収集を目的として、揮発性有機化合物 (VOCs) については吸入曝露を想定し、屋内外計 4 か所の人工芝グラウンドにおいて大気中の VOCs 濃度を測定した。昨年度は冬季に 1 か所の調査を行ったが、本年度はより VOCs の放散が大きいとされる夏季に実施した。ゴムチップの摂食による経口曝露や皮膚に付着した際の経皮曝露を想定した溶出試験を実施した。人工芝グラウンドより採取したゴムチップについて、金属類、多環芳香族炭化水素類 (PAHs) 及び類縁化合物類、並びにゴム添加剤等の準揮発性有機化合物 (SVOCs) の含有量を分析するとともに、4 種類の人工体液 (胃液、腸液、唾液及び汗) への溶出量を測定した。また、先行研究で収集したグラウンドに充填前の複数のゴムチップ試料についても同様の溶出試験を実施した。これらデータも取り込んだ、日本人サッカー競技者を対象とした独自の年齢層別曝露シナリオを設定し、各物質の曝露量を求めた。それら値を許容値と比較すること

によって、ゴムチップ由来対象化学物質の健康リスクを評価した。

## B. 研究方法

### 1. VOCs の分析

測定対象とする VOCs は、先行研究のゴムチップ分析結果 (検出率として 10%以上)、USEPA、RIVM、ECHA の調査結果、国際がん研究機関 (IARC) による発がん性評価をもとに 53 化合物を選定した。VOCs は物性により、VOC1 (低沸点 VOCs 34 化合物)、VOC2 (高沸点 VOCs 14 化合物)、VOC3 (アニリン及び *t*-ブチルアミン)、VOC4 (ホルムアルデヒド)、VOC5 (2-メルカプトベンゾチアゾール)、VOC6 (ジブチルヒドロキシトルエン) の 6 グループに分類し、昨年度確立した測定方法 (サンプリング法及び分析法) で測定した。なお、本分析条件では *m*-キシレンと *p*-キシレン、3-エチルトルエンと 4-エチルトルエンは分離ができないため、合算値として定量した。

人工芝グラウンド (屋外 3 か所 (A~C) 及び屋内 1 か所 (D)) での大気のサンプリングは平成 30 年 7 月に実施した。各グラウンドにおけるサンプリング地点は、ゴール前高さ 15 cm、ゴール前高さ 91 cm、センターサークル高さ 91 cm、フィールド外 (バックグラウンド) 高さ 91 cm とした。

グラウンドで使用されているゴムチップを、同様の地点から、掃除機で採取した。ゴミ等を取り除き風乾後、均一に混合し、褐色ガラス瓶に保管した。採取したゴムチップより放散する VOCs をヘッドスペース/ MMSE (Monolithic Material Sorptive Extraction) 法を用いて測定した。試料量 5 g を 60 で 24 時間加温し、MonoTrap® DSC18 に VOCs を捕集し、メタノールで超音波照射して抽出した。抽出液は GC-MS に供し、SIM 測定を行った。定量下限値は 0.04 µg/g で、これを下回った化合物は不検出とした。

### 2. 金属類の分析

4 か所の人工芝グラウンドから採取したゴムチップ試料について、USEPA 及び ECHA 等の調査対象項目等を参考に選定した、金属類 28 種の含

有量を定量した。27 元素は、硝酸及びフッ化水素酸を用いてマイクロ波分解した後 ICP-MS で測定し、Hg は、加熱気化水銀分析装置にて測定した。

人工体液を用いた溶出試験を行った。人工胃液及び人工腸液は、それぞれ日本薬局方の崩壊試験・溶出試験第 1 液及び崩壊試験第 2 液を、人工唾液は BS 6684:1987 のものを、人工汗は JIS L0848:2004 汗に対する染色堅ろう度試験方法（酸性人工汗）のものをを用いた。試料 1 g を 100 mL のテフロン製瓶に分取し、これに上記人工体液 50 mL を加え、遮光下 37、30 rpm (rotating) で 1 時間振とう、続いて 1 時間静置し、その上清をろ過したものを溶出液とした。溶出液に硝酸を加えて試験溶液として ICP-MS で分析した。グラウンドから採取したゴムチップ試料に加えて、先行研究で収集したグラウンド充填前のゴムチップのうち有害金属類が高濃度検出された試料、廃タイヤ由来の試料 a (Zn、Cu 及び Pb で最大値)、エチレン・プロピレン・ジエンゴム (EPDM) 製の試料 b (Cr で最大値)、工業用ゴム由来の試料 c (Sb で最大値)、廃タイヤ由来の試料 d (Cd で最大値)、熱可塑性エラストマー (TPE) 製の試料 e (As で最大値) 及び工業用ゴム由来の試料 f (Ni で最大値) の 6 試料についても溶出試験を行った。なお Hg については、ゴムチップ中の含有量を考慮し、溶出試験での定量はしなかった。

### 3. SVOCs の分析

対象とした SVOCs は、先行研究でゴムチップからの検出が確認されたゴム添加剤等 42 化合物並びに PAHs 及び類縁化合物 32 化合物の計 74 化合物とした。4 か所の人工芝グラウンドから採取したゴムチップ試料、先行研究で収集したグラウンド充填前のゴムチップの中から、ゴムの由来や含有物質の発がん性や含有量を考慮して 8 試料を選択し、SVOCs 含有量の測定及び溶出試験を行った。

#### 3-1. ゴムチップ中の SVOCs の測定

ゴム添加剤等は、試料 0.5 g にアセトン・ジクロロメタン (1:1) 20 mL を加えて 2 時間超音波処理した。必要に応じて遠心分離し、濃縮後、アセトンで 10 mL に定容した。これをアセトンで希

釈し、内部標準物質を添加して GC-MS で分析した。また、定容後の溶液をメタノールで希釈し、内部標準物質を加えたものを LC-MS/MS 分析した。

PAHs 及び類縁化合物は、ドイツの機器安全法に基づく製品安全認証 (GS マーク) における分析法を一部変更して行った。試料 0.5 g にトルエン 5 mL 及び内部標準物質を加え、60、60 分間超音波処理して抽出した。これをメンブランフィルターでろ過し、GC-MS で分析した。

