

人工芝充填剤であるゴムチップの有害性に関する総説

青木 豊明¹⁾

Review of Hazards of Crumb Rubber Used as Infill on Artificial Turf

Toyoaki AOKI

Abstract

Concerns for the hazards of artificial turf fields have been raised on multiple occasions in various kinds of scientific reports. This review of the reports published from 2010 to 2016, resulted in a significant number of studies evaluating the hazardous implications of crumb rubber used as infill on artificial turf fields. In this review, these studies identified hazards that could be divided into two parts : inorganic effects and organic effects.

Key words : artificial turf, crumb rubber, hazard, review

キーワード : 人工芝, ゴムチップ, 有害性, 総説

1. 緒言

人工芝は、天然芝のように草を刈ったり、散水したりという手間も少なく、天候に左右されにくいという利点があり、近年、急速に普及が進んでいる。1960年代に登場した第一世代の人工芝は丈の短いパイルのみであった。その後、1980年代に第二世代の人工芝が登場した。充填物として砂が入れられたが、これらは硬いため様々な問題を引き起こした。それらの改良策として、上層に車のタイヤの破砕物（1-3 mm）であるゴムチップ等の弾力性のある材質を充填した、パイルの長さが50mm以上の第三世代のロングパイル人工芝が1990年代に登場した。このロングパイル人工芝が日本国内に初めて施行されたのは2000年である。

月刊体育施設編集部（2015）によると、最

近では毎年およそ180-190のロングパイル人工芝施設が施行されている。2014年度は約220施設が施行され、そのうちの約1/5にあたる46施設が張り替え事例であった。ロングパイル人工芝の耐用年数は8-10年程度と言われており、2009年度頃から張り替え事例が増え始めた。これらの内には、スポーツ振興くじ（toto）助成を受けて整備した施設も多い。例えば2014年、2015年度の各年で67施設が助成を受けている。その内には、小・中・高等学校の人工芝整備も含まれている。

最近、この第三世代のロングパイル人工芝が競技者の健康影響について危惧されている（青木、2016）。人工芝とガンの関連性について米政府が調査を開始すること、また米国環境保護庁、米国消費者製品安全委員会、および米国疾病予防管理センターは共同で、2016年2月12日に人工芝の充填剤の原料として使

1) びわこ成蹊スポーツ大学名誉教授

用されている古タイヤに含有される化学物質の危険性について、調査を開始した。日本においては、2016年3月9日、3月17日の参議院予算委員会で川田龍平氏が、この問題を取り上げた。川田龍平氏からの日本での被害状況の質問に、塩崎厚生労働大臣は、「日本ではそのような調査はまだしていない」と返答している。

本報告では、諸外国において調査された人工芝充填剤であるゴムチップの有害性に関する論文を総説する。発表年としては、2010-2016年の研究論文を主とした。日本においては、ほとんど、この種の論文が見当たらなかった。紹介は、発表年順を原則とした。

2. 無機物の影響

この節においては、ゴムチップに含まれる重金属などの無機物についての報告を取り上げる。

ポルトガルのGomesら(2010)は、ゴムチップそのもの(DC-0814)と、polyvinyl chloride (PVC)などでゴムチップを被覆した二種類(DC-0814/R1:エマルジョン被覆, DC-0814/R2:高分子架橋)からの有害物の溶出を調べている。重金属の溶出方法としては、ゴムチップ1に対してpH 4-5の水溶液10の重量比で混合し、24時間の溶出操作をおこない、0.45 μ mメンブランフィルター

でろ過した試料水中の重金属を分析している。また、メンブランフィルター上の残渣をもう一度、24時間の溶出操作をおこない48時間の試料水として分析している。結果をTable1に示した。

表の右端の欄には、ドイツの環境基準値が記載されている。カドミウム(Cd)、クロム(Cr)、鉛(Pb)はわずかに溶出したが、いずれも環境基準値以下であった。スズ(Sn)がゴムチップ(DC-0814)からは溶出せず、被覆したゴムチップのみから基準値以上の濃度で溶出した。このことからスズ(Sn)は、被覆材料に含まれていた可能性が高いと、Gomesらは考えている。亜鉛(Zn)は、どの試料からも溶出し、特にゴムチップそのもの(DC-0814)からの溶出濃度はドイツの環境基準値以上であったが、ゴムチップを被覆した二種類(DC-0814/R1, DC-0814/R2)からの溶出濃度は、それより低かった。

イタリアのMenichini(2011)らは、国内10都市の13箇所の競技場からゴムチップを採取して、25種の金属と有機物の含有量等を調べた。Table 2に結果を示した。競技場の汚染物の基準値が無いため右端の欄に“green area”における土壌汚染に関する基準値等を記している。有機物に関しては、次の3節で説明する。

25種の金属の内、亜鉛はどの試料も基準値

Table1 Heavy metal content in acidic water leachates prepared from raw and coated rubber granulate samples, lot DC-0814.

Heavy metal	DC-0814		DC-0814/R1		DC-0814/R2		Limits 0814 18035-7 16
	24 hr	48 hr	24 hr	48 hr	24 hr	48 hr	48 hr
Cd	0.001	<0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.005
Cr	0.003	0.002	<0.001	<0.001	0.002	<0.001	<0.05
Hg	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.001
Pb	0.003	0.006	0.003	<0.003	0.019	0.006	<0.04
Sn	<0.005	<0.005	0.02	0.009	0.47	0.31	<0.05
Zn	6.9	1.6	1.7	0.3	3	0.9	<3

Notes: Values presented in mg/L

Table 2 Concentrations(mg/kg, dry weight) of metals and PAHs in 13 rubber granulate samples of various origins.

