

学位被授与者氏名	市来 弥生 (Yayoi ICHIKI)
学位の名称	博士 (工学)
学位番号	博 (一) 第 1 5 号
学位授与年月日	平成 2 0 年 3 月 2 5 日
論文題目	非イオン系界面活性剤の環境動態解明を目的とした微生物学的研究
論文題目 (英訳または和訳)	Microbiological Study to Clarify the Environmental Fate of Nonionic Detergent
論文審査委員	論文審査委員会 委員主査 : 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 吉川 博道 同審査委員: 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 川上 満泰 同審査委員: 福岡工業大学大学院物質生産システム工学専攻教授 三田 肇 同審査委員: 福岡工業大学大学院知能情報システム工学専攻教授 赤木 文男
論文審査機関	福岡工業大学大学院工学研究科
論文内容の要旨 (和文)	<p>内分泌かく乱現象は世界的な問題として関心が高まっている。内分泌系に関わる影響として、野生生物、特に水生生物において生殖障害を引き起こすことが報告されている。通常、多くの環境汚染物質は一部の微生物によって生物学的分解を受け、その毒性を失う。これに対し、アルキルフェノールポリエトキシレート (APEOs) は異なる種類の問題を引き起こす。環境中に放出された APEOs それ自身には毒性はない。しかし、その分解産物はエストロゲン活性、あるいは抗アンドロゲン活性を獲得する。</p> <p>この論文は、APEO の環境動態に影響を及ぼす微生物の分布と同定、単一鎖長ポリエチレングリコール (PEG) 側鎖を持つ APEOs 標品の新規合成、APEO 分解微生物の生物分解メカニズム、環境微生物への MALDI-MS の適用について検討したものである。</p> <p>第 1 章では、APEO 分解微生物の分布と分解産物の同定について述べる。日本各地 174 ヶ所から表土を採取した。分解菌探索のために、各土壌サンプルを Triton X (<i>tert</i>-octylphenol polyethoxylate) を単一炭素源とする無機塩培地で培養した。その結果、72 ヶ所の土壌サンプルが Triton X 分解活性を示した。その中の一つ、沖縄県から採取した土壌は Triton X を OP1EC (4-<i>tert</i>-octylphenoxyacetic acid) へ好氣的に分解した。集積培養液から単離した Triton X 分解菌は PEG 側鎖を短鎖化する能力を持ち、培地中に、OP3EO (4-<i>tert</i>-octylphenol triethoxylate) と OP2EO (4-<i>tert</i>-octylphenol diethoxylate) を蓄積した。</p> <p>第 2 章では、APEO 分解菌の分離と同定について述べる。集積培養液から単離した菌は 16S rDNA の RFLP 解析により、暫定的に同定された。<i>Pseudomonas</i>, <i>Agrobacterium</i>, <i>Alkaligenes</i> などの APEO 分解能を持つ一連の <math>\gamma</math>-Proteobacteria は、日本の土壌に広く分布し、環境中でエストロゲン活性を持つ代謝産物を生産することを明らかにした。</p> <p>第 3 章では、長い単一鎖長の PEG 側鎖を持つ APEO ホモログの新規合成について述べる。炭酸カリウム存在下における 2-[2-(2-chloroethoxy)ethoxy]ethanol による 4-<i>tert</i>-octylphenol のフェノール性水酸基のウィリアムソンアルキル化は対応する 9-(4-<i>tert</i>-octylphenyl)-3, 6, 9-trioxanonan-1-ol (OP3EO) を定量的に与えた。相関移動触媒存在下で、炭酸カリウムの代わりに粉砕した水酸化ナトリウムを使用することにより、末端水酸基がアルキル化された OP3EO、18-(4-<i>tert</i>-octylphenyl)-3, 6, 9, 12, 15, 18-hexaoxaoctadodecan-1-ol (OP6EO)、27-(4-alkylphenyl)-3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 24, 27-nonaohaheptacosan-1-ol (OP9EO) などの混合物を生成した。</p> <p>第 4 章では、APEO の生物分解における APEO のアルキル基の影響について述べる。芳香環の <i>para</i> 位に様々なアルキル基を持つ AP3EO を合成した。AP3EO は 3 株の <i>Pseudomonas putida</i> に単一炭素源として与えられた。アルキル基が <i>tert</i>-butyl 基のとき、すべての <i>P. putida</i> が AP3EO を分解し、定量的に対応する AP2EO を蓄積した。小さいアルキル基 (R = H, methyl, ethyl) を持つ AP3EOs を与えたとき、<i>P. putida</i> は AP3EOs を分解し、培養液中に AP2EO、AP1EO を蓄積した。これらの結果は、APEO の生物分解が芳香環 <i>para</i> 位のアルキル基の立体的な大きさに大きく影響を受けること</p>