#### 3-2. ゴムチップからの SVOCs の溶出試験

金属類と同様に、4 種類の人工体液 (胃液、腸液、唾液、汗) を用いて溶出試験を実施し、対象ゴムチップ試料に含有されない 4 種類の添加剤を除く 70 化合物の分析を行った。試料 1.0 g をねじ口三角フラスコに入れ、各人工体液 50 mL を加え、暗所で 1 時間、37、30 rpm で処理し、ガラス繊維ろ紙でろ過したものを溶出液とした。

ゴム添加剤等については、ろ液 20 mL を分取し、ジクロロメタン 10 mL を加え 15 分振とうした。その後、5 分間、3000 rpm で遠心分離後、ジクロロメタン相を分取した。ジクロロメタン抽出を 2 回実施後、5 mol/L の水酸化ナトリウム溶液を人工胃液の時は 1 mL、それ以外では 0.5 mL 添加し攪拌した。ジクロロメタン抽出をさらに 2 回実施し、分取した液を無水硫酸ナトリウムで脱水し 5 mL 程度まで濃縮後 (35 以下)、アセトンを 20 mL 加え、さらに 2 mL 程度まで濃縮した後、アセトンで 5 mL に定容した。その 1 mL を分取し内部標準物質及び PEG を 0.1% 含むアセトン溶液を添加し、GC-MS にて分析した。また、定容後の溶液をメタノールにて 10 倍希釈し、その 1 mL に水 1 mL 及び内部標準物質のメタノール溶液を加え、フィルターろ過後、LC-MS/MS にて分析した。

PAHs 及び類縁化合物は、ろ液にヘキサン 5 mL を加えて振とう後、遠心した。この操作をもう一度行い、ヘキサン相を合わせ、無水硫酸ナトリウムで脱水後ろ過し、ジエチレングリコールを 10 µg 添加した。この溶液を濃縮、トルエンで 5 mL に定容し、内部標準物質を加え GC-MS で分析し

た。

## 4. ゴムチップ関連物質のリスク評価

### 4-1. 許容値の調査

測定対象とした物質の経口及び吸入経路での各々の許容値について、米国有害物質疾病登録局 (ATSDR)、米国産業衛生専門家会議 (ACGIH)、USEPA、日本産業衛生学会の公表情報を中心に、情報収集した。

### 4-2. 日本人向け曝露シナリオの設定

日本人のサッカー競技者に6段階の年齢群を設定した。対応する年齢はそれぞれ、6~9歳、9~12歳、12~15歳、15~18歳、18~22歳および22~35歳となる。次に、各年齢群における体重、年間活動日数、一日当たりの活動時間、年間の総活動時間、呼吸量(平均呼吸量及び活動時の呼吸量)、ゴムチップ由来のPM<sub>10</sub>濃度、人工芝との接触皮膚面積、活動時の皮膚へのゴム粒子付着量、ゴム粒子の直接経口摂取量について、公表されている情報を調査・収集した。得られた情報に基づき、各年齢群の曝露シナリオを設定した。この曝露シナリオは、各経路から曝露された対象物質が100%吸収されると仮定する等、条件を過剰に見積もり、安全側のリスク評価が可能となるよう設定した。

### 4-3. 曝露量計算及びハザード比の算出

曝露量は、経口、経皮、吸入の経路別に平均一日摂取(曝露)量を以下式より計算した。測定値が定量下限値未満で特定の数値が得られなかった場合は、各試験における定量下限値を用いて計算した。これら各計算による最大溶出濃度またはグラウンド上の空気中最大濃度以外の項目は、前述の年齢群毎の日本人サッカー競技者における曝露シナリオ設定で得た数値を用いた。

・平均一日経口摂取量( $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ ) = 活動時のゴム粒子の直接経口摂取量 ( $\text{g}/\text{day}$ ) × ゴム粒子からの最大溶出量( $\mu\text{g}/\text{g}$ ) / 体重( $\text{kg bw}$ ) × 年間活動日数( $\text{day}$ ) / 年間の日数( $\text{day}$ )

・平均一日経皮摂取量( $\mu\text{g}/\text{kg bw}/\text{day}$ ) = 活動時の皮膚へのゴム粒子付着量 ( $\text{g}/\text{day}$ ) × ゴム粒子からの最大溶出量(汗) ( $\mu\text{g}/\text{g}$ ) / 体重( $\text{kg bw}$ ) × 年間

活動日数( $\text{day}$ ) / 年間の日数( $\text{day}$ )

・平均一日曝露濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) = グラウンド上の空気中最大濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) × 運動時呼吸量( $\text{m}^3/\text{hr}$ ) × 年間の総活動時間( $\text{hr}$ ) / 平均呼吸量( $\text{m}^3/\text{hr}$ ) / 年間の総時間( $\text{hr}$ )

### 4-3-1. VOCs

VOCsは、吸入経路による曝露シナリオに基づき曝露量を計算した。各物質の測定値(空気中濃度  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ : 20 の場合)のうち、最大値を用いて計算した。許容値が得られた物質については、その中で最も低い値で平均一日曝露濃度あるいは平均一日摂取量を除してハザード比を求めた。その際、労働者曝露のために設定された許容値の場合、週7日24時間曝露と仮定した場合の一日当たりの値に換算し、労働者曝露から一般人への曝露の間の不確実性を考慮した係数10で除した値を、許容値として扱った。許容値が得られなかった物質については、平均一日曝露濃度あるいは平均一日摂取量を求めた。

### 4-3-2. 金属及びSVOCs

経口、経皮、吸入すべての経路の曝露シナリオに基づき曝露量計算(平均一日曝露濃度あるいは平均一日摂取量の算出)を行った。許容値は収集した中で最も低い値を採用した。経皮経路の許容値はほとんどないため、経口経路の許容値を適用した。許容値が得られなかった物質については、平均一日曝露濃度を求めた。

### 4-3-3. 特定の物質

#### 4-3-3-1. 白血病あるいはリンパ腫を誘発することが知られる物質

RIVMの報告書で言及された、スチレン、ベンゼン、2-メルカプトベンゾチアゾール、及び1,3-ブタジエンを解析対象とした。過剰発がん率が $10^{-5}$ の実質安全量(Virtually Safe Dose, VSD)と吸入曝露量とのハザード比を求め、発がん性に関するリスク評価を行った。過剰発がん率が $10^{-5}$ のVSDは、USEPAのIntegrated Risk Information System (IRIS)及び米国ミシガン州のMDEQが公表しているCHEMICAL UPDATE WORKSHEETを調査した。一方VSDの情報が