	Virgin thermoplastic			Coated recycled tyres			Recycled tyres (uncoated)			Recycled of vulcanised rubber			Recycled ground gaskets			Median	Soil contamination standards	
	1/A			2/A			3/A			4/A			5/A				Italy ^b green area use	NY ^c unrestricted use
	1/B	2/A	2/B ^a	3/A	3/B	3/C	3/D	4/A	4/B	5/A	5/B	5/C	5/C					
Metals																		
Al	1.2	6680	490	1028	164	477	755	230	3260	311	4884	2065	5922	755	20	13		
As	0.14	0.94	0.12	0.24	0.41	0.13	0.10	0.10	1.2	0.11	0.54	0.28	0.37	0.24		350		
Ba	4.4	3485	741	4.7	2.4	5.3	23	5.0	31	10	4778	28	22	22		2.5		
Be	0.001	0.11	0.007	0.04	0.01	0.02	0.04	0.008	0.37	0.006	0.15	0.06	0.21	0.04		2		
Cd	0.11	0.37	1.9	0.12	1.9	1.1	0.62	1.7	0.30	0.17	0.17	1.1	0.34	0.37		2		
Co	<0.5	27	234	5.0	116	33	8.8	58	4.1	3.5	9.9	8.4	21	15		1+ 30 ^d		
Cr(total)	49	56	6.2	1.8	<0.3	0.44	4.6	1.2	6.2	<0.3	20	2.5	18	6.2	150	50		
Cu	0.82	55	60	12	22	16	8.7	20	5.9	13	6.3	11	3.4	12	120	50		
Fe	15	4318	465	201	199	291	620	305	637	183	460	241	403	305		1		
Hg	<0.02	0.05	0.07	0.08	0.05	0.16	0.06	0.07	0.06	0.03	0.09	<0.02	0.07	0.07		0.18		
Li	4.3	4.1	0.60	7.4	1.4	1.4	1.1	0.87	11	2.7	1.0	1.5	4.4	1.5				
Mg	470	456	966	668	235	280	653	465	518	186	286	253	123	456				
Mn	5.2	30	4.9	5.2	3.0	4.4	3.6	3.8	10	6.2	16	3.8	8.3	5.2				
Mo	0.04	2.1	0.13	0.09	0.12	0.18	0.29	0.18	0.19	0.11	0.34	6.6	0.30	0.18				
Ni	0.67	1.5	5.8	0.67	2.5	1.3	1.9	2.0	4.4	0.61	5.5	2.4	3.3	2.0	120	30		
Pb	46	43	28	<0.7	26	22	12	22	14	<0.7	35	17	14	22	100	63		
Rb	0.65	12	1.8	3.0	3.1	1.3	0.90	1.2	26	0.78	1.7	1.5	202	1.7				
Sb	0.34	7.7	6.4	1.6	0.52	1.1	0.46	0.53	1.2	36	1.1	0.65	207	1.1	10			
Se	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.03	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	3	<0.3	3.9	
Sn	0.12	2.5	1.74	0.58	2.00	0.79	0.65	2.4	3.0	0.32	1.2	0.98	1.4	1.2	1			
Sr	17	90	12	19	3.8	6.0	5.3	3.2	17	9.9	86	6.9	13	12				
Tl	0.02	0.09	0.07	0.03	0.14	0.06	0.04	0.05	0.21	0.01	0.17	0.9	0.03	0.06	1			
V	0.38	2.4	1.5	1.5	2.2	1.3	3.5	1.4	9.6	0.94	22	9.7	22	2.2	90			
W	0.02	0.84	0.07	0.36	0.06	0.06	0.12	0.06	1.8	0.13	0.79	0.15	0.74	0.13				
Zn	118	6813	19,375	1063	17,772	12,274	10,229	13,781	7611	1408	10,910	14,187	9,488	10,229	150	109		
PAHs a																		
Abbr.																		
Pyrene	0.02	1.51	15.1	0.42	2.77	1.86	9.74	4.48	0.44	0.20	11.2	5.63	0.75	1.86	5	100		
Benz[<i>a</i>]anthracene	0.001	0.29	0.15	0.04	0.21	0.43	0.33	0.36	0.14	0.21	0.09	0.18	0.01	0.18	0.5	1		
Chrysene r	0.01	1.43	0.97	0.99	0.80	2.38	0.65	1.51	1.34	0.50	0.46	0.67	0.03	0.80	5	1		
Benz[<i>b</i>]fluoranthene + BbFA + BkFA	0.001	0.03	0.46	0.05	0.44	1.78	0.27	0.39	0.33	0.08	0.23	0.44	0.01	0.30	0.5+	1+		
Benz[<i>k</i>]fluoranthene f															0.5	0.8		
Benz[<i>a</i>]pyrene	<0.001	0.05	2.30	0.06	3.04	10.7	1.19	1.38	0.77	0.07	0.72	2.83	0.02	0.98	0.1	1		
Indeno[1,2,3- <i>cd</i>]pyrene	0.001	0.09	1.08	0.05	nc	nc	3.73	nc	nc	nc	1.26	nc	0.04	0.08	0.1	0.5		
DBahA	<0.001	nc	nc	0.03	nc	nc	nc	nc	nc	nc	nc	nc	nc	<0.03	0.1	0.53		
Benz[<i>a</i>]anthracene f	0.01	0.28	8.36	0.25	nc	nc	28.2	nc	0.46	0.46	9.02	nc	0.5	0.37	0.1	100		
Benz[<i>ghi</i>]pyrene	0.04	3.67	28.5	1.90	7.25	17.1	45.1	8.11	3.03	1.59	22.9	9.76	1.11	7.25	10 g			
Σ 9 PAHs																		

<...: not detected (the reported concentration is the estimated limit of detection); nc: not calculable due to interference from laboratory blank sample.

a Compound of recycled tyre dust coated by extrusion.

b Threshold values for soils to be reclaimed for use as "green areas".

c NY State, soil cleanup legislation: concentrations requiring no use restrictions.

d Cr(VI) and Cr (III), respectively.

e Ranked according to increasing GC retention time.

f CHR co-eluted with triphenylene; DBahA co-eluted with its isomer BbFA + BkFA also included the unresolved isomer BjFA.

g Threshold value including also four dibenzopyrenes (DBaP,DBBaP,DBBaP,DBBaP) not determined in these samples.