	<p>を示した。</p> <p>第5章では、長鎖単一鎖長 PEG 側鎖を持つ APEO の利用について述べる。長鎖単一鎖長 PEG 側鎖を持つ APEO の利用は、APEO の分解メカニズムの研究に有効であった。OP10EO を用いた分解試験の結果、1 EO ユニット短いホモログ OP9EO の HPLC 分析によるピークエリアが、培養 2~4 時間後に徐々に増加した。培養 6 時間後の培養液の MALDI-TOF マススペクトルは OP10EO の酸化生成物である OP10EC の存在を示した。この結果は、酸化的分解は PEG 側鎖の末端から exogeneous に進むことを明らかにした。</p> <p>第6章では、環境微生物への MALDI-MS の応用について述べる。15ヶ所のクリーク土壌について APEO 分解能を検討した。10ヶ所の土壌は PEG 側鎖の短鎖化活性を持ち、他の土壌は末端水酸基を対応するカルボキシル基へ酸化した。わずかな形態学的相違点しか持たない APEO 分解菌のコロニーを単離し、MALDI-MS パターン、PCR-RFLP パターン、gyrB 遺伝子解析により分類した。単離菌は MALDI-MS パターンによる分類により、3 グループに分けられた。41f と 1066r primer と、3 種類の制限酵素 (<i>AluI</i>, <i>HaeIII</i>, <i>HhaI</i>) を用いた PCR-RFLP 解析は、単離菌が <i>Pseudomonas</i> 属に属することを示した。しかし単離菌はすべて同じ RFLP パターンを与えた。gyrB 遺伝子のシーケンス解析では、単離菌は 2 グループに分けられた。MALDI マススペクトル、および gyrB シークエンスによる分類結果は同一であり、単離菌の APEO 分解活性と一致していた。</p>
<p>論文内容の要旨 (英文)</p>	<p>There is growing concern that the endocrine disruption is a global phenomenon and endocrine-related effects have been reported in wildlife causing reproductive failure, especially in aquatic organisms. Usually most environmental pollutants are biologically degraded by some microbes and lose their toxicological activity. On the other hand, the alkylphenol polyethoxylates (APEOs) cause a different type of problem. The APEOs originally emitted to the environment are not toxic, the biodegradation products, however, acquire the estrogenic or anti-androgenic activity.</p> <p>This thesis deals with distribution and identification of the microbes affecting the environmental fate of APEO, the new synthesis of standard APEOs having single length PEG side chain, the biodegradation mechanisms of the APEO degrading microbes, and the application of MALDI-MS to environmental microbiology.</p> <p>In the 1st chapter, the author discusses with the distribution of APEO degrading bacteria and the identification of degradation products. Topsoil samples were collected from 174 different fields in Japan. Each soil sample was incubated with Triton X (<i>tert</i>-octylphenol polyethoxylate) as a sole carbon source to find degrading bacteria. 72 soil samples exhibited Triton X degrading activity. One soil sample collected from Okinawa Prefecture degraded Triton X to OP1EC (4-<i>tert</i>-octylphenoxyacetic acid) under aerobic condition. Triton X degrading bacteria isolated from the enrichment culture media had the ability of shortening the polyethylene glycol side chain and accumulated the degradation product OP3EO (4-<i>tert</i>-octyl-phenol triethoxylate) and OP2EO (4-<i>tert</i>-octylphenol diethoxylate) in the culture media.</p> <p>In the 2nd chapter, the author discusses with the separation and identification of APEO degradation bacteria. The bacteria isolated from the enrichment culture medium were tentatively identified by 16S rDNA RFLP analysis. It becomes obvious that such a series of <math>\gamma</math>-Proteobacteria with APEO degrading activity as <i>Pseudomonas</i>, <i>Agrobacterium</i>, <i>Alkaligenes</i>, and others are distributed widely in Japanese soil and the bacteria may produce estrogenic metabolites in the environment.</p> <p>In the 3rd chapter, the author discusses with the new synthesis of APEO homolog with long and single length polyethylene glycol side chain. The Williamson</p>