得られなかった場合は、ユニットリスク (UR, ある有害物質の単位曝露量 (吸入曝露では  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) にヒトが生涯にわたって曝露されたときに被ると思われる特定の健康被害の起こる確率) を調査し、 $10^{-5}$  を UR で除すことにより VSD とした。本来、発がんリスクを評価する場合は、生涯平均一日曝露濃度 (一生涯 70 年とする) を求めてハザード比を導出するが、サッカーは一生涯しないこと、生涯平均一日曝露濃度は平均一日曝露濃度よりも小さくなることから、本研究では、ハザード比の導出には平均一日曝露濃度を用いた。

#### 4-3-3-2 . 水銀

先行研究で EPDM 製ゴムチップに検出された Hg の最高濃度 ( $0.064 \mu\text{g}/\text{g}$ ) を用いて、経口、経皮、吸入経路の曝露量計算を行った。今回ゴムチップから全量溶出したと仮定して計算した。

#### 4-3-3-3 . 刺激性物質

ECHA 報告書において、室内競技場での刺激性が懸念されたメチルイソブチルケトン、ホルムアルデヒド、アセトンの 3 物質、及びベンゾチアゾールと 2-メルカプトベンゾチアゾールを対象に、刺激性に関するリスク評価を試みた。対象 5 物質のグラウンド大気中最大濃度値を、米国エネルギー省 (DOE) の OFFICE of ENVIRONMENT, HEALTH, SAFETY & SECURITY が公表する化学的防護基準値 (Protective Action Criteria ,PAC) の PAC-1 値で除し、ハザード比を求めた。

以上の各物質に関する検討において、ハザード比が 1 を超えた物質については、より現実的なシナリオによる評価あるいは毒性機序等に基づいた詳細評価を行うこととした。

#### (倫理面への配慮)

本研究に、研究対象者に対する人権擁護上の配慮、不利益・危険性の排除や説明と同意 (インフォームド・コンセント) への対応及び実験動物に対する動物愛護上の配慮等を必要とする内容は含まれていない。

## C . 研究結果

## 1 . VOCs の分析結果

### 1-1 . 人工芝グラウンドの大気中 VOCs 濃度

測定対象とした VOCs 53 化合物のうち、グラウンド大気中に検出された VOCs は 36 化合物であり、残り 17 化合物 (1,3-ブタジエン、トランス-2-ブテン、シス-2-ブテン、シス-1,2-ジクロロエチレン、クロロホルム、1,1,1-トリクロロエタン、テトラクロロエチレン、クロロベンゼン、1,3,5-トリメチルベンゼン、1,2,3-トリメチルベンゼン (1S)-(-)- $\alpha$ -ピネン、(R)-(+)-リモネン、*n*-トリデカン、ビフェニル、*n*-ペンタデカン、アニリン、2-メルカプトベンゾチアゾール) は検出下限値以下であった。ベンゼンは、いずれの地点においても環境基準値以下であった。

サンプリング地点の比較として、フィールド内 3 地点の大気中 VOCs 濃度をバックグラウンドと比較したところ、グラウンドごとに若干の違いが認められるが、一定した傾向はなかった。屋内と屋外グラウンドを比較したところ、屋内グラウンドの方が顕著に高い濃度を示した。濃度が高かった化合物は、ベンゼン、メチルイソブチルケトン、デカナール、ベンゾチアゾール、ホルムアルデヒドであった。屋内グラウンドのみで検出された化合物は (1S)-(-)- $\alpha$ -ピネン、*n*-ウンデカン、ナフタレン、*n*-テトラデカン、*n*-ヘキサデカン、*t*-ブチルアミン、ジブチルヒドロキシトルエンであった。

屋外グラウンド A においては昨年度結果との比較をして、夏冬の季節影響を調べた。対象 VOCs の検出数は概ね同等であった。夏季の方が高い濃度を示した化合物は、アセトン、メチルエチルケトン、*n*-ブタノール、1,4-ジクロロベンゼン、デカナール、ホルムアルデヒドであり、冬季の方が高い濃度を示した化合物はヘキサシレン、*m*-、*p*-キシレン、*n*-デカン、1,2,4-トリメチルベンゼンであった。

### 1-2 . グラウンドより採取したゴムチップから放散される VOCs 量

先行研究で収集したグラウンドに充填前のゴムチップ試料から放散されるベンゾチアゾールの中央値は  $2.4 \mu\text{g}/\text{g}$  であったのに対し、人工芝グラウンドから採取したゴムチップから放散される中央値は  $0.14 \mu\text{g}/\text{g}$  であった。また、メチルイ

ソブチルケトンも充填前試料からが 1.6 µg/g に対し、0.29 µg/g であった。その他の VOCs は全て検出下限値 (0.04 µg/g) 以下であった。

## 2. 金属類の分析結果

測定対象とした 28 元素のうち、20 元素 (Zn、Al、Fe、Mg、Cu、Co、Mn、Ba、Pb、Sr、Ni、Cr、Sn、Rb、V、Li、Ga、Cd、Sb 及び Hg) がいずれかのゴムチップ試料で検出された。Mn、Fe、Co、Cu、Zn 及び Rb の濃度が屋外 C で高かったが、それ以外は 4 か所の試料で大きな差はなかった。本研究試料で得られた各元素の中央値の多くは、先行研究で収集したグラウンドに未使用のゴムチップ試料での中央値と同等であり、最大値と最小値の幅は先行研究の範囲内であった。

ほとんどの金属類は人工胃液による溶出液で最も濃度が高く、人工腸液、人工唾液及び人工汗は同程度であった。15 元素 (Mg、Al、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Rb、Sr、Ba 及び Pb) がグラウンドから採取したゴムチップの溶出液のいずれか 1 つ以上で検出された。ゴムチップ中の金属類の溶出率は、Mn 以外、含有量の 10% 未満と少なかった。先行研究で入手したゴムチップ試料についても同様に溶出試験を行った結果、Sn が追加された以外同じ元素が検出された。人工芝グラウンドから採取したゴムチップに比べて溶出率が 10% を超える元素は多く、Mg、Mn、Fe、Cu、Zn、Sr 及び Rb が人工胃液を用いたとき認められた。