を超えており、多くが2桁以上の含有量で超えていた。この原因として、タイヤに酸化亜鉛が添加物として入れられているためと考えている。さらにコバルト (Co) とスズ (Sn) も、ほぼ半分の試料で基準値を超えていた。また、カドミウム (Cd)、クロム (Cr)、鉛 (Pb) に関しても、かなりの濃度で含有していた。

以上の含有量の高い金属は、先に示した Gomesら (2010) の報告した溶出濃度の高い金属と対応していると青木は考えている。Gomesら (2010) は、スズ (Sn) が被覆材料に含まれていた可能性が高いので溶出した、と推定したが、Table 2 の被覆したゴムチップ (Coated recycled tyres) と被覆していないもの (Recycled tyres (uncoated)) のスズ (Sn) 含有量に大差がないことから、ゴムチップからの溶出の可能性が高いと思われる。

中国のCheng (2014) らは、人工芝の環境および健康影響に関する総説を報告してい

る。ゴムチップからの重金属の溶出濃度は、亜鉛 (Zn) が高く、カドミウム (Cd)、クロム (Cr)、銅 (Cu)、鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、マグネシウム (Mg) はかなり低かった。競技場での二年後の追跡調査では、一般的に亜鉛 (Zn)、鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、アルミニウム (Al) が主なる汚染物であるが、飲料水の最大汚染物濃度基準値 (MCLs) をいずれも超えていなかったと、報告している。また主なる毒性物質として亜鉛 (Zn) を挙げている。しかし、自然系においては希釈され、その毒性が減じられるとも記している。

イタリアのMarsili (2014) らは、Tuscany とLazioにある9箇所のサッカー場のゴムチップを採取して、敷設してからの重金属の含有量の経年変化を調べている。Table 3 に示したように、試料1-5は新しく、これからサッカー場の人工芝に導入されるものである。しかし、試料6-9は1年から8年前に導入されたものである。また、試料5はタイヤの再利

Table3 years of installation in sporting infrastructure of the rubber crumb samples analysed.

Sample	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4	Sample 5	Sample 6	Sample 7	Sample 8	Sample 9
years since installation	0	0	0	0	0	8	2	6	1

Table4 Levels (mg/kg) of cadmium, lead, chromium, nickel, copper, zinc and iron in samples of rubber crumb. The triple horizontal line separates new crumb (samples1-5) and crumb sampled from sporting installations (samples6-9). Values in bold exceeded the limits set by the Italian National Amateur League reported in the last row.

	Cd (mg/kg)	Pb (mg/kg)	Cr (mg/kg)	Ni (mg/kg)	Cu (mg/kg)	Zn (mg/kg)	Fe (mg/kg)
sample 1	1.81	27.86	7.92	26.12	46.42	3474.00	489.60
sample 2	1.77	17.51	17.52	9.86	39.96	3732.00	7256.00
sample 3	0.47	13.97	4.12	4.11	5.59	5314.00	129.12
sample 4	2.05	33.58	3.34	5.27	84.49	13202.00	657.40
sample 5	2.68	11.23	2.84	8.95	9.50	6462.00	355.40
sample 6	2.38	22.84	2.95	5.43	27.47	4866.00	1577.40
sample 7	0.47	10.76	3.58	5.14	5.49	4168.00	543.00
sample 8	1.51	29.44	1.91	3.90	14.43	6006.00	262.00
sample 9	1.53	38.99	5.37	5.75	65.11	4194.00	346.00
Limit (LND,2011)	2.00	100.00	150.00	120.00	120.00	150.00	N.D.

用の破砕物ではなく、新規のゴムチップである。

Table 4 に重金属の含有濃度 (mg/kg) を示している。また、最下段にItalian National Amateur Leagueの最大許容濃度も記載されている。鉛 (Pb)、クロム (Cr)、ニッケル (Ni)、銅 (Cu) は全ての試料で最大許容濃度以下であった。しかし、カドミウム (Cd) は新しく導入される試料 4, 5 と、既に導入されていた試料 6 で最大許容濃度以上であった。亜鉛 (Zn) に関しては、すべての試料で最大許容濃度を超していた。特に、試料 1 で 20倍以上であり、試料 4 は最大で、ほぼ90倍以上であった。

3. 有機物の影響

この節においては、ゴムチップに含まれる有機物についての報告を取り上げる。

米国のLi (2010) らは、種々の供給源のゴムチップからの揮発性と半揮発性有機物の放出量を主に調べている。方法としては、研究室で容器内にゴムチップを入れ、一定条件で放置して、気相中に出てきた有機物量を測定している。10種の有機物を検出したが、それらは benzothiazole (BT), 1-methylnaphthalene (1-MeNA), 2-methylnaphthalene (2-MeNA), fluoranthene (Flu), naphthalene (NA), butylated hydroxyanisole (BHA), butylated hydroxytoluene (BHT), 4-tert-octylphenol (4-t-OP), phenanthrene (Phe), pyrene (Pyr) である。

Table 5 に、気相中に出てきた有機物量を示した。5種 (T1-T5) のゴムチップはコネチカット州の5つの学校の貯蔵袋に保存していたものである。8種 (T6-T12, Te) のゴムチップおよび3種 (A1-A3) の代替ゴムチップは5社からの商業用のものである。全てのトラベルのゴムチップは自然の風雨にさらされていない。また、2種 (F2, F4) はT2, T4のゴムチップを二年前に屋外に導入済みのゴ