alkylation of a phenolic hydroxyl group of a 4-*tert*-octylphenol by 2-[2-(2-chloroethoxy)ethoxy]ethanol in the presence of potassium carbonate afforded the corresponding 9-(4'-*tert*-octylphenyl)-3, 6, 9-trioxanonan-1-ol (OP3EO) quantitatively. By using powdered sodium hydroxide in place of potassium carbonate in the presence of phase transfer catalyst, the alkylation of terminal hydroxyl group occurred to give a mixture of OP3EO, 18-(4'-*tert*-octylphenyl)-3, 6, 9, 12, 15, 18-hexaoxaoctadodecan-1-ol (OP6EO), 27-(4'-alkylphenyl)-3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 24, 27-nonaohaheptacosan-1-ol (OP9EO) and others.

In the 4th chapter, the author discusses with the effect of bulky alkyl group of APEO on the biodegradation of APEOs. AP3EOs having various alkyl groups at the *para* position of aromatic ring were prepared. The AP3EOs were fed to three strains of *Pseudomonas putida* as a sole carbon source. All strains of *Pseudomonas putida* could decompose AP3EOs and accumulate the corresponding AP2EOs quantitatively when the alkyl group was *tert*-butyl group. When AP3EOs with small alkyl group (R = H, methyl, ethyl) were fed, they decomposed the AP3EOs and left AP2EO, AP1EO, and corresponding carboxylic acids in the culture medium. These results indicate that the biodegradation of alkylphenol polyethoxylate was affected by the steric size of alkyl group at the *para* position of the aromatic ring.

In the 5th chapter, the author discusses with the application of APEO with a long and single length polyethylene glycol (PEG) side chain. The use of APEO with long and single length PEG chain was effective for studying degradation mechanism of APEOs. Result of biodegradation test with OP10EO, the peak area of one EO unit shorter homolog OP9EO gradually increased after 2 and 4 hours incubation by HPLC. MALDI-TOF mass spectrum of the medium after 6 hr incubation indicates the existence of OP10EC, the oxidation product of OP10EO. This result suggests that the oxidative degradation proceeded from the end of the PEG chain.

In the 6th chapter, the author discusses with the application of MALDI-MS instrument to environmental microbiology. Fifteen soil samples from water's edge of creek were investigated for APEO degrading ability. Ten soil samples possessed PEG chain shortening activity and the other soil samples oxidized the terminal hydroxyl group to corresponding carboxyl group. The colonies of APEO degrading bacteria having slight morphological difference were isolated and the bacteria were grouped by MALDI-MS patterns, PCR-RFLP patterns, and sequence analysis of *gyrB* gene. The isolates were divided into three groups by typing with MALDI-MS pattern. The PCR-RFLP analysis using 41f and 1066r primer set and three kinds of restriction enzyme (*AluI*, *HaeIII*, *HhaI*) indicated that the isolates belonged to *Pseudomonas* sp., but all isolates gave the same RFLP pattern. The sequence analysis of *gyrB* gene divided the isolates into two groups. The grouping results by MALDI-MS spectra and *gyrB* sequence were identical and represent the APEO degrading ability of the isolates.

In the 7th chapter, the main results of this thesis are summarized.

論文審査結果

<学位論文審査の結果>

この論文は、環境中での分解により内分泌かく乱活性を持つ代謝物を与える、アルキルフェノール (AP) 系界面活性剤につき、化学的・生物的側面から研究を進めたものである。本研究の背景は、これらの化合物群が環境省で実施された「SPEED98プロジェクト」において、いわゆる環境ホルモンであると判断され社会的に大きな関心を引き起こしていること、さらにこれらの界面活性剤が農業用補助剤として世界的に使用されていることを受け、農林水産省が立案した「有害化学物質リスク管理プロジェクト」の一環として遂行されたものである。