## 3. SVOCs の分析結果

### 3-1. ゴムチップ中の SVOCs 含有量

4 か所のグラウンドから採取したゴムチップには、調査対象としたゴム添加剤等 42 化合物中、19 化合物が検出された。これらの化合物濃度のほとんどは、屋内グラウンド試料の方が、他の地点で採取した試料よりも高かった。PAHs 及び類縁化合物類では、調査対象とした 32 化合物中、31 化合物が検出された。ジベンゾフラン、フェナントレン及び 4 種類のメチルフェナントレン等の濃度は、屋内グラウンドから採取したゴムチップ試料の方が、他の地点に比べて高い傾向を示した。一方、ベンゾ[a]アントラセン、トリフェニレン及

びクリセン等ではその傾向は認められなかった。

### 3-2. ゴムチップからの SVOCs の溶出

人工芝グラウンドから採取したゴムチップ試料の溶出試験で、ゴム添加剤等は 9 化合物が定量下限 (LOQ) 以上で検出された。ベンゾチアゾロン、ベンゾチアゾール、1,3-ジフェニレングアニジン及びジシクロヘキシルアミンは、4 か所のグラウンドのうち屋内グラウンドの試料で溶出量が最も多かった。各化合物の溶出率は、ベンゾチアゾール、ベンゾチアゾロン、*N*-シクロヘキシル-1,3-ベンゾチアゾール-2-アミン、フタルイミド及び 9,10-ジヒドロ-9,9-ジメチルアクリジンでは概ね十~二十数%程度、2-メルカプトベンゾチアゾール、1,3-ジフェニルグアニジン及び *N*-(1,3-ジメチルブチル)-*N'*-フェニル *p*-フェニレンジアミンでは 0.079 ~ 4.6% と相対的に低かった。

先行研究で収集した試料では 27 化合物が検出された。2-メルカプトベンゾチアゾール及びアセトフェノン等の溶出率は 10% 以下であったのに対し、ベンゾチアゾロン、ベンゾチアゾール及び PI 等では、数十~90% と高い溶出率を示した。各人工体液間で比較すると、人工胃液が他に比べて検出頻度が高く、特に芳香族アミン系老化防止剤の *N*-(1,3-ジメチルブチル)-*N'*-フェニル *p*-フェニレンジアミン等で、他の人工体液に比べて溶出量が多い傾向を示した。一方、フタルイミドなどの溶出量は人工体液による違いは認められなかった。

PAHs 及び関連化合物については、グラウンドから採取した試料 C 及び D の人工胃液による溶出液に、フェナントレン等いくつかの PAHs が検出されたのみであった。先行研究で収集した 8 試料については、全ての化合物で溶出量は LOQ 以下であった。

今回得られた最大溶出率と先行研究の充填前試料の最大含有量から、各人工体液への推定最大溶出濃度を算出した。その結果、フルオレンでは溶出試験の LOQ が溶出試験に用いた試料中の含有量を超えていたため、100% 溶出と仮定し、後述のリスク評価に用いた。

## 4. ゴムチップ関連物質のリスク評価

#### 4-1．許容値の調査

VOCs は、測定対象とした 53 化合物すべてについて調査し、このうち、分離して測定できない *m*-キシレンと *p*-キシレン、及び 3-エチルトルエンと 4-エチルトルエンについては、それぞれをまとめて 1 化合物として扱った。金属類は、測定対象とした 28 元素のうち、人工芝グラウンドから採取したゴムチップ試料から検出できた 20 元素に As、Se を加えた 22 元素の許容値を調査した。PAHs を含む SVOCs は、測定対象とした 74 化合物すべてについて調査した。許容値が得られた物質は、VOCs については 51 化合物中 34 化合物、PAHs は 32 化合物中 20 化合物、SVOCs は 42 化合物中 8 化合物、金属類は 22 元素中 17 元素であった。各物質における経口及び吸入経路の許容値のうち最小の値を、後述するハザード比の導出に用いた。

#### 4-2．日本人向け曝露シナリオの設定

##### 4-2-1．体重

平成 29 年国民健康・栄養調査（厚生労働省、2018）結果の各年齢の男女の平均体重の 25 パーセントイルの平均値とした。

##### 4-2-2．年間活動日数と 1 日当たりの活動時間

###### (1) 小学生（低学年）

小学校低学年を対象としたサッカースクール等のホームページを調査し、最も長い総活動時間を示すスクールの練習条件を採用した。その結果、練習頻度を週 3 回、1 日当たりの活動時間を 2.83 時間（8.5 時間/3 日/週）、年間の活動（練習・試合）時間については 442 時間とした。

###### (2) 小学生（高学年）

年間の活動（練習・試合）日数は、1 週間当たり 4 回の活動を設定し、208 日（=52 週/年×4 日/週）と仮定した。1 日当たりの最大活動時間を 4 時間とした。

###### (3) 中学生

年間の活動日数は、日曜日、夏休み 3 日及び年末年始休暇 4 日を除く 306 日と仮定した。日本スポーツ振興センターの報告（2010）を参考に、1 日当たりの時間加重平均値（3.33 時間）を活動日の平均活動時間とした。

###### (4) 高校生

年間活動日数は 306 日と仮定した。4.17 時間を活動日の平均活動時間とした。

###### (5) 大学生

年間活動日数は他年代学生と同じ。アスリートプランニング（2015）アンケート回答から、1 日当たりの最大活動時間を 4 時間とした。

###### (6) 大人

年間活動日数は 306 日と仮定した。プロサッカー選手の練習時間をもとに、1 日当たりの最大活動時間を 2.5 時間とした。

各年齢群の年間の総活動時間は、年間活動日数と 1 日当たりの活動時間の積として計算した。

#### 4-2-3．呼吸量

##### (1) 平均呼吸量

各年齢群の平均呼吸量（m<sup>3</sup>/時）は、体重 70 kg の人の一日呼吸量を 20 m<sup>3</sup> とし、次式のように各年齢群の体重で補正して求めた。

$$\text{平均呼吸量} = 20 \times (\text{体重}/70)^{3/4} / 24$$

##### (2) 活動時の呼吸量

米国 EPA 2011 年のデータを基に、上記の式により各年齢群別に体重補正し、平均呼吸量及び年間の活動時の呼吸量を求めた。

#### 4-2-4．ゴム由来の PM<sub>10</sub> 濃度

人工芝グラウンドで競技者が吸入し得るゴム由来の PM<sub>10</sub> 濃度は 12 µg/m<sup>3</sup> とした。この濃度は、ノルウェー屋内競技場で測定された最高濃度にゴム由来が 30% 占めることから来る。