ムチップである。

これらの内で、揮発性のbenzothiazole (BT) が、調べた全てのゴムチップで最も高い量で気相中に揮発した。使用していないゴムチップからは15-69ng/g、そして代替ゴムチップからは8.2-10ng/g (CRM) の範囲内であった。また、二年前に屋外に導入済みのゴムチップからはBTは0.76, 0.86ng/gと少なく、また1-MeNA, 2-MeNA, NAは検出されなかった。しかし4-t-OPとBHAは、使用していないゴムチップからの揮発量の40%超える程度で検出された。全ての使用していないゴムチップからの量は、BHA, NA, 4-t-OPで2.6-6.0, 0.41-3.4, 0.46-4.1ng/gの範囲であった。全てのゴムチップで1-MeNA, 2-MeNAは0.23-1.1, 0.48-1.6ng/gの範囲であったが、代替ゴムチップからは検出されなかった。しかし、BHTに関しては、13種のゴムチップの内の7種で検出されず、5種で0.9-1.2ng/gで検出され、全ての3種の代替ゴムチップから3.2, 3.9, 5.4ng/gの量で検出された。

まだ使用されていないゴムチップ (Te) を屋外の自然環境に類似した条件で2009年8月3日から10月12日まで曝し、6種の有機物 (BT, 1-MeNA, 2-MeNA, NA, BHA, 4-t-OP) の気相濃度を一週間毎に測定している。二週間で4種の有機物 (BT, 1-MeNA, 2-MeNA, NA) は、初期の約20-30%まで減少し、ほぼ一定になった。BHAは二週間で50%以上残存し、4-t-OPは60%以上残存した。これらの結果と、Table 5の結果より、ゴムチップを自然環境に曝した場合、10種の有機物の残存比率は以下の順序になる。

Flu/Pyr > Phe/4-t-OP > BHT > BHA > 1-MeNA > BT > 2-MeNA > NA

オランダのvan RooijとJongeneelen (2010) はサッカー選手がサッカーをおこなう時に健康影響の問題があるPAH (polycyclic

Table5 Volatile organic compounds (ng g⁻¹) in the headspace of CRM samples (RSD%)^a.

sample ID	Supplier	Collection time	1-MeNA	2-MeNA	4-t-OP	BT	NHT	NA	BHA
T1	School 1 storage bag	August-09	0.52(16)	0.78(2)	1.4(22)	15(3)	n.d.	1.8(1)	3.4(3)
T2	School 2 storage bag	March-09	0.26(1)	0.54(3)	1.6(8)	69(3)	n.d.	0.78(7)	5.4(3)
T3	School 3 storage bag	September-09	0.66(13)	1.1(3)	3.7(7)	22(1)	1.1(3)	2.2(2)	5.2(4)
T4	School 4 storage bag	March-09	0.85(6)	1.2(4)	2.5(14)	45(2)	n.d.	2.5(3)	4.9(1)
T5	School 5 storage bag	March-09	1.0(10)	1.5(5)	2.2(3)	32(2)	n.d.	3.4(1)	4.0(3)
T6	Company A	August-09	0.23(7)	0.48(7)	1.0(18)	23(6)	1.0(3)	0.61(3)	4.0(5)
T7		September-09	0.78(2)	1.2(3)	3.9(4)	34(1)	n.d.	2.5(1)	5.2(5)
T8	Company B	March-09	0.32(5)	0.54(3)	2.5(1)	52(2)	1.2(1)	1.3(3)	5.6(5)
T9		September-09	0.29(1)	0.49(3)	2.4(6)	32(1)	1.3(4)	0.90(6)	5.0(3)
T10	Company C	March-09	0.64(3)	1.1(3)	2.5(9)	39(2)	0.94(7)	1.9(3)	6.0(6)
T11		August-09	0.53(1)	0.89(1)	1.8(9)	39(2)	1.1(6)	1.6(5)	5.1(3)
T12	Company D	April-09	1.1(6)	1.6(4)	4.1(14)	28(3)	n.d.	1.9(2)	5.5(11)
Te	Company E	August-09	0.74(1)	1.1(1)	2.1(7)	16(1)	n.d.	2.4(1)	3.6(7)
A1	Company A	August-09	n.d.	n.d.	0.58(6)	10(1)	3.9(1)	0.46(7)	2.8(5)
A2	Company B	March-09	n.d.	n.d.	3.5(15)	9.7(2)	5.4(2)	0.68(2)	2.9(1)
A3		September-09	n.d.	n.d.	0.46(7)	8.2(3)	3.2(3)	0.41(1)	2.7(4)
F2	School 2 field	October-09	n.d.	n.d.	1.4(1)	0.86(7)	n.d.	n.d.	2.6(1)
F4	School 4 field	October-09	n.d.	n.d.	1.1(7)	0.76(2)	n.d.	n.d.	3.0(5)
LOQ ^b	-	-	0.2	0.4	0.4	0.6	0.1	0.2	0.02

^a Relative standard deviation (RSD) given in percent on the basis of duplicate samples measurements.

^b The limit of quantification (LOQ) was determined in the lowest standard when S/N=10.

aromatic hydrocarbon) の体内への取り込みを検討している。この際、尿中のHpy (1-hydroxypyrene) をPAHの体内への取り込みのマーカースとして調べた。このHpyはカーボンブラックを扱う作業員やゴム製造員の尿中に、かなりのレベルで見つかっている。

対象としたサッカー選手は男子7名でボランティアとして参加している。選ばれた条件としては、非喫煙、男子、PAHsに曝されるような職業に従事していない、皮膚病の処置を受けていない、等である。人工芝上での試合90分を含む練習は2.5時間である。まず試合の前日に各選手の尿を採取し、種々の影響のバックグラウンドとして参考にした。試合と

練習は午前からおこない、開始前と、終了後の夕方まで尿を採取する。採取は3日間の合計で一人当たり20回おこなった。

Table 6 にサッカーの前後のHpy排出速度の結果を示した。選手7名の内の3名 (D, E, F) はかなり高く、排出速度は変動した。それらと比較して、他の4名 (A, B, C, G) は低い排出速度であった。4名 (A, B, C, G) のHpy濃度レベルは通常で、各個人の変動も小さかった。しかし、B選手のみが、試合と練習後に排出速度がかなり増大していた。これは、その後のB選手への聞き取りで、フライド・ハンバーガーをスポーツ活動後に食べたことによる可能性が高い。友人の

Table6 Pre-sporting and post-sporting urinary elimination rate of 1-hydroxypyrene in football players.