本研究で得られた主要な成果は以下の通りである。

1. これらの界面活性剤は、APとエチレンオキシドの重合反応で合成されるため、市販の活性剤は試薬であってもポリエチレングリコール側鎖（PEG側鎖）の鎖長異性体混合物である。このため、微生物による分解反応をトレースする場合、基質と生成物の区別がつかず、この分野の研究が遅れていた。本研究では、長鎖単一鎖長異性体合成の原料となるアルキルフェノールジエトキシレート（AP2EO）およびアルキルフェノールトリエトキシレート（AP3EO）の定量的合成法を確立、さらにこれらの異性体に対して、クロロエトキシエトキシエタノールをone-potで順次付加する方法で、3EO unitずつ相互に異なる異性体群を一挙に合成し分離する方法を確立した。
2. 上記の反応を利用して、大きさの違うアルキル基を導入したAPEOを合成し、アルキル基の嵩高さが微生物分解に大きく影響することを明らかにした。
3. 日本各地の農耕地土壌には、APEOの側鎖を短鎖化しエストロゲン活性を持つ AP<sub>n</sub>EO(n=1~3)を生産する細菌が広く分布することを明らかにするとともに、分解細菌は *Pseudomonas* 属や *Sphingomonas* 属細菌を含むプロテオバクテリアであることを明らかにした。
4. 1で合成した長鎖単一鎖長を持つAPEOを使用することにより、3 で単離した微生物による分解は、アルコールデヒドロゲナーゼによる末端アルコールの酸化産物であるカルボン酸を経由し、グリオキシル酸と1EO unit 短いAPEOを与える経路で進行するエキソ型分解であることを明らかにした。
5. 佐賀県のクリーク土壌を対象としてAPEO分解微生物の探索と同定を行うと同時に、遺伝子側からの詳細な解析を行い、微生物のスクリーニングにMALDI-TOF MS (matrix-assisted laser desorption/ionization time-of-flight mass spectrometry)が有効に利用できることを見出した。この方法は環境微生物研究に非常に有効な方法であり、*J. Pestic. Chem.* 誌に running paper として掲載が受理されている。
6. 佐賀県クリーク表層水を対象に、ストレプトマイシン抵抗性細菌の探索を、5 の方法を用いて実施し、高度な抵抗性を示す細菌群を見出すと同時に、こうした研究におけるMALDI-TOF MSの有効性を示した。

以上の研究成果は、国内外の雑誌における査読つき論文6編（第1著者3編）、紀要等5編（第1著者2編）、国際学会2編（第1著者1編）にまとめられ、国内学会での発表は16編に上っている。（在学期間内の件数）さらに、本研究テーマで日本農薬学会環境研究補助金を2007年に獲得している。

学位審査委員会は、この論文が学位論文として適切な内容であると判断した。

#### <学位論文公聴会>

学位論文公聴会は、2008年2月15日の16時30分より、約30人の参加者のもとに開催された。この公聴会においては、論文内容に関連する種々の科学的及び技術的な質問があったが、いずれも適切な回答を行うことができた。

#### <最終試験>

最終試験においては、学位論文に関連する分野の学識を有し、今後研究を進めていくための研究能力を備えていることを確認した。また、主要な査読論文が英語で書かれていることから、英語論文作成能力も十分にあると判断した。

#### <総合判定>

以上の結果から、学位審査委員会は、この論文が博士（工学）の学位に適格であると判定した。

#### 主な研究業績

##### <査読付き論文>

1. “An environmentally acceptable method for assaying the inhibition of  $\alpha$ -amylose induction”  
*J. Pestic. Sci.*, Vol.32, No.2, pp.120-123 (2007)  
Authors: Ichiki Y., Tamura H., Ohtani A., Yoshikawa H.
2. “Isolation of bacterial strains that produce the endocrine disruptor, octylphenol diethoxylates, in paddy fields”  
*Biosci. Biotechnol. Biochem.*, Vol.66, No.9, pp.1792-1798 (2002)  
Authors: Nishio E., Ichiki Y., Tamura H., Morita S., Watanabe K., Yoshikawa H.

3. "The biological and structural similarity between lunularic acid and abscisic acid"  
Biosci. Biotechnol. Biochem., Vol.66, No.4, pp.840-846 (2002)  
Authors: Yoshikawa H., **Ichiki Y.**, Sakakibara KD., Tamura H., Suiko M.
4. 「土壌・河川水中における非イオン性界面活性剤トリトンX分解物の分析」  
用水と廃水、Vol.49, No.3, pp.74-78 (2007)  
著者：豊川徹、西尾恵里子、**市来弥生**、吉川博道、古賀克己、富田純史
5. "Efficacious syntheses of alkylphenol ehoxylates and ethoxycarboxylates with long and single length PEG chain and their application to environmental fate study"  
J. Pestic. Sci., Vol.33, No.1, pp.28-32 (2008)  
Authors: **Ichiki Y.**, Ishimoto T., Yoshikawa H.