#### 4-2-5．人工芝との接触皮膚面積

##### (1) 体表面積と部位別体表面積

各年齢の男女の身長と体重の 95 パーセントイル値から、以下の式で推定した。

$$S = 88.83 \times W^{0.444} \times H^{0.663}$$

ここで、S：体表面積（cm<sup>2</sup>）、W：体重（kg）、H：身長（cm）である。さらに 16 部位の体表面積を計算した。

##### (2) 接触体表面積

腿部（大腿部 + 下腿部）の 1/4 と手部及び腕（上腕部 + 前腕部）のそれぞれの 1/2 が人工芝と接触するとした。

##### (3) 活動時のゴム粒子付着量



年齢別に接触体表面積 (cm<sup>2</sup>) にゴムチップの皮膚付着量 (1 mg/cm<sup>2</sup>) を乗じて計算した。

#### 4-2-6 . ゴムチップの直接摂取量

米国での年齢群別土壌とダストの合計摂取量の 95 パーセンタイル値とした。

#### 4-3 . 曝露量の計算とハザード比の算出

##### 4-3-1 . VOCs

各人工芝グラウンドにおける最大空気中濃度から平均一日曝露濃度を算出し、それを許容値で除してハザード比を求めた。許容値の情報が得られたほとんどの物質で、いずれの年代の曝露シナリオでも、ハザード比は 1 未満となり、これらの VOCs の吸入曝露による健康リスクは懸念されるレベルにはないことを確認した。トリクロロエチレンについては、他のグラウンドに比して高濃度で検出された 1 か所のグラウンドを除き、いずれの年齢層の吸入曝露シナリオにおいても、ハザード比は 1 未満であった。一方、許容値が得られなかった物質については、平均一日曝露濃度を求めるに留めた。

##### 4-3-2 . 金属及び SVOCs

曝露シナリオ毎に、ゴムチップ中の最大濃度、ゴムチップからの最大溶出濃度、空気中濃度 (吸入曝露のみ) 等から平均一日経口 / 経皮摂取量または平均一日曝露濃度 (吸入曝露) を求め、許容値と比較してハザード比を求めた。許容値が得られた金属及び SVOCs のほとんどは、いずれの曝露シナリオにおいても平均一日曝露濃度が許容値より十分低く、健康リスクは懸念されるレベルにはないことが確認できた。SVOCs であるエチレンチオウレア及び金属の Cr については、先行研究で収集した充填前のゴムチップ製品の結果を用いた一部のシナリオにおいてハザード比が 1 を超えていた。

エチレンチオウレアについては、経口曝露 (小学校低学年及び高学年のみ) 及び経皮曝露 (全年齢層) のハザード比が 1 以上であった。エチレンチオウレアの経皮曝露量は、汗に溶出した物質を吸収率 100% で皮膚から吸収すると仮定した。そこで、米国 EPA の Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I: Human Health

Evaluation Manual (Part E, Supplemental Guidance for Dermal Risk Assessment), Final (2004) で推奨されている数式を改変した式を用いて、経皮吸収量の推定を行った。この式では水溶液 (汗) 中のエチレンチオウレア濃度を設定する必要があることから、以下のように求めた。ETU は皮膚に付着するゴムチップ量 2 g とその推定最大溶出濃度 10 µg/g の積の 20 µg とした。小学低学年 ~ 中学生のサッカー活動中の全身発汗量を 1200 mL、高校生、大学生、大人のサッカー活動中の発汗量を 2000 mL と仮定した。これをゴムチップと接触する可能性がある皮膚 (手と腕の 1/2 + 腿部の 1/4) の割合で補正し、さらに、汗の水分は常に蒸発しているので、皮膚上に常に存在する汗の量を割振り量の 1/10 とした。以上から計算した汗中濃度を用いて、ETU の経皮曝露量を再計算した。その結果、エチレンチオウレアのハザード比は全年齢層においていずれも 1 未満となった。

経口曝露では、小学生低・高学年を想定したシナリオにおいて、ハザード比が各々 1.5、1.3 となった。エチレンチオウレアに関する許容値としては米国 EPA が Integrated Risk Information System により設定した The oral Reference Dose (RfD: 参照用量 = 生涯人が毎日曝露を受けても有害影響のリスクがないと推測される摂取量) を用いてハザード比を求めた。なお、FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議 (JMPR) では一日摂取許容量を 0.004 mg/kg/day と設定しており、この値でハザード比を求めた場合、ゴムチップ製品に由来するエチレンチオウレアの小学校低学年及び高学年への経口曝露によるハザード比は、各々 0.029、0.025 となった。

Cr については、緑色 EPDM 製ゴムチップを用いた曝露量計算において、吸入曝露 (全年齢層) のハザード比が 1 以上であった。Cr については六価クロムの許容値を用いたが、ゴムチップの緑色が金属又は酸化クロムの顔料によるものと考え、それらの許容値を用いて再解析した。労働者を対象とした日本産業衛生学会が設定する金属及び三価クロムの許容値 0.5 mg/m<sup>3</sup> を一日当たり

の値に換算し、一般人との間の不確実性を考慮した係数 10 で除した値 ( $11.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) を求め、ハザード比を導出した。その結果、ハザード比は小学校低学年 0.0086, 小学校高学年 0.016, 中学生 0.015, 高校生 0.017, 大学生及び大人 0.015 となった。なお、今回人工芝グラウンドから採取したゴムチップの Cr については、いずれの曝露シナリオでも六価クロムの許容値に対するハザード比は 1 未満であった。

#### 4-3-3 . 特定の物質

##### 4-3-3-1 . 白血病あるいはリンパ腫を誘発することが知られる物質

スチレン、ベンゼン、1,3-ブタジエンの UR あるいは VSD 値を用い、各年齢層におけるハザード比を求めたところ、いずれのシナリオにおいても 1 未満であった。2-メルカプトベンゾチアゾールについては、UR あるいは VSD に関する情報を得ることができず、ハザード比を求めることはできなかった。