Person	Pre-sporting excretion AM (SD) nmol/h	Post-sporting excretion AM (SD) nmol/h	Difference between post and pre-sporting	Statistical significant increase
A	0.04(0.03)	0.03(0.01)	-0.01	-
B	0.03(0.02)	0.14(0.13)	+0.11	P=0.004
C	0.10(0.07)	0.07(0.01)	-0.03	-
D	0.35(0.34)	0.15(0.11)	-0.20	-
E	0.48(0.14)	0.20(0.07)	-0.24	-
F	0.33(0.16)	0.24(0.07)	-0.09	-
G	0.08(0.05)	0.11(0.04)	+0.03	-

D選手も同時に食べており、排出速度は幾分、増大していた。

以上の結果や、その他の要因から考えて、van RooijとJongeneelenはゴムチップを充填した人工芝上でのサッカー選手のPAH暴露は限定的ではないかと結論づけている。

米国のSimcoxら (2011) は、Connecticut州内の4箇所の屋外と1箇所の屋内のゴムチップ充填人工芝上と、1箇所の天然芝上の気相中の揮発性有機化合物 (VOC)、半揮発性有機化合物 (SVOC)、benzothiazole (BZT) やnitrosamineなどのゴム関連化学物質および粒子状物質 (PM10) を調べている。天然芝上の試料はバックグラウンドのレベルと見なしている。

Table 7 にはVOCおよびSVOCなどを含むPAHの濃度が示されている。Benzo[a]pyreneなどの数種の物質は屋外ゴムチップ充填人工芝上での濃度がバックグラウンドよりも高かった。また、屋内のゴムチップ充填人工芝上では1-methylnaphthalene, 2-methylnaphthalene, fluorene, naphthalene, pyreneの濃度がバックグラウンドよりも10倍以上高かった。全てのPAHの中で、naphthaleneの濃度が113ng/m³と最も高かった。ただ、以上の屋内ゴムチップ充填人工芝は1箇所しか測定していないので、限界があると言わざるを得ないとSimcoxらも認めている。

前節2 (無機物の影響) で紹介したイタリアのMenichini (2011) らは、国内10都市の13

箇所の競技場からゴムチップを採取して、9種のPAHsの含有量等を調べている。また、ローマの競技場1箇所のゴムチップに関しては、PCBsを含むダイオキシン類と13種のPAHsの含有量等を調べている。

Table 8 にはローマの競技場1箇所のゴムチップの有機物の含有量等が示されている。PAHsの総量はイタリアの土壤基準値を3倍超えていた。またbenzo[a]pyreneは一桁大きく超えていた。30種のPCBsとダイオキシン類の総量は、それぞれ0.18 および0.67x10⁵mg/kgで、イタリアの土壤基準値の3倍超および2/3程度であった。

気相中のbenzo[a]pyrene濃度は競技場を使用することにより0.4ng/m³まで増大した。最悪な条件として、この濃度を用いて競技者が30年間活動した場合、その付加的な癌発生リスクは1x10⁻⁶と見積もられた。しかし競技者が不連続に使用したり、アマチュアの使用の場合は、この数値より低くなると予想される。

スペインのLlompartら (2013) はゴム再生タイヤを用いた遊技場などに含まれる有害有機物を報告している。本総説では、人工芝の充填剤としてゴムチップを含むものを対象としたが、この論文を関連するものとして、ここで取り上げた。

試料としてスペイン北西部の9箇所の遊技場から21種のゴム片と7種のタイル等のpaversが集められた。試料は全て直径約0.3cm程度に粉碎され、超音波を用いた抽出

TABLE7 Comparison of VOC Personal Air Concentrations($\mu\text{g}/\text{m}^3$) Across All Fields (Outdoor, Indoor, and Grass)

Volatile organic compound	Outdoor turf A-D, $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (N=8)			Indoor turf K, $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=2)		Grass field L, $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=3)		
	LOD/ ^a	Number		Number		Number		
		of	Maximum	of	Maximum	LOD	of	Maximum
		detects		detects		detects		
1,2,4-Trimethyl benzene	<0.49	3	1.16	2	2.11	<0.42	1	8.83
1,2-Dichloropropane	<0.49	1	1.14	0	ND ^b	<0.39	0	ND
1,3,5-Trimethyl benzene	<0.49	1	1.37	1	1.18	<0.42	1	4.58
1-Ethy-4-methyl benzene	<0.49	1	1.86	1	1.37	<0.42	1	7.11
Acetone	<1.19	8	52.17	1	92.48	<0.95	3	40.3
Acrolein	<1.15	4	3.66	2	3.89	<0.92	3	2.97
Benzene	<0.32	3	1.56	2	1.18	<0.27	1	1.3
Bromodichloromethane	<0.66	0	ND	1	0.62	<0.66	0	ND
Bromoform	<1.02	4	13.29	1	34.75	<0.87	0	ND
Carbon disulfide	<0.31	2	0.5	2	0.87	<0.26	0	ND
Chlorobenzene	<0.46	1	0.78	0	ND	<0.39	0	ND
Chloromethane	1.16	8	1.7	2	1.57	<0.17	3	1.23
Cyclohexane	<0.34	3	17.51	2	10.3	<0.29	1	4.81
Dichlorodifluoromethane	2.28	8	2.47	2	3.02	<0.42	3	2.72
Ethyl acetate	<0.36	7	11.87	2	11.87	<0.31	3	8.27
Ethylbenzene	<0.43	1	4.29	2	4.77	<0.37	1	2.14
Halocarbon 11	<0.48	8	1.85	2	2.07	<0.48	0	ND
Heptane	<0.41	4	5.72	2	10.22	<0.35	1	2.13
Hexane	<0.30	7	31.29	2	11.25	<0.30	1	6.96
M/P-Xylene	<0.87	2	10.83	2	12.13	<0.74	1	4.64
Methyl ethyl ketone	<0.23	6	2.94	2	44.15	<0.25	3	7.83
Methyl isobutyl ketone	<2.04	4	3.39	2	22.08	<1.64	0	ND
Methylene chloride	<0.34	2	14.08	2	10.3	<0.29	0	ND
o-Xylene	<0.43	1	3.9	2	4.03	<0.37	1	2.43
Propene	<0.17	7	0.89	2	0.76	<0.15	1	1.46
Styrene	<0.43	1	1.96	2	3.53	<0.36	1	2.51
Tetrachloroethylene	<0.67	1	3.29	2	1.34	<0.57	1	14.48
Tetrahydrofuran	<1.48	1	2.47	2	3.53	<1.18	1	1.58
Toluene	<0.53	8	52.66	2	135.4	<0.45	3	39.12
Trichloroethylene	<0.53	1	23.39	2	2.23	<0.45	1	3.35
Vinyl acetate	<0.35	2	1.23	1	2.95	<0.30	2	1.88