Accepted

1. "Environmental distribution and a novel high-throughput screening method of APEO degrading bacteria using matrix-assisted laser desorption/ionization on time-of-flight mass spectrometry (MALDI-MS)  
J. Pestic. Sci., Vol.33, No.2., ページ未定  
Authors: **Ichiki Y.**, Ishizawa N., Tamura H., Teramoto K., Sato H., Yoshikawa H.

< 紀要等 >

1. 「農業用水路中のストレプトマイシン耐性菌の探索と単離菌のグルーピングへのMALDI-TOF MSの適用」  
J UOEH, Vol.30, No.1, pp.11-25 (2008)  
著者：**市来弥生**、青木智宏、高島泰斗、田村廣人、寺本華奈江、佐藤浩昭、嵐谷奎一、吉川博道
2. "Synthesis and biological activity of pseudonucleotides based on the evolution hypothesis of the glycocomponent of nucleic acid"  
J UOEH, Vol.25, No.3, pp.295-305 (2003)  
Authors: Yoshikawa H., Tamura H., **Ichiki Y.**, Cho N., Arashidani K.
3. "Study on extracellular secretion of phenolic substances from living brown algae"  
福岡工業大学環境科学研究所所報、第1巻、pp.15-18 (2007)  
著者：Shibata T., Ishizawa N., **Ichiki Y.**, Yoshikawa H.
4. 「環境中に放出された芳香族化合物を分解する微生物コンソーシアの構築」  
福岡工業大学エレクトロニクス研究所所報、第22巻、pp.19-26 (2005)  
著者：吉川博道、**市来弥生**、田村廣人、川上満泰

Accepted

1. "The steric effect of alkyl group on the biodegradation of alkylphenol polyethoxylate"  
福岡工業大学研究論集 (Accepted)  
Authors: **Ichiki Y.**, Ishimoto T., Nishio E., Tamura H., Yoshikawa H.

< 査読なし論文 >

1. 「非イオン性界面活性剤Octylphenol polyethoxylateを分解する微生物の探索と分解能の検討」  
北九州市医工学術者協会誌、Vol.14, No.1, pp.21-22 (2003)  
著者：**市来弥生**、中島洋子、田村廣人、西尾恵里子、吉川博道
2. 「Abscisic acid類縁体の合成と生物試験」  
北九州市医工学術者協会誌、Vol.14, No.1, pp.43-44 (2003)  
著者：梅光順平、**市来弥生**、上野淳一郎、吉川博道
3. 「土壌での環境ホルモン物質(アルキルフェノールジエトキシレート及びトリエトキシレート)の生成機構の推定」  
平成14年度九州沖縄農業研究センター成果情報、pp.591-592 (2003)  
著者：渡邊克二、田村廣人、吉川博道、西尾恵里子、**市来弥生**

<国際学会>

1. “Distribution of Alkylphenol Polyethoxylate Degrading Bacteria in Farmland in Japan”  
11th IUPAC International Congress of Pesticide Chemistry, 2006, Kobe  
Authors: **Ichiki Y.**, Tamura H., Sato H., Abe D., Nouzuka F., Yoshikawa H.
2. “Synthesis and Biological Activity of 4H-1, 3, 2-Benzoxazaphosphrine Derivatives”  
11th IUPAC International Congress of Pesticide Chemistry, 2006, Kobe  
Authors: Yoshikawa H. **Ichiki Y.**, Tamura H.
3. “Influence of tomato juice intake on fat-soluble vitamin and carotenoid levels in maternal blood, coostrum and umbilical cord blood during perinatal period.”  
Annual Meeting of FASEB, 2004, Washington D. C.  
Authors: Tomita Y., Yoshioka T., Nishio E., **Ichiki Y.**, Toyokawa T., Morita S., Koizumi K., Inokuma T., Hamada M.
4. “Isolation of bacterial strains that produce an endocrine disruptor octylphenol diethoxylate in farmland”  
10th Int. Congress on the Chemistry of the Crop Protection, IUPAC, 2002, Basel  
Authors: Yoshikawa H., Nishio E., **Ichiki Y.**, Morita S., Watanabe K., Tamura H.
5. “*O*-Alkyloximes possess ABA-like activity or anti-auxin-like activity according to their structures”  
Proc. 27th Annu. Meet. PGRSA Joint with Japanese Society for the Chemical Regulation of Plants. 2000, Hawaii  
Authors: **Ichiki Y.**, Iwata R, Sakakibara K, Cho N, Yoshikawa H.
6. “Lunularic acid analogs exhibit abscisic acid-like activities in higher plant”  
Proc. 27th Annu. Meet. PGRSA Joint with Japanese Society for the Chemical Regulation of Plants. 2000, Hawaii  
Authors: Yoshikawa H., Kajiki R., Cho N., Sakakibara K., **Ichiki Y.**