##### 4-3-3-2 . 水銀

先行研究において測定されたゴムチップ中の最大濃度を用いて曝露量を計算した。いずれの曝露シナリオ、投与経路においても、ハザード比は 1 より十分低かった。

##### 4-3-3-3 . 刺激性物質

対象とした 5 物質について、グラウンド空気中濃度の最大値、PAC-1 値から計算されたハザード比は十分に低い値であった。ホルムアルデヒドについては、国内室内濃度指針値  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (25 の場合) とのハザード比は 0.071 であった。

#### D . 考察

ゴムチップ関連物質の曝露量を把握するため、VOCs については人工芝グラウンドの大気分析を、SVOCs や金属類については経口及び経皮曝露を想定したゴムチップの溶出試験を行った。

IARC のモノグラフにおいて人に対して発がん性を示す物質に分類されるベンゼンは、いずれの人工芝グラウンドにおいても WHO 欧州地域事務局のガイドライン値 ( $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  : ユニットリスクの  $10^{-5}$  レベル換算値) 及び我が国における大気環

境基準値 ( $0.003 \text{mg}/\text{m}^3$  : 1 年平均値) 以下であった。また、人に対して発がん性を示す可能性のある物質 (グループ 2A) に分類される 1,3-ブタジエンは、いずれのグラウンドにおいても検出限界 ( $0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 以下であった。ホルムアルデヒドは WHO 欧州において  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (30 分平均値) のガイドライン値が示されているが、十分に下回っていた。トリクロロエチレン及びジクロロメタンも環境基準値 (トリクロロエチレン  $0.13 \text{mg}/\text{m}^3$  : 1 年平均値, ジクロロメタン  $0.15 \text{mg}/\text{m}^3$  : 1 年平均値) よりも顕著に低い濃度であった。屋外人工芝グラウンドと屋内人工芝グラウンドで大気中 VOCs 濃度と比較したところ、屋内のメチルイソブチルケトン、ベンゾチアゾール等の濃度が高かった。また、屋内のみで検出された化合物も散見された。屋内人工芝グラウンドにおいてはゴムチップに限らず種々の製品に由来する VOCs が空气中に滞留する可能性があり、恒常的に十分な換気を促す必要があると考えられる。

同一グラウンドにおける季節間差について検討したところ、アセトン、*n*-ブタノール、1,4-ジクロロベンゼン等が夏季に高い値を示した。一般的に、外気温が高い夏季の方が VOCs の放散量が相対的に高くなると考えられるが、グラウンド近郊の数多の外的要因 (工場や事業所の存在、それらにおける化石燃料の燃焼、自動車の排ガス、風向等の気象条件) があり、ゴムチップに由来を限定する VOCs 量の変化を確認することは困難であった。

各グラウンドで採取したゴムチップから放散される VOCs 量を、先行研究のグラウンド充填前ゴムチップからの量と比較したところ、メチルイソブチルケトンは 18.6% に、ベンゾチアゾールは 5.7% に減少し、グラウンドに使用後経時的に減衰することが示唆された。

金属類に関して、グラウンドから採取したゴムチップ中に 20 元素が検出されたが、その濃度は先行研究のグラウンド充填前のゴムチップと差は認められなかった。グラウンドに施工後の自然環境下のゴムチップの劣化等による金属類の溶出性に対する影響は少ないことが推察された。

RIVM や ECHA の報告書では金属類について、ゴムチップからの溶出性をもってリスクを判断している。溶出試験は、平成 15 年環境省告示 19 号、人工芝充填物中の溶出可能な有害金属類に関する規格 (ASTM F3188-16) 及び玩具の安全性評価のための欧州規格 (EN71-3:2013) 等の規格基準を参考に、既法と同等もしくは生体内に取り込まれた状況を再現した条件を採用した。多くの金属類において人工胃液の溶出割合が高く、少数ではあるが 10% を超える元素も確認できた。しかしそれらの溶出量は参考値として比較した土壤汚染対策法の土壤含有量基準や欧州の玩具安全性規格 (EN71-3:2013) の移行限度値を大きく下回った。RIVM の報告では人工汗及び人工胃腸液中への最大溶出量を見積もっている。人工汗で Pb が 0.07 µg/g、Co が 0.48 µg/g 及び Cd が 0.02 µg/g、人工胃腸液では Pb が 9 µg/g、Co が 2 µg/g 及び Cd は未検出としており、本研究の各人工体液における溶出量はそれらを下回り、ゴムチップの経口摂取または皮膚接触を通じた曝露量は概して少ないと考えられた。

ゴムチップ中の SVOCs の含有量をグラウンドから採取した試料と先行研究の充填前試料とで比較したところ、ほとんどの化合物はグラウンドから採取したゴムチップの方が少なかった。また全体として、屋外の方が屋内グラウンドのゴムチップよりも含有量が少ない傾向が認められた。PAHs 及び類縁化合物についても同様の傾向が認められた。グラウンドへの施行前後でゴムチップ中のゴム添加剤等や PAHs 等の濃度が大幅に低下することは、廃タイヤ由来のゴムパッドで同様の現象が報告されており、使用されているゴムチップの違いもあるが、紫外線等による分解や揮散、雨水への流亡等の影響が原因と考えられた。

ゴムチップ中に含有が認められた化合物であっても、溶出試験で LOQ 以下となるものが多かった。LOQ 以上で検出された化合物は、グラウンドから採取した試料よりも先行研究のグラウンド充填前試料からの溶出率が高くなる傾向を示した。ベンゾチアゾール、ベンゾチアゾロン、フタルイミド及びリン酸トリエチルは溶出率が高

いのに対して、含有量の多いフタル酸ジ(2-エチルヘキシル)、フタル酸ジイソノニル及びジイソノニルシクロヘキサン-1,2-ジカルボキシレート等の可塑剤類はほとんど LOQ 以下だった。これは、各化合物の物性(オクタノール・水分配係数など)が影響していると考えられた。*N*-(1,3-ジメチルブチル)-*N*-フェニル-*p*-フェニレンジアミン等の芳香族アミン系老化防止剤の人工胃液への溶出傾向が高い要因としては、これらの化合物が塩基性であり、pH が低い人工胃液に溶出しやすかったと考えられた。フタル酸エステル類や PAHs の人工体液への溶出量は含有量と正の相関を示す事が報告されているが、含有量と溶出量が相関しない試料が存在した。その試料は表面が緑色の着色コーティングが施されており、これにより含有されているゴム添加剤等の溶出が抑えられていると考えられた。