^aLOD=limit of detection. LOD is the same for fields A-D and K

^bND,concentration below LOD.

法 (UAE) もしくは加圧下の抽出法 (PSE) で有機物を抽出し、分析された。Figure 1 に分析結果を示した。31種の有機物は 1-200 $\mu\text{g g}^{-1}$ の範囲で存在した。最も毒性が高いと考えられる benzo[a]pyrene は 5 つの試料で見つかった。タイルなどの pavers からは、PAHs の高いものとしては 400-17000 $\mu\text{g g}^{-1}$ の範囲で存在した。注目すべきは、benzo[a]pyrene が 340 $\mu\text{g g}^{-1}$ 以上のものが存在した。

以上の結果より、子ども達の遊ぶ遊技場などへのゴム再生タイヤの使用は法規制を考えるべきだと記している。

前節 2 (無機物の影響) で紹介したイタリアの Marsili (2014) らは、Tuscany と Lazio にある 9 箇所のサッカー場のゴムチップを採取して、PAHs の同定、含有量、および揮発性を調べ、リスクアセスメントをおこなっている。

Table8 Concentrations of PAHs, NDL-PCBs,PCDDs and PCDFs(mg/kg,dw) in the recycled tyre granulate from the playing field No.2.

PAHs		NDL-PCBs	
PY	14.2	2,2',5-T3CB[18]	6.16×10^{-3}
BaA	0.51	2,4,4'-T3CB[28]	6.28×10^{-3}
CHR ^a	5.01	2,4',5-T3CB[31]	7.8×10^{-3}
BbFA + BkFA ^a	2.3	2,3',4'-T3CB[33]	$<0.10 \times 10^{-3}$
BaP	1.81	2,2',4,5'-T4CB[49]	9.27×10^{-3}
IP	1.02	2,2',5,5'-T4CB[52]	8.24×10^{-3}
DBahA ^a	0.36	2,3',4,4'-T4CB[66]	3.97×10^{-3}
BghiP	6.93	2,3',4,5'-T4CB[70]	6.16×10^{-3}
DBaIP	<0.05	2,4,4',5-T4CB[74]	2.36×10^{-3}
DBaeP	0.18	2,2',3,4',6-P5CB[91]	0.93×10^{-3}
DBaIP	<0.05	2,2',3,5',6-P5CB[95]	6.78×10^{-3}
DBahP	<0.06	2,2',4,4',5-P5CB[99]	3.28×10^{-3}
Σ 13 PAHs	32.5	2,2',4,5,5'-P5CB[101]	9.99×10^{-3}
Italian soil legislation ^b	See footnote ^c	2,3,3',4',6-P5CB[110]	9.62×10^{-3}
		2,2',3,3',4,4'-H6CB[128]	3.52×10^{-3}
		2,2',3,4,4',5'-H6CB[138]	12.9×10^{-3}
PCDDs + PCDFs	$\times 10^{-5}$	2,2,3,4,5,5-H6CB[141]	3.7×10^{-3}
2,3,7,8-TCDD	<0.08	2,2,3,4,5,5-H6CB[146]	2.22×10^{-3}
1,2,3,7,8-Pe-CDD	<0.10	2,2,3,4,5,6-H6CB[149]	10.2×10^{-3}
2,3,4,7,8-Pe-CDD	<0.15	2,2,3,5,5,6-H6CB[151]	2.98×10^{-3}
1,2,3,4,7,8-HxCDD	<0.11	2,2,4,4,5,5-H6CB[153]	16.2×10^{-3}
1,2,3,7,8,9-HxCDD	<0.12	2,2,3,3,4,4,5-H7CB[170]	5.34×10^{-3}
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	40.9	2,2,3,3,4,5,6-H7CB[174]	4.16×10^{-3}
OCDD	288	2,22,3,3,4,5,6-H7CB[177]	2.29×10^{-3}
2,3,7,8-TCDF	0.26	2,2,3,4,4,5,5-H7CB[180]	11.6×10^{-3}
1,2,3,7,8-Pe-CDF	<0.08	2,2,3,4,4,5,6-H7CB[183]	2.34×10^{-3}
2,3,4,7,8-Pe-CDF	<0.07	2,2,3,4,5,5,6-H7CB[187]	4.4×10^{-3}
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.3	2,2,3,3,4,4,5,5-O8VC[194]	$<0.22 \times 10^{-3}$
1,2,3,6,7,8-HxCDF	<0.20	2,2,3,3,4,4,5,6-O8VC[196]	$<0.25 \times 10^{-3}$
1,2,3,7,8,9-HxCDF	<0.25	2,2,3,4,4,5,5,6-O8VC[203]	$<0.19 \times 10^{-3}$
2,3,4,6,7,8-HxCDF	<0.25	Σ 30 PCBs	0.18
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	1.49	Italian soil legislation ^b . Σ PCBs ^e	0.06
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	<0.11	NY soil legislation ^f . PCBs ^e	
OCDDF	2.92	unrestricted use	0.1
Σ 17 PCDDs + PCDFs	334	residential use	1
WHO - TE PCDDs + PCDFs	0.67 ^d		
italian soil legislation ^b .	1		
WHO - TE PCDDs + PCDFs			

PAH abbreviations as per Table 1. DBaIP : dibenzo [a,l] pyrene: analogously for DBarP.