<国内学会>

1. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリーニング(6)」  
第44回化学関連支部合同九州大会、北九州市、2007年  
著者：市来弥生、石澤夏希、石本淑恵、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道
2. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリーニング(5)」  
第44回化学関連支部合同九州大会、北九州市、2007年  
著者：石澤夏希、市来弥生、石本淑恵、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道
3. 「MALDI-MS によるアルキルフェノールポリエトキシレート分解菌の迅速同定の試み(2)」  
第44回化学関連支部合同九州大会、北九州市、2007年  
著者：荒巻忍、市来弥生、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道
4. 「長鎖単一鎖長をもつアルキルフェノールエトキシレートの合成とその利用 (1)」  
第44回化学関連支部合同九州大会、北九州市、2007年  
著者：石本淑恵、市来弥生、田村廣人、吉川博道
5. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリーニング(4)」  
第16回環境化学討論会、北九州市、2007年  
著者：市来弥生、石澤夏希、荒巻忍、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道
6. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリー

ニング(3)」

第16回環境化学討論会、北九州市、2007年

著者：石澤夏希、市来弥生、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道

7. 「単一鎖長をもつアルキルフェノールポリエトキシレートの合成とその利用」

第16回環境化学討論会、北九州市、2007年

著者：石本淑恵、市来弥生、田村廣人、吉川博道

8. 「アルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物の新規スクリーニング法の開発」

日本農薬学会第32回大会、東京、2007年

著者：市来弥生、荒巻忍、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道

9. 「簡便なAlkylphenol Nonaethoxylate 合成とその微生物分解」

日本農薬学会第32回大会、東京、2007年

著者：石本淑恵、市来弥生、田村廣人、吉川博道

10. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリーニング(2)」

第13回 日本生物工学会九州支部鹿児島大会、鹿児島市、2006年

著者：市来弥生、石澤夏希、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道

11. 「MALDI-MSを用いたアルキルフェノールポリエトキシレート分解微生物のスクリーニング(1)」

第13回 日本生物工学会九州支部鹿児島大会、鹿児島市、2006年

著者：石澤夏希、市来弥生、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道

12. 「MALDI-MSによるアルキルフェノールポリエトキシレート分解菌の迅速同定の試み」

第13回 日本生物工学会九州支部鹿児島大会、鹿児島市、2006年

著者：荒巻忍、市来弥生、寺本華奈江、佐藤浩昭、田村廣人、吉川博道

13. 「アルキルフェノールエトキシレートのアルキル基が微生物分解に与える影響」

第13回 日本生物工学会九州支部鹿児島大会、鹿児島市、2006年

著者：石本淑恵、市来弥生、田村廣人、吉川博道

14. 「アルキルフェノールポリエトキシレートの環境動態について」

日本農芸化学会西日本支部および日本栄養・食糧学会九州・沖縄支部合同大会、佐賀、2006年

著者：市来弥生、田村廣人、吉川博道

15. 「アルキルフェノールポリエトキシレート長鎖ホモログの合成とその利用」

日本農芸化学会西日本支部および日本栄養・食糧学会九州・沖縄支部合同大会、佐賀、2006年

著者：市来弥生、石本淑恵、田村廣人、吉川博道

16. 「環境中でのTriton Xの好氣的分解について」

日本農芸化学会関西・中四国・西日本支部合同大会、大阪、2005年

著者：市来弥生<sup>1</sup>、田村廣人<sup>2</sup>、吉川博道<sup>1</sup>

他20編