試料中に含有されるものの溶出液には検出されない化合物については、LOQ 値を溶出値と仮定して溶出率を算出した。曝露量のワーストケースとして、最大溶出率の値を用いた推定最大溶出量を算出し、以下のリスク評価に用いた。

許容値については、当初先行研究により発がん性の懸念あるとされた 37 物質を対象としたが、測定対象とした物質全てを調査し、最終的には 79 物質について得ることができた。

本研究では、フィールド調査から得たデータを用い、日本人サッカー競技者を想定した本研究独自の曝露シナリオを設定し、各経路からの曝露量推定及びリスク評価を行った。許容値に関する情報がなかった対象物質については、ハザード比を求めることができないため、リスク評価の対象外とした。許容値の情報が得られたほとんどの物質について、今回調査した人工芝グラウンドのゴムチップからの健康リスクは懸念されるレベルにはないことを確認できた。また、先行研究で入手した、グラウンド充填前のゴムチップ試料に検出し、かつ許容値を得ることができた多くの物質は、いずれの曝露シナリオにおいても、健康リスクは懸念されるレベルにはないことを確認できた。

一方、ハザード比が 1 を超えた物質については、

詳細に評した。トリクロロエチレンについては、1 か所のグラウンドを除き、いずれの年齢層の吸入曝露シナリオにおいても、ハザード比は1未満であった。一方、他のグラウンドに比して高濃度で検出された1か所のグラウンドについては、小学校高学年～大学生を想定した吸入曝露シナリオにおいて、ハザード比が1をわずかに超えたが（USEPAがIRISにより設定したRfCを元に許容値を0.002 mg/m<sup>3</sup>と設定し、小学校高学年～大学生それぞれの曝露濃度（μg/m<sup>3</sup>）を2.5、2.3、2.5、2.4と推計した場合）このグラウンドについては、バックグラウンドとして測定したグラウンド外の大気中トリクロロエチレン濃度と、グラウンド内で測定した大気中トリクロロエチレン濃度が同程度であることが確認されている。よって、グラウンド内で検出されたトリクロロエチレンが人工芝に充填されたゴムチップに由来している可能性は極めて低いと考えられた。

なお、トリクロロエチレンについては、ヒト及び動物の腎臓等に発がん性を有することが示唆されており、USEPA IRISが報告したユニットリスク（ $4.1 \times 10^{-6}$  per μg/m<sup>3</sup>）から過剰発がん率10<sup>-5</sup>の実質安全量（VSD）を求めると2.4 μg/m<sup>3</sup>となる。このVSDをもとに、生涯の発がんリスクを評価するための総ハザード比（USEPAの呼吸量に基づいて得た各年齢層の生涯一日曝露濃度に基づくハザード比の合計）を求めた結果、0.31と1未満であった。以上より、トリクロロエチレンによる発がん影響が、実際にサッカー競技者に発生する可能性は低いと考えられた。

エチレンチオウレアは100%皮膚に吸収されると仮定した当初の曝露量計算法ではハザード比が1を超えるが、皮膚からの吸収率を勘案したより現実的な計算法によりハザード比は1未満となり、健康リスクは懸念されるレベルにはないことを確認できた。経口曝露では、小学生低・高学年を想定したシナリオにおいて、ハザード比が1を超えた。なお、エチレンチオウレアの許容値は、USEPAのRfDを用いた。一方、IARCは、エチレンチオウレアの発がん性分類をグループ3（ヒトに対する発がん性については分類できない物

質）としているが、その根拠はマウス及びラットでみられる甲状腺腫瘍は甲状腺ホルモンの不均衡が起因する非遺伝毒性的機序によるものであり、ヒトが当該物質に曝露されるレベルは甲状腺ホルモンの恒常性に影響を及ぼす濃度ではないため、ヒトでは甲状腺腫瘍の発生は考えられないとしている。また、IARCは、疫学研究及び動物を用いた毒性試験の結果から、甲状腺ホルモンの不均衡による腫瘍発生に対する感受性は、げっ歯類（ハムスターを除く）の方がヒトより高いとしている。EPAは、ヒトでの一生涯の曝露量がRfDを超えた場合、必ずしも健康影響が生じるわけではないとしている。本解析における経口曝露シナリオは、唾液、胃液及び腸液に溶出した当該物質が100%吸収されることを想定しており、実際よりも過剰に曝露量を見積もられる。エチレンチオウレアは、先行研究で収集したグラウンド充填前の46種のゴムチップ製品のうち、3種のみから検出され、当該3製品はいずれも工業用ゴム由来であった。米国では廃タイヤ由来ゴムチップの安全性が懸念され、調査対象とされている。また、本年度国内4か所のグラウンドから採取したゴムチップにはエチレンチオウレアは検出されていない。なお、JMPRが設定した一日摂取許容量で計算しており、リスク評価に際して、この値を用いて計算した場合、ゴムチップ製品に由来するエチレンチオウレアの小学校低学年及び高学年への経口曝露によるハザード比は、各々大きく1を下回ることも確認した。以上を踏まえて検討した結果、エチレンチオウレアの甲状腺への影響が、実際に小学生サッカー競技者に発生する可能性は低いと考えられた。

Crについては、先行研究で収集した充填前ゴムチップ製品1種の測定値を用いた曝露量推定において、全年齢群を想定した吸入曝露シナリオによるハザード比が1を超えていたが、当該製品は緑色顔料としてCr（酸化クロムとして）が含まれているためと考えられ、一般的に金属クロム及び三価クロムは六価クロムより毒性が低い。本解析においてCrのハザード比の導出は安全側に立った六価クロムの許容値から求めたが、上記より金属

及び三価クロムの許容値について再検討した。日本産業衛生学会が設定した値から許容値を求めハザード比を導出した結果、いずれの年齢群でも1を大きく下回り、当該製品に由来する金属及び三価クロムの吸入曝露による健康リスクは懸念されるレベルにはないことを確認できた。なお、今回人工芝グラウンドから採取したゴムチップのCrの六価クロムの許容値に基づくハザード比はいずれの曝露シナリオでも1未満であった。この結果は、国内の人工芝グラウンドを使用するサッカー競技者に対するCrによる健康リスクの懸念は、十分低いことを示している。