DBaIP DBaIP. DBaIP. <...: see footnote in Table 1.

a See footnote f in Table 1.

b Threshold values for soils to be reclaimed for use as "green areas".

c See Table 1 (column "Green area use") for the threshold values of Σ PAHs and individual PAHs. The threshold value for each DBP is 0.1 mg/kg.

d Medium-bound estimate (<LOD entered in the sum as 1/2 LOD).

e Congeners unspecified.

f New York State. soil cleanup legislation. Concentrations requiring no use restriction and concentrations allowed for a residential use.

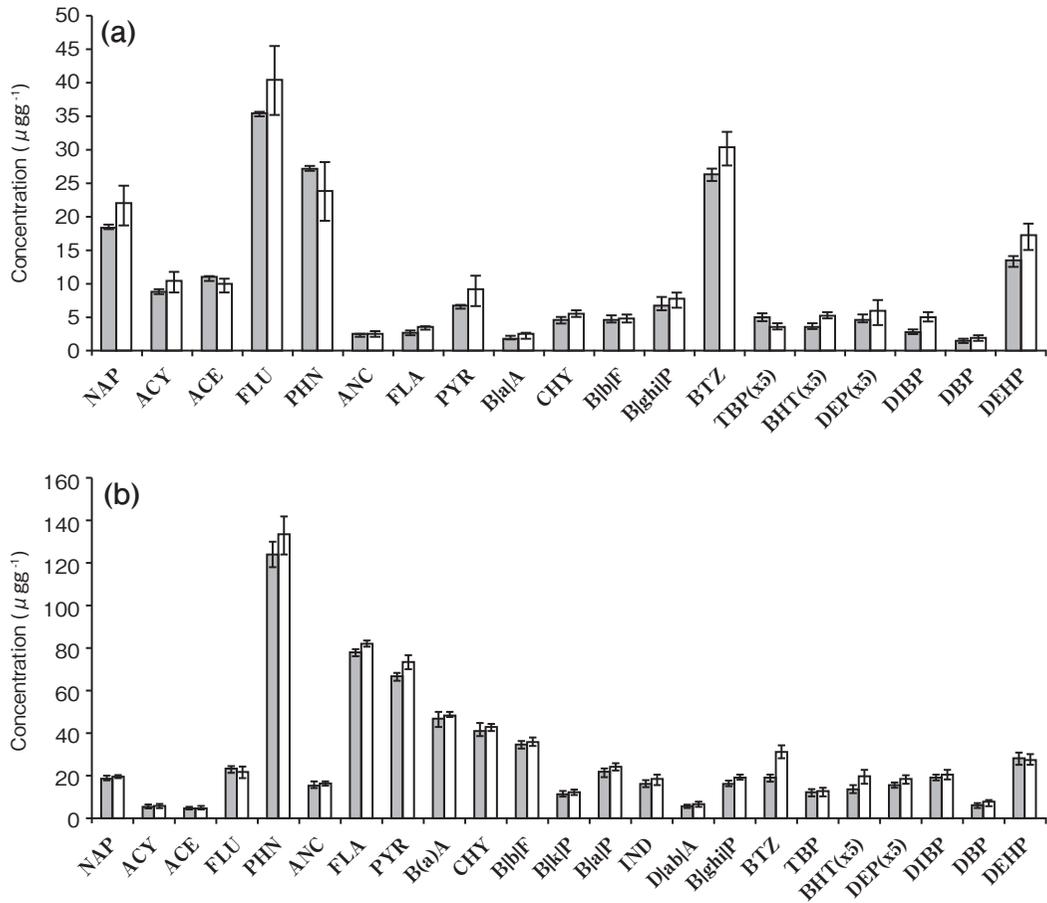


Fig. 1. Extraction of real samples by UAE (black) and PSE (white): (a) playground sample and (b) commercial paver.

Table 9 には、同定したPAHsと主要な機関による発がんの可能性の分類を示している。IARC (国際がん研究機関) が、ヒトに対する化学物質の発がん性について5段階で分類評価している。その分類で最も評価の厳しい1 (ヒトに対して発がん性が有る。) に benzo[a]pyrene が同定された。また、次に厳しい2A (ヒトに対して恐らく発がん性が有る。) には dibenz(a,h)anthracene, 次いで2B (ヒトに対して恐らく発がん性が有るかもしれない。) には benzo(a)anthracene, chrysene, benzo(b)fluoranthene, benzo(k)fluoranthene, indeno(1,2,3cd)pyrene が見いだされた。

4. 結言

2節 (無機物の影響) で紹介したいずれの論文においても亜鉛がかなりの濃度で溶出することが報告されている。Aoki (2008) は先に、酸性雨によりゴムチップから亜鉛やマンガンなどの重金属が溶出する可能性について報告した。亜鉛は水生生物等への有害性から、日本においては工場または事業所から公共水域に排水する排出基準値が 2 mg/L と規制されている (環境省, 2006)。

3節において有機物の影響に関する論文を紹介した。その中で特に注目すべきことは、IARC (国際がん研究機関) の、ヒトに対す

Table 9: PAH compounds detected in rubber crumb samples. Abbreviations: S – petrogenic; C – pyrogenic. Grey shades indicate carcinogenicity, determined in at least three published studies, and degree of carcinogenicity.