以上、ハザード比が1を超えたトリクロロエチレン、エチレンチオウレア及びCrについては、より現実的なシナリオによる評価あるいは毒性機序等に基づく検討の結果、これらが日本人サッカー競技者に対し健康影響を及ぼす可能性は低いと判断した。

スチレン、ベンゼン、2-メルカプトベンゾチアゾール、1,3-ブタジエンは白血病及びリンパ腫を誘発することが知られている。2-メルカプトベンゾチアゾール以外の3物質は、本研究で設定した曝露シナリオの条件下であれば、日本人サッカー競技者が人工芝ゴムチップ由来の各物質により白血病あるいはリンパ腫が発生する可能性は低いことが確認できた。RIVMの報告書でも、同様の結果が報告されている。2-メルカプトベンゾチアゾールについては許容値を得ることができなかったが、人工芝グラウンドの空気中には定量下限値未満であり、競技者が曝露される量は十分に少ないことから、本物質に起因する腫瘍発生の可能性は低いと考えられた。

なお、今回、許容値を得ることができなかった対象物質については、ハザード比を求めることができないため、リスク評価を行うことが困難であった。これらの物質については、今後国内外において設定される許容値等を待ってリスク評価を実施することが望ましい。

## E. 結論

ゴムチップを使用した人工芝グラウンド上で競

技する人の健康リスクを評価することを目的に、我が国のゴムチップから検出された化学物質について曝露量を推定し、許容値との比較を行った。ゴムチップ関連物質の曝露量の把握に当たって、VOCsの吸入曝露量については実際の人工芝グラウンドでのフィールド上の大気分析、金属類及びSVOCsについてはゴムチップの経口及び経皮曝露を想定した各種人工体液を用いた溶出試験を実施し、さらに各年代のサッカー競技者を想定した曝露シナリオの設定を行った。

屋外人工芝グラウンド3か所及び屋内1か所の大気を採取した。屋外グラウンドでは、フィールド内とフィールド外の対照地点との間でVOCs 53化合物の濃度に大きな差は認められなかった。ベンゼンはグラウンドのいずれの地点においても各種環境基準値以下であった。1,3-ブタジエンは検出下限値以下、ホルムアルデヒドはWHO欧州のガイドライン値を十分に下回っていた。屋外及び屋内グラウンドいずれもフィールド内と対照地点との間でほとんどのVOCs濃度に大きな差は認められなかった。

グラウンドから採取したゴムチップを分析した結果、対象とした金属類28種のうち20元素がいずれかの試料で検出された。各金属類の濃度は先行研究の中央値とほぼ同程度であった。グラウンドから採取したゴムチップ及び先行研究のグラウンド充填前のゴムチップの一部について、人工胃液、人工腸液、人工唾液及び人工汗を用いた溶出試験を行った。多くの金属類は人工胃液への溶出が多く、含有量に対する溶出率が10%を超えるものもあったが、それらの溶出量は国内外の限度値を大きく下回った。

先行研究でゴムチップからの検出が確認されたゴム添加剤等42化合物、並びにPAHs及び類縁化合物類32化合物の計74種類のSVOCsについてグラウンドゴムチップ中の濃度を測定した。グラウンド採取試料からはゴム添加剤等19化合物、PAHs及びその類縁化合物31化合物が検出され、ゴム添加剤等のほとんどの濃度は、屋内試料の方が屋外試料よりも高かった。人工体液を用いた溶出試験を実施したところ、ほとんどの化合

物の溶出率はおおむね低く、多くは定量下限値以下であった。

各年齢群に体重、皮膚面積、活動日数及び時間、呼吸量、ゴムチップ由来のPM<sub>10</sub>濃度、ゴムチップの皮膚付着量及び経口摂取量、溶出試験や大気中濃度の測定結果をもとに日本人サッカー競技者を想定した曝露シナリオを設定し、経口、経皮、吸入経路ごとに平均一日摂取量あるいは曝露濃度を求め、許容値で除してハザード比を求めた。許容値を得ることができなかった対象物質の評価は困難であった。今回、人工芝グラウンドのゴムチップに関連する測定値、及び先行研究で用いたゴムチップ製品の測定値を用いた解析で、許容値を得ることができた対象物質の多くは、いずれの曝露シナリオにおいてもハザード比は1未満であった。また、一部の曝露シナリオでハザード比が1を超えた物質についても、より現実的なシナリオによる評価あるいは毒性機序等に基づく検討の結果、これらの化学物質が日本人サッカー競技者に対し健康影響を及ぼす可能性は低いと判断した。

以上、評価対象とした化学物質のうち、許容値を得ることができた人工芝ゴムチップ由来化学物質については、日本人サッカー競技者に対し、発がん性や刺激性を含む健康リスクに関する懸念は十分低いことが確認できた。米国では同様の健康リスクに関する調査研究が終了しておらず、新たな知見が公表された場合には、我が国においても必要に応じて再検討することが望ましい。

## F. 健康危険情報

なし

## G. 研究発表

### 1. 論文発表

なし

### 2. 学会発表

- 1) 五十嵐良明, 河上強志, 西以和貴, 久保田領志, 小濱とも子, 酒井信夫, 田原麻衣子, 重田善之, 森田健: 人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析及び諸外国における研究状況. 第27回環

境化学討論会(2018.5)

- 2) 久保田領志, 小濱とも子, 五十嵐良明: 人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析 金属類. 第27回環境化学討論会(2018.5)
- 3) 西以和貴, 上村仁, 河上強志, 五十嵐良明: 人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析 多環芳香族炭化水素類. 第27回環境化学討論会(2018.5)
- 4) 河上強志, 小濱とも子, 五十嵐良明: 人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析 ゴム添加剤類. 第27回環境化学討論会(2018.5)
- 5) 田原麻衣子, 酒井信夫, 五十嵐良明: 人工芝グラウンド用ゴムチップの成分分析 揮発性有機化合物. 第27回環境化学討論会(2018.5)
- 6) 久保田領志, 小濱とも子, 五十嵐良明: 人工芝グラウンド用ゴムチップ中の金属類の分析. 第55回全国衛生化学技術協議会年会(2018.11)

## H. 知的財産権の出願・登録状況

### 1. 特許取得

なし

### 2. 実用新案登録

なし

### 3. その他

なし