Compound	Abbreviation	Structure (# of rings)	Formula	Molecular weight (g/mol)	Carcinogenicity IARC (2008)	Carcinogenicity NTP (2005)	Carcinogenicity IPCS (1998)	Carcinogenicity NRCC (1983)
Naphthalene (S)	Naph	2	C10H8	128.17	2B		(?)	0
Acenaphthene (S)	Ace	3	C12H8	154.21	3		(?)	0
Fluorene (S)	Fl	3	C13H10	166.22	3		-	0
Phenanthrene (S)	Phen	3	C14H10	178.23	3		(?)	0
Anthracene (S)	Ant	3	C14H10	178.23	3		-	0
Fluoranthene (C)	Flt	4	C16H10	202.26	3		+	0
Pyrene (C)	Pyr	4	C16H10	202.26	3		(?)	0
Benzo (a) anthracene (C)	B[a]A	4	C18H12	228.29	2B	Yes	+	+
Chrysene (C)	Chry	4	C18H12	228.29	2B	Yes	+	±
Benzo (b) fluoranthene (C)	B[b]F	5	C20H12	252.32	2B	Yes	+	++
Benzo (k) fluoranthene (C)	B[k]F	5	C20H12	252.32	2B	Yes	+	0
Benzo (a) pyrene (C)	B[a]P	5	C20H12	252.32	1	Yes	+	+++
Dibenz (a,h) anthracene (C)	D[ah]A	6	C22H14	278.35	2A	Yes	+	+++
Benzo (g,h,i) perylene (C)	B[ghi]Per	6	C22H12	276.34	3		(?)	0
Indeno (1,2,3cd) pyrene (C)	I[1,2,3-cd]P	6	C22H12	276.34	2B	Yes	+	+
					1 demonstrated carcinogenic 2A probable carcinogenicity 2B possible carcinogenicity 3 carcinogenicity not demonstrated		+ positive - negative ? uncertain () insufficient evidence	0 not carcinogenic ± uncertain carcinogenicity + carcinogenic

(著者が一部削減)

る化学物質の発がん性の分類評価 (Marsili et.al., 2014) で最も評価の厳しい1 (ヒトに対して発がん性が有る。) に当たるbenzo[a]pyreneがゴムチップから検出されていることである。車のタイヤの破砕物であるゴムチップには酸化亜鉛, イオウ, および, 補強剤としてカーボンブラック (炭素微粒子) などがタイヤ製造時に入れられている。このカーボンブラックの生産時にベンゾピレンという化学物質が生じることを, 環境省ホームページの化学物質 (22. ベンゾピレン) の環境リスク評価に記されている。この22. ベンゾピレン「一般毒性及び生殖・発生毒性」の項内の「ヒトに関する発ガン性の知見」において, アメリカ, カナダの10製鉄所のコークス炉労働者の69人が肺ガンで死亡しており, ベンゾピレンの係わりが大きいと推定している。また, 国内兵庫県の人造黒鉛電極製造工場の累積332人の男性労働者の調査では, 肺ガンによる死亡9人と有意に高い結果となっていた。また, 「健康リスク評価」において, 「ヒトに対して恐らく発ガン性があるとされている」と記されている。また, 「健康リスクの初期評価結果」においては, 「本物質の経口ばく露による健康リスクについては発ガン性の観点から詳細な評価を行う候補と考えられる」とも記載されている。

以上, 記してきたようにゴムチップ内には種々の有害物が含まれており, そこからの排出汚染も懸念される。紹介した論文では主に単独の有害性が懸念されているが, それらの相乗的な複合汚染による健康影響や生態影響についての報告は無く, 現状では予測が困難である。それについては, ゴムチップが充填された多くの人工芝上での競技者の健康影響と天然芝上での競技者の健康影響を比較調査する疫学的調査をおこなう必要があると筆者は考える。また, 日本においては人工芝の充填剤であるゴムチップの有害性に関する詳細な調査, 研究がほとんど無いのが残念である。予防原則の原理から考えても, ゴムチップの

使用は問題があると思える。子どもも含めて, 誰もが安全に楽しく競技できるスポーツ環境場が必要である。

引用文献

- Aoki, T. (2008) Leaching of heavy metals from infills on artificial turf by using acid solution. *Football Science*, vol.5, 51-53.
- 青木豊明 (2016) 人工芝充填剤である黒ゴムチップの有害性, *環境技術*, vol.45, No.4, 49-50.
- Cheng, H., et al., (2014) Environmental and health impacts of artificial turf : A review, *Environ. Sci. Technol.*, vol.48, 2114-2129.
- 月刊体育施設編集部 (2015) 全国的広がり見せる施工実績, *月刊体育施設*, No.582, 7-53.
- Gomes, J., et al., (2010) Toxicological assessment of coated versus uncoated rubber granulates obtained from used tires for use in sport facilities, *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, vol.60, 741-746.
- 環境省 (2016) ; 化学物質の環境リスク評価 第5巻 (2) ベンゾピレン, <https://www.env.go.jp/chemi/report/h18-12/pdf/chpt1/1-2-2-22.pdf> (参照2016-3-11).
- 環境省 (2006) 排水基準を定める省令等の一部を改正する省令, 環境省省令第33号.
- Li, X., et al., (2010) Characterization of substances released from crumb rubber material used on artificial turf fields, *Chemosphere*, 80, 279-285.
- Llompert M., et al., (2013) Hazardous organic chemicals in rubber recycled tire playgrounds and pavers, *Chemosphere*, 90, 423-431.
- Marsili, L., et al., (2014) Release of polycyclic aromatic hydrocarbons and heavy metals from rubber crumb in synthetic turf fields : Preliminary hazard assessment for athletes, *J. Environ. Anal. Toxicol.*, vol.5, issue 2, 1000265.
- Menichini, E., et al., (2011) Artificial-turf playing fields : Contents of metals, PAHs, PCBs, PCDDs and PCDFs, inhalation exposure to PAHs and related preliminary risk

- assessment, *Science of the Total Environment*, 409, 4950-4957.
- Simcox, N.J., et al., (2011) Synthetic turf field investigation in Connecticut, *J. Toxicol. & Environ. Health, Part A*, 74: 1133-1149.
- Van Rooij, J.G.M., and Jongeneelen, F.J. (2010) Hydroxypyrene in urine of football players after playing on artificial sports field with tire crumb infill, *Int. Arch. Occup. Environ. Health*, 83, 105-